

Оценка интегральной эмиссии монооксида углерода (CO) с территории Санкт-Петербурга по данным наземных FTIR-измерений и результатам дисперсионного моделирования

Ионов Д. В.¹, Макарова М. В.¹, Косцов В. С.¹, Фока С. Ч.¹, Макаров Б. К.²

¹ Санкт-Петербургский государственный университет, физический факультет

² НИТИ им. А. П. Александрова, г. Сосновый Бор

e-mail: d.ionov@spbu.ru

Аннотация

Во время проведения международной измерительной кампании EMME-2019 и –2020, нацеленной на экспериментальное определение антропогенных эмиссий парниковых газов с территории Санкт-Петербурга, выполнялись наземные спектроскопические измерения общего содержания (OC) монооксида углерода (CO) в вертикальном столбе атмосферы. Антропогенный вклад в общее загрязнение воздушного городского бассейна монооксидом углерода оценивался по величине экспериментально наблюдаемой разности между OC CO в подветренной и наветренной точках наблюдений (Δ OC). Моделирование пространственно-временной эволюции шлейфа городского загрязнения выполнялось с помощью модели HYSPLIT. На основе сопряжения результатов моделирования HYSPLIT с данными полевых FTIR-измерений весной 2019 и 2020 гг. получена экспериментальная оценка суммарного выброса CO в атмосферу в размере 220 ± 40 килотонн в год.

Ключевые слова: антропогенная эмиссия, монооксид углерода, FTIR, HYSPLIT

Введение

Монооксид углерода является одной из наиболее значимых и широко распространенных газовых составляющих, загрязняющих атмосферу. Выбросы CO обычно превышают суммарную эмиссию всех других антропогенных примесей (за исключением CO₂), особенно в городской среде. Практически весь поступающий в атмосферу CO обусловлен сжиганием ископаемого топлива, связанным с человеческой деятельностью. Дистанционные спектроскопические измерения, осуществляемые в инфракрасной (ИК) области спектра, дают информацию о содержании CO на трассе распространения солнечного излучения. Суммарный объём выброса CO может быть оценен на основе сопряжения результатов полевых измерений с данными численного моделирования пространственного распределения CO в атмосфере.

Измерительные кампании EMME (Emission Monitoring Mobile Experiment) были организованы в 2019 и 2020 гг. в рамках международного проекта VERIFY (<https://verify.lscpe.ipsl.fr>). Главная цель EMME — определение антропогенных эмиссий парниковых газов, углекислого газа (CO₂) и метана (CH₄), с территории Санкт-Петербурга. Основным инструментом кампании служил портативный инфракрасный (ИК) Фурье-спектрометр (FTIR) Bruker EM27/SUN, используемый для наземных дистанционных измерений общего содержания (OC) в вертикальном столбе атмосферы не только CO₂ и CH₄, но также и монооксида углерода, CO. Концепция EMME базировалась на дневных FTIR-измерениях OC ключевых газовых составляющих в двух точках, располагаемых внутри и вне городского шлейфа антропогенного воздушного загрязнения — т. е. с подветренной и с наветренной сторон внешних границ мегаполиса. Основываясь на методе баланса масс и учитывая преимущественное направление и скорость ветра, а также классификацию подстилающей поверхности, были получены оценки удельных потоков измеряемых газовых составляющих в центральной части Санкт-Петербурга [1]. В частности, средняя величина антропогенного потока CO весной 2019 года составила 251 ± 104 тонн/км² в год, что в ~1.6 раза ниже данных официальной инвентаризации городских загрязнений за 2019 год (~400 тонн/км², [2]).

Настоящая работа направлена на определение интегральной эмиссии CO на основе данных FTIR-измерений полевых кампаний EMME-2019 и EMME-2020 и расчётов дисперсионной модели HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectories [3]).

1. Измерительная аппаратура, данные наблюдений и численного моделирования

Дистанционные измерения ОС CO выполнялись портативным инфракрасным (ИК) Фурье-спектрометром (FTIR) Bruker EM27/SUN [4, 5]—двумя приборами в кампании 2019 года и одним прибором в кампании 2020 года. Для проведения полевых измерений приборы доставлялись автомобилями к заранее выбранным точкам наблюдений. Обработка FTIR-измерений—определение общего содержания CO в вертикальном столбце атмосферы—осуществлялась с помощью специализированного программного инструмента PROFFAST, стандартно используемого на измерительной сети COCCON: Collaborative Carbon Column Observing Network [5, 6]. Всего за время проведения полевых кампаний 2019 и 2020 дистанционные FTIR-измерения ОС CO выполнялись в 19 различных точках, расположенных преимущественно на периферии города (см. рис. 1а).

