

УДК 551.510.42

## Долговременная изменчивость загрязнения атмосферы черным углеродом в регионе Пекина в осенние периоды

А.С. Емиленко<sup>1</sup>, М.А. Свириденков<sup>1</sup>, В.М. Копейкин<sup>1</sup>, Ван Генчень<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН  
119017, г. Москва, Пыжевский пер., 3, Россия

<sup>2</sup>Институт физики атмосферы АН Китая  
Р.О. Вох 9804, Chao Yang district, 100029 Beijing, China

Поступила в редакцию 20.01.2017 г.

Анализируются результаты измерений содержания черного углерода и субмикронного аэрозоля в Пекине и в фоновом районе в 150 км на северо-восток от столицы Китая. Измерения проводятся в течение многих лет, преимущественно в осенний период. Выявлено снижение концентрации черного углерода, носящее региональный характер. Подтвержден вывод об уменьшении в среднем относительного вклада сажевого аэрозоля с ростом замутненности воздуха, сделанный в предыдущих работах.

*Ключевые слова:* субмикронный аэрозоль, концентрация черного углерода, городские и региональные источники аэрозоля, междугодичная изменчивость; fine aerosol, black carbon concentration, urban and regional sources of aerosol, interannual variability.

### Введение

Углеродосодержащие частицы — это одна из основных составляющих атмосферного аэрозоля. Исследование изменчивости их содержания важно с точки зрения климатических эффектов аэрозоля, экологии, охраны здоровья и т.д. Регион Пекина является значительным источником антропогенного аэрозоля, включая сажевый. На содержание аэрозоля в воздушном бассейне столицы Китая влияют как постоянный промышленный рост и развитие транспортной системы, так и природоохранные мероприятия. В данной работе рассматриваются некоторые результаты круглосуточных синхронных измерений концентрации сажи, точнее «черного углерода» (BC), и субмикронного аэрозоля, проводимых в Пекине в осенний период в течение примерно 20 лет. Цель исследования — выявить особенности междугодичной изменчивости этих составляющих атмосферного аэрозоля и выделить роль городских источников аэрозольного антропогенного загрязнения атмосферы. Частично измерения в Пекине сопровождались синхронными измерениями на фоновой региональной станции на горе Синлун, расположенной на 150 км северо-восточнее столицы Китая.

В [1] были представлены результаты измерений в Пекине и Москве приземных концентраций субмикронного аэрозоля и сажи в период с 1992 по 2012 г.

\* Александр Сергеевич Емиленко (emilas@list.ru); Михаил Алексеевич Свириденков (sviridenkov@ifaran.ru); Владимир Михайлович Копейкин (kopeikin@ifaran.ru); Ван Генчень (wgc@mail.iap.ac.cn).

Выявлено, что для Пекина в 2001–2012 гг. характерно снижение концентрации сажи при одновременном увеличении концентрации субмикронного аэрозоля. Установлена основная причина экстремальных загрязнений Пекина, а именно, перенос региональных загрязнений из промышленных районов, расположенных в 100–500 км к югу и юго-западу от города. В [2] проведено сопоставление результатов совместных измерений массовой концентрации сажевого и субмикронного аэрозоля в приземном слое воздуха как в местах с высокой степенью антропогенной нагрузки, так и в фоновых условиях. Показано, что относительное массовое содержание сажи в субмикронном аэрозоле характеризует вклад локальных и региональных источников, а анализ ее изменчивости позволяет проследить процессы гетерогенной трансформации аэрозоля. В [3] на основе данных спектрополяриметрических измерений проанализирована трансформация оптических и микрофизических характеристик аэрозоля в смоговом эпизоде в Пекине. Накопление аэрозоля в приземном слое в процессе развития смога сопровождается согласованным изменением всех микрофизических характеристик аэрозоля — растет эффективный размер частиц, уменьшаются показатель преломления и относительное содержание сажи. В [4] обсуждаются результаты восстановления микрофизических параметров субмикронного аэрозоля для массива спектрополяриметрических измерений, выполненных с 2003 по 2010 г. в Пекине и на фоновой горной станции Синлун. Распределения частиц по размерам в субмикронном диапазоне являются одномодальными. Эффективный радиус частиц варьирует в диапазоне

0,1–0,2 мкм. При этом основное различие между Пекином и фоновой станцией – не в диапазоне вариации эффективного размера, а в разной средней концентрации частиц.