Численное моделирование распространения загрязнений выполнялось на основе модели HY-SPLIT в оффлайн версии, сконфигурированной для территории Санкт-Петербурга и его окрестностей по аналогии с [7]. С помощью дисперсионного блока модели проводился расчет 3-мерного поля антропогенного воздушного загрязнения. Размер ячейки пространственного домена составляет $0.05^\circ \times 0.05^\circ$ широты и долготы; вертикальная сетка модели задана 10 уровнями на высотах от поверхности до 1500 метров. За основу априорной информации о пространственном распределении источников городской эмиссии CO были взяты данные глобальной инвентаризации эмиссий ODIAC: Open-source Data Inventory for Anthropogenic CO₂ [8]. Поскольку антропогенная эмиссия CO, как и эмиссия CO₂ в существенной мере обусловлены сжиганием топлива (транспорт, теплоэнергетика), пространственные распределения источников этих газовых примесей предполагались схожими (см. рис. 1б). Значения интенсивностей эмиссии в ячейках, характеризующие в оригинальных данных ODIAC эмиссию CO₂, были масштабированы таким образом, чтобы суммарная годовая эмиссия составляла ~400 тыс. тонн (официальная инвентаризация эмиссии CO с территории Санкт-Петербурга в 2019 году [2]).

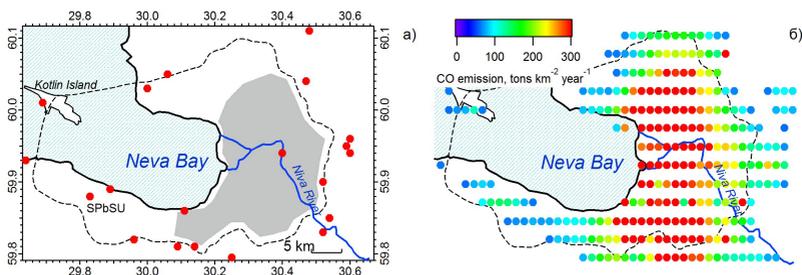


Рис. 1. а) Точки выполнения дистанционных FTIR-измерений вокруг Санкт-Петербурга в период проведения полевых кампаний ЕММЕ. б) Априорное пространственное распределение антропогенной эмиссии CO с территории Санкт-Петербурга, сформированное на основе данных глобальной инвентаризации об антропогенных эмиссиях CO₂ (ODIAC).

2. Сопоставление результатов измерений с данными моделирования

Пример результатов FTIR-измерений и модельных расчётов вариаций ОС CO с наветренной и подветренной стороны города 3 апреля 2019 года представлен на рис. 2б. Минимальное содержание ($\sim 2.3 \times 10^{18}$ молекул см⁻²) было зарегистрировано в этот день в наветренной точке, к юго-западу от города, а максимальное—в подветренной точке, к северо-востоку от города (до $\sim 2.4 \times 10^{18}$ молекул см⁻²). Такой результат согласуется с пространственным распределением ОС CO, обусловленным преобладающим юго-западным ветром, формирующим смещение интегрального шлейфа городского воздушного загрязнения в северо-восточном направлении (см. рис. 2а). Данные модельных расчётов систематически превышают результаты измерений в подветренной точке на оси шлейфа, что указывает на переоценку уровня эмиссии CO, заданного

В МОДЕЛИ.