Анализ результатов описанных выше работ был учтен при планировании и проведении осенних измерений в регионе Пекина в 2013–2015 гг. Прежде всего, была увеличена длительность синхронных измерений черного углерода в Пекине и на горной станции и дополнительно проведены круглосуточные измерения концентрации ВС в Пекине с 18 октября по 31 декабря 2015 г. и в январе 2016 г. Интенсивные синхронные измерения концентраций ВС и  $PM_{10}$ , проведенные в 2013–2015 гг., в совокупности с измерениями 2003–2012 гг. позволяют нам провести анализ полученных междугодичных изменчивостей  $PM_{10}$  и его ВС-фракции и выделить городскую часть эмиссии субмикронного аэрозоля. Кроме регулярных измерений концентраций ВС, в 2015 г. проводились наблюдения с использованием счетчика частиц GRIMM EDM 180-МС.

## Аппаратура и методика измерений

Объемная концентрация субмикронного аэрозоля в измерениях до 2014 г. включительно оценивалась нефелометрическим методом по данным измерений с помощью нефелометра-поляриметра ФАН. Измерялись семь оптических параметров аэрозоля (коэффициенты направленного светорассеяния под углом  $45^\circ$  на трех длинах волн и их поляризационные составляющие под углом  $90^\circ$  на двух длинах волн); получаемой информации достаточно для решения обратной задачи и расчета объемной концентрации [5]. В мониторинговом режиме измеряется только одна характеристика – коэффициент направленного светорассеяния под углом  $45^\circ$  на длине волны 0,51 мкм  $D(45^\circ, 0,51 \text{ мкм})$ . По результатам обработки массивов данных измерений в Пекине, Синлуне, Москве и на Звенигородской научной станции (ЗНС) ИФА РАН нами получено соотношение между объемной концентрацией и  $D(45^\circ, 0,51 \text{ мкм})$  [4]:

$$V(\text{мм}^3/\text{м}^3) = D(45^\circ) (\text{ср}^{-1} \cdot \text{км}^{-1}), \quad (1)$$

где  $V$  – объемная концентрация аэрозоля в интервале радиусов частиц 0,05–0,60 мкм. В целом, отношение  $V/D$  зависит от показателя преломления вещества аэрозоля  $n$  [6]. Вследствие особенностей конструкции прибора и проведения натурных наблюдений фактически измеряются характеристики сухой основы частиц аэрозоля. Поэтому вариации  $n$  существенно меньше, чем для натурального аэрозоля и в первом приближении этой зависимостью можно пренебречь. Концентрация ВС определялась путем сбора проб на кварцевые фильтры с последующим измерением в лабораторных условиях ослабления света аэрозольными образцами [2]. При расчетах массовой концентрации субмикронного аэрозоля плотность частиц принималась равной  $1,5 \text{ г}/\text{см}^3$  [3].

В осенние периоды 2013–2015 гг. для более надежного выделения вклада городских источников

субмикронного аэрозоля и ВС особое внимание уделялось синхронным измерениям концентрации черного углерода в Пекине и на фоновой станции. Была увеличена продолжительность цикла синхронных измерений – в 2013–2015 гг. такие циклы длились 3 нед. В 2015 г. дополнительно проводились измерения ВС в Пекине весь ноябрь, декабрь 2015 г. и январь 2016 г. В осенних измерениях 2015 г. использовался в непрерывном режиме работы прибор GRIMM EDM 180-МС, который позволяет определять  $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$ ,  $PM_{10}$  и спектры размеров частиц в диапазоне от 0,25 до 32 мкм в 31 канале.

## Полученные результаты и их анализ

На рис. 1 показаны результаты синхронных измерений концентрации сажи в осенние периоды 2013 и 2015 гг., сглаженные 24-часовым осреднением методом скользящего среднего. Данные аналогичных измерений ВС, выполненных с 10 ноября по 4 декабря 2014 г., представлены в работе [7]. Как следует из рис. 1, изменения концентрации ВС в Пекине и в фоновом районе происходят согласованно, что свидетельствует о региональном характере аэрозольного загрязнения.

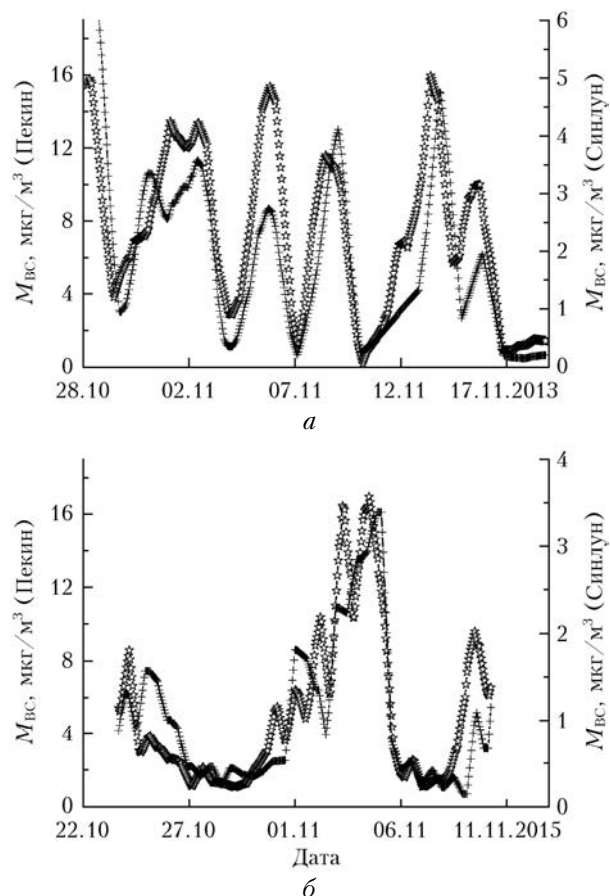


Рис. 1. Сопоставление концентрации сажи в Пекине ( $\star$ ) и на горе Синлун ( $+$ ) по данным измерений с 22 октября по 19 ноября 2013 г. (а) и с 27 октября по 11 ноября 2015 г. (б)

В 2003, 2004 и 2007 г., наряду с синхронными измерениями концентрации сажи в Пекине и на фоновой станции, проводились синхронные измерения коэффициента направленного светорассеяния  $D(45^\circ)$  в этих двух пунктах. В горной местности практически отсутствуют локальные антропогенные источники примесей. Концентрации сажи и субмикронного аэрозоля определяются только региональными источниками загрязнения атмосферы и переносом воздушных масс, в процессе которого происходит трансформация количественных и качественных характеристик аэрозоля. Некоторые результаты синхронных измерений концентраций мелкодисперсного аэрозоля и черного углерода, выполненных в период с 2004 по 2015 г., представлены в таблице, из которой видно, что со временем содержание ВС уменьшается. Так, концентрация сажи в 2015 г. в Пекине близка к концентрации сажи на горе Синлун в 2004 г. Отношение же концентраций в двух пунктах не показывает устойчивой тенденции. Концентрация мелкодисперсного аэрозоля в Пекине в среднем примерно в 2 раза выше, чем в фоновой точке, в то время как концентрация сажи выше в 3,5–5 раз.

В 2015 г., в дополнение к измерениям с 18 октября по 12 ноября (которые отображены в таблице), проводились круглосуточные измерения в Пекине до начала февраля 2016 г. Для ноября средние значения концентрации ВС оказались равными  $4,3 \text{ мкг/м}^3$ , для декабря —  $4,0 \text{ мкг/м}^3$ , а для января 2016 г. —  $2,5 \text{ мкг/м}^3$ . Следует иметь в виду, что измерения в Синлуне были проведены на высоте 960 м над уровнем моря, но этот факт не меняет качественную картину уменьшения вклада мегаполиса в региональное антропогенное загрязнение.

На рис. 2 представлены средние за каждый осенний цикл измерений концентрации черного углерода в Пекине за период с 2003 по 2015 г. Данные результаты более четко показывают тренд уменьшения концентрации черного углерода. По сравнению с 2004 в 2015 г. концентрация ВС уменьшилась в 3 раза. Важную роль в уменьшении выбросов черного углерода сыграла подготовка к Олимпиаде — угольные котельные были переведены на другие источники энергии, часть загрязняющих атмосферу производств была выведена за пределы столицы Китая.