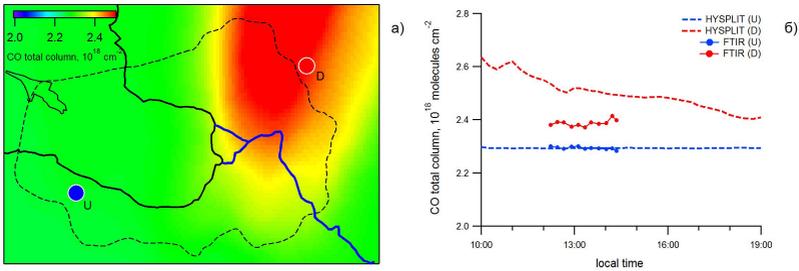


Рис. 2. Сравнение данных FTIR-измерений ОС СО в окрестностях Санкт-Петербурга с результатами численного моделирования 3 апреля 2019 года: а) Пространственное распределение по расчётам модели HYSPLIT на срок 13:00. б) FTIR-измерения и расчёты HYSPLIT с наветренной (U) и подветренной (D) стороны от города, с 10:00 до 19:00 местного времени.

3. Оценка интегральной эмиссии СО с территории Санкт-Петербурга

Сопоставление разностей между результатами FTIR-измерений интегрального содержания СО в подветренной и наветренной точках полевых экспериментов кампаний ЕММЕ-2019 и ЕММЕ-2020 (ΔCO) с данными дисперсионного моделирования HYSPLIT представлено на рис. 3. Рассчитанные ΔCO систематически превышают результаты измерений, что соответствует завышенной величине априорной эмиссии СО. Линейная регрессия модельных расчётов позволяет приблизить их к данным измерений во всех экспериментах, за исключением одного дня, 27 апреля 2020 года. Выбранное таким образом масштабирование эмиссий соответствует величине интегрального антропогенного выброса СО с территории Санкт-Петербурга в количестве 218 ± 37 тыс. тонн в год (неопределенность оценки эмиссии обусловлена неопределенностью коэффициента масштабирования, 0.545 ± 0.092). Это примерно вдвое меньше официальной оценки, опубликованной в 2020 году по данным инвентаризации за 2019 год (402 тыс. тонн [3]), что также соответствует результатам, полученным ранее при определении среднего удельного антропогенного потока СО с территории Санкт-Петербурга [7]. В то же время, полученная здесь величина несколько выше официальных оценок за 2019 и 2020 годы, опубликованных в более поздних отчётах городской инвентаризации (136 тыс. тонн и 132 тыс. тонн, соответственно [9]).

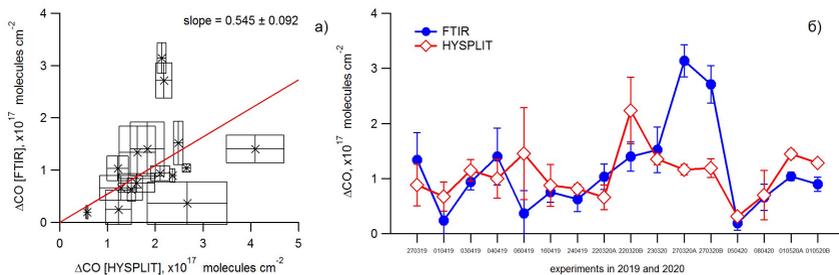


Рис. 3. а) Сопоставление значений ΔCO (разность между содержанием СО в подветренной и наветренной точках), полученных для каждого из дней наблюдений по данным FTIR-измерений и результатам расчётов HYSPLIT. б) Вариация измеренного значения ΔCO от эксперимента к эксперименту, в сравнении с данными моделирования, приведенными к результатам измерений (используя коэффициент линейной регрессии на графике слева).

Очевидно, прямая экстраполяция оценок, полученных нами по результатам измерений в отдельные периоды времени, на весь год, может приводить к систематической ошибке.

Наибольший вклад в эту ошибку вносит пренебрежение суточной вариацией городской эмиссии CO, обусловленной цикличностью в интенсивности загрязнения воздуха выбросами автотранспорта. Поскольку используемые в настоящей работе полевые FTIR-измерения выполнялись в дневное время, полученная на их основе оценка годового выброса CO не учитывает ночного снижения эмиссии автотранспортом, что приводит к её систематическому завышению. В отсутствие объективных данных о доли автотранспорта в суммарной городской эмиссии, и о распределении интенсивности транспортной эмиссии по времени суток, определить данную ошибку количественно не представляется возможным. В этой связи полученное нами значение годового выброса CO (218±37 тыс. тонн) следует рассматривать как «оценку сверху».