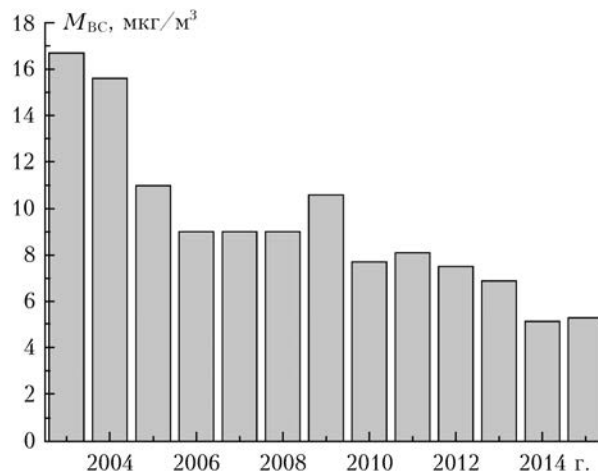


Рис. 2. Межгодовая изменчивость средней за период осенних измерений массовой концентрации черного углерода в Пекине в период с 2003 по 2015 г.

Для 2015 г. данные в таблице и на рис. 2 отличаются, так как в таблице приведены результаты за время синхронных измерений в Пекине и на фоновой станции (3 нед), а на рисунке — за 30 дней измерений в Пекине. Эти величины можно считать характеристиками изменения эмиссии ВС за счет городских источников столицы Китая.

В 2015 г. распределения частиц по размерам оценивались с использованием фотоэлектрического счетчика частиц GRIMM EDM 180-МС. Этот прибор позволяет измерять дифференциальные концентрации частиц в диапазоне диаметров 0,25–32 мкм, а также рассчитывать массовые концентрации  $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$  и  $PM_{10}$ . Параллельные измерения спектра размеров и концентрации ВС дают возможность оценить корреляцию поглощающего видимого излучения компонента с концентрацией аэрозоля разных размеров. Ввиду того, что пробы на фильтры собирались в течение нескольких часов, а счетчик частиц работал в непрерывном режиме, показания счетчика интегрировались за период накопления аэрозоля на фильтре. Всего в октябре 2015 г. было собрано 88 проб.

Зависимость коэффициента детерминации от радиуса частиц представлена на рис. 3. Там же для сравнения приведены результаты расчета коэффициентов

#### Сравнение концентраций субмикронного аэрозоля и ВС в Пекине и в фоновом районе

Параметр		Год							
		2004	2007	2013	2004	2007	2013	2014	2015
		$M_{сбм}, \text{ мкг/м}^3$			$M_{BC}, \text{ мкг/м}^3$				
Пекин	<i>N</i>	319,0	333,0	311,0	106,0	55,0	75,0	105,0	65,0
	<i>Сред.</i>	178,5	142,5	238,5	15,4	11,2	7,5	6,8	5,2
	<i>Ст.от</i>	261,0	277,0	293,0	12,3	8,2	5,5	5,8	5,1
Синлун	<i>N</i>	319,0	333,0	311,0	85,0	87,0	75,0	51,0	36,0
	<i>Сред.</i>	69,0	88,5	114,0	4,9	3,8	2,0	1,4	1,2
	<i>Ст.от</i>	117,0	163,0	130,0	4,1	2,8	1,3	1,3	1,7
Пекин/Синлун		2,6	1,6	2,1	3,1	4,2	3,8	3,8	5,0

Примечание. *N* — число измерений; *Сред.* — среднее значение за цикл измерений; *Ст.от* — стандартное отклонение.

детерминации для массивов, полученных в Пекине и Москве в 2004 г. В этих массивах распределение частиц по размерам восстанавливалось путем решения обратной задачи по данным измерений с помощью нефелометра-поляриметра ФАН. Во всех трех случаях наиболее высокая корреляция наблюдается для частиц радиусом 0,1–0,2 мкм. Связь между концентрацией ВС и наименьшими из измеряемых счетчиком частицами прослеживается и на временных ходах этих величин.

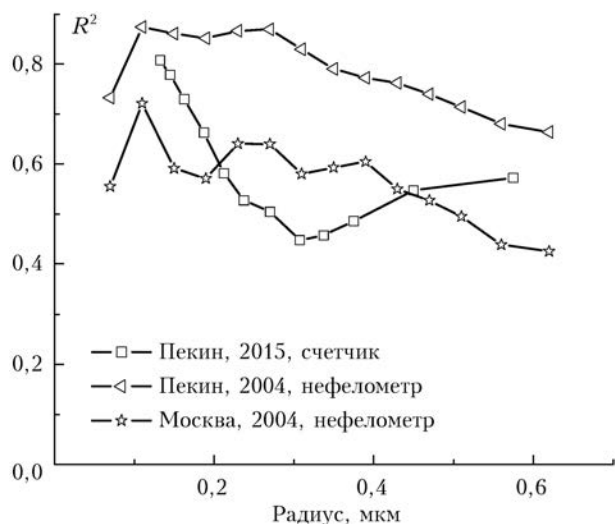


Рис. 3. Зависимости коэффициентов детерминации связи между концентрациями черного углерода и аэрозоля от размера частиц

На рис. 4 представлены временные зависимости массовых концентраций ВС и количества частиц диаметром от 0,25 до 0,28 мкм в кубическом дециметре.

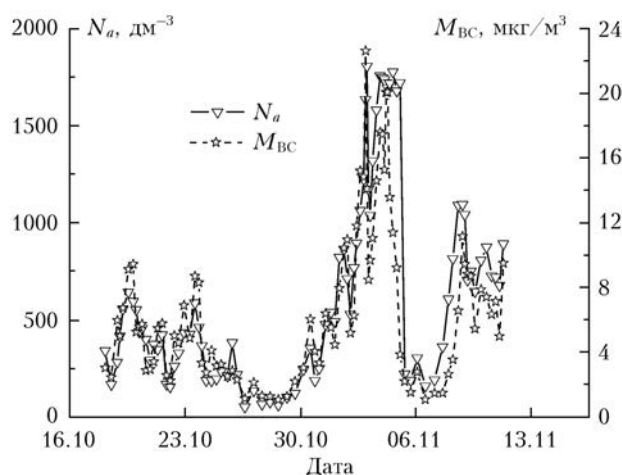


Рис. 4. Временные ходы концентрации черного углерода ( $M_{BC}$ ) и числа частиц ( $N_a$ ) диаметром от 0,25 до 0,28 мкм по данным измерений с 19 октября по 12 ноября 2015 г. в Пекине

Ранее, при анализе смоговой ситуации в Пекине нами было показано, что с ростом аэрозольной нагрузки относительное содержание черного углерода имеет тенденцию к уменьшению [4]. Измерения

2015 г. позволили проверить этот вывод и на основе данных фотоэлектрического счетчика частиц GRIMM EDM 180-МС. Для этого был использован следующий подход. Были рассчитаны отношения  $K$  массовой концентрации ВС к  $PM_{10}$ . Весь диапазон изменения  $K$  был разбит на четыре интервала:  $5 < K < 10\%$ ;  $10 < K < 15\%$ ;  $15 < K < 20\%$ ;  $K > 20\%$ . В каждый из интервалов попадало примерно равное число реализаций. Затем для каждого интервала рассчитывались средние значения  $K$  и средние спектры размеров. Результаты расчетов приведены на рис. 5.

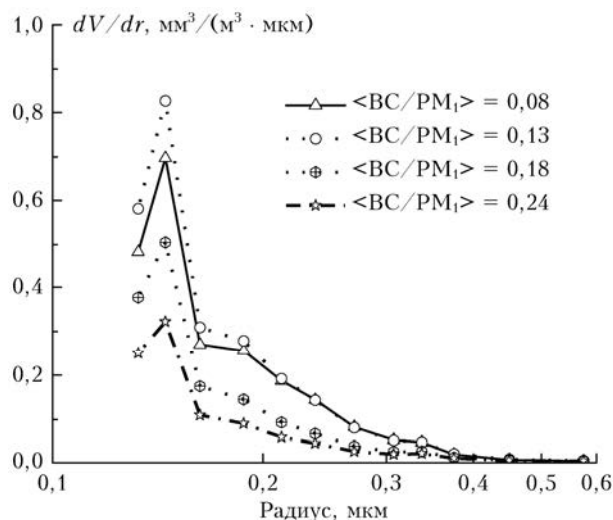


Рис. 5. Условные (по относительному содержанию ВС) средние распределения частиц по размерам по данным измерений в Пекине в октябре 2015 г.

Как следует из рис. 5, средняя объемная концентрация аэрозоля в диапазоне 0,13–0,30 мкм в разы больше при низком относительном содержании ВС, чем при высоком. Стоит обратить внимание, что средние спектры размеров для двух подмассивов с наименьшим содержанием черного углерода близки. Также из рисунка следует, что наиболее изменчивой является субмикронная фракция аэрозоля.

## Заключение

Сопоставление результатов измерений концентрации сажи и данных счетчика частиц GRIMM EDM 180-МС подтверждают правильность выбора метода исследования антропогенного загрязнения атмосферы Пекина в осенние периоды – сочетание спектрополяриметрических и нефелометрических измерений мелкодисперсного аэрозоля и оптических методов анализа собранных проб для определения концентрации черного углерода. Основной вклад в концентрацию ВС в осенние периоды 2003–2015 гг. в Пекине вносили городские источники антропогенной эмиссии. Эти эмиссии существенно уменьшились в период с 2003 по 2015 г. Поскольку эмиссия черного углерода – это часть эмиссии городского первичного мелкодисперсного аэрозоля, то и концентрация этой фракции уменьшалась.

Данные длительных измерений концентрации ВС в Пекине в октябре–декабре 2015 г. показали, что небольшой разброс среднемесячных значений концентрации ВС позволяет считать результаты цикла измерений длительностью 3,5 нед достаточно надежной характеристикой средней концентрации ВС для всего указанного периода.

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 16-05-00985\_а).

1. Голицын Г.С., Гречко Е.И., Ван Генчен, Ван Пусай, Джола А.В., Емиленко А.С., Копейкин В.М., Ракишин В.С., Сафронов А.Н., Фокеева Е.В. Исследования загрязнения Москвы и Пекина окисью углерода и аэрозолем // Изв. АН. Физ. атмосф. и океана. 2015. Т. 51, № 1. С. 1–12.
2. Емиленко А.С., Копейкин В.М. Сравнение синхронных измерений концентрации сажи и субмикронного аэрозоля в регионах с различной степенью антропогенной нагрузки // Оптика атмосф. и океана. 2009. Т. 22, № 6. С. 535–540; *Emilenko A.S., Kopeikin V.M.* Comparison of synchronous measurements of soot and submicron aerosol concentrations in regions with different anthropogenic loadings // *Atmos. Ocean. Opt.* 2009. V. 22, N 4. P. 421–427.
3. *Sviridenkov M.A., Emilenko A.S., Kopeikin V.M., Van Gengchen.* Трансформация оптических свойств и микроструктуры аэрозоля во время смогового эпизода в Пекине // *Оптика атмосф. и океана.* 2006. Т. 19, № 6. С. 522–525.
4. *Sviridenkov M.A., Emilenko A.S., Wang Pucui, Wang Gengchen.* Polarimetric study of fine aerosol fraction in Beijing // *Atmos. Ocean. Sci. Lett.* 2014. V. 7, N 5. P. 210–212.
5. *Панченко М.В., Свириденков М.А., Терпугова С.А., Козлов В.С.* Активная спектрофелометрия в исследовании микрофизических характеристик субмикронного аэрозоля // *Оптика атмосф. и океана.* 2004. Т. 17, № 5–6. С. 428–436.
6. *Терпугова С.А., Панченко М.В., Свириденков М.А., Докукина Т.А.* Соотношения между оптическими и микрофизическими параметрами конденсационной изменчивости приземного аэрозоля // *Оптика атмосф. и океана.* 2009. Т. 22, № 7. С. 629–634; *Terpugova S.A., Panchenko M.V., Sviridenkov M.A., Dokukina T.A.* Relationships between the optical and microphysical parameters of near-ground aerosol condensation activity // *Atmos. Ocean. Opt.* 2009. V. 22, N 4. P. 405–412.
7. *Emilenko A.S., Isakov A.A., Kopeikin V.M., Wang Gengchen.* Relative contributions of regional, urban, and local sources of atmospheric aerosol pollution in regions with different levels of anthropogenic load // *Proc. SPIE.* 2015. V. 9680. P. 46.

*A.S. Emilenko, M.A. Sviridenkov, V.M. Kopeikin, Wang Gengchen.* **Long-term variability of atmospheric pollution by black carbon in the Beijing region in fall seasons.**

The results of the measurements of black carbon and fine aerosol content in Beijing and in the background region 50 km north-east of the capital of China are analyzed. The measurements were carried out for many years, mainly in the autumn. A reduction in the concentration of black carbon, having regional character, has been revealed. An earlier conclusion about the reduction, on average, of the relative contribution of soot aerosol with the growth of air the turbidity has been confirmed.