Исследования проведены с использованием оборудования ресурсного центра Научного парка СПбГУ «Геомодель» за счёт гранта Российского научного фонда (проект № 23-27-00019).

Литература

1. Makarova, M. V., Alberti, C., Ionov, D. V., Hase, F., Foka, S. C., Blumenstock, T., Warneke, T., Virolainen, Y., Kostsov, V., Frey, M., Poberovskii, A. V., Timofeyev, Y. M., Paramonova, N., Volkova, K. A., Zaitsev, N. A., Biryukov, E. Y., Osipov, S. I., Makarov, B. K., Polyakov, A. V., Ivakhov, V. M., Imhasin, H. Kh., and Mikhailov, E. F. Emission Monitoring Mobile Experiment (EMME): an overview and first results of the St. Petersburg megacity campaign 2019 // *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 1047–1073, <https://doi.org/10.5194/amt-14-1047-2021>, 2021.
2. Беляев Д. С., Серебрицкий И. А. Доклад об экологической ситуации в Санкт-Петербурге в 2019 году // СПб.: ООО «Типография Глори», 180 с, 2020.
3. Draxler, R. R. and Hess, G. D. An overview of the HYSPLIT_4 modelling system for trajectories, dispersion, and deposition // *Aust. Meteor. Mag.*, 47, 295–308, 1998.
4. Gisi, M., Hase, F., Dohe, S., Blumenstock, T., Simon, A., and Keens, A. XCO₂-measurements with a tabletop FTS using solar absorption spectroscopy // *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2969–2980, <https://doi.org/10.5194/amt-5-2969-2012>, 2012.
5. Frey, M., Sha, M. K., Hase, F., Kiel, M., Blumenstock, T., Harig, R., Surawicz, G., Deutscher, N. M., Shio-mi, K., Franklin, J. E., Bösch, H., Chen, J., Grutter, M., Ohyama, H., Sun, Y., Butz, A., Mengistu Tsidu, G., Ene, D., Wunch, D., Cao, Z., Garcia, O., Ramonet, M., Vogel, F., and Orphal, J. Building the Collaborative Carbon Column Observing Network (COCCON): long-term stability and ensemble performance of the EM27/SUN Fourier transform spectrometer // *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 1513–1530, <https://doi.org/10.5194/amt-12-1513-2019>, 2019.
6. COCCON (COllaborative Carbon Column Observing Network): <http://www.imk-asf.kit.edu/english/COCCON.php>
7. Ionov, D. V., Makarova, M. V., Hase, F., Foka, S. C., Kostsov, V., Alberti, C., Blumenstock, T., Warneke, T. The CO₂ integral emission by the megacity of St. Petersburg as quantified from ground-based FTIR measurements combined with dispersion modelling // *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 10939–10963, <https://doi.org/10.5194/acp-21-10939-2021>, 2021.
8. Oda, T. and Maksyutov, S. A very high-resolution (1 km × 1 km) global fossil fuel CO₂ emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights // *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 543–556, <https://doi.org/10.5194/acp-11-543-2011>, 2011.
9. Беляев Д. С., Серебрицкий И. А. Доклад об экологической ситуации в Санкт-Петербурге в 2020 году // Ижевск: ООО «ПРИНТ», 253 с, 2021.

Assessment of carbon monoxide (CO) integral emission from the territory of St. Petersburg based on ground-based FTIR measurements and dispersion modeling

Ionov D. V.¹, Makarova M. V.¹, Kostsov V. S.¹, Foka S. C.¹, Makarov B. K.²

¹ St. Petersburg State University, Faculty of Physics

² Federal state unitary enterprise “Alexandrov Research Institute of Technology”

e-mail: d.ionov@spbu.ru

Abstract

During the international measuring campaign EMME-2019 and –2020 aimed at experimental determination of anthropogenic greenhouse gas emissions from the territory of St. Petersburg, ground-based spectroscopic measurements of total carbon monoxide (CO) in the vertical column (TC) of the atmosphere were also performed. The anthropogenic contribution to the total urban air pollution by carbon monoxide was estimated by the value of the experimentally observed difference between the CO TC at downwind and upwind observation points (ΔTC). Simulation of the spatial and temporal evolution of the urban pollution plume was performed using the HYSPLIT model. By means of coupling the HYSPLIT modeling results with the FTIR field measurement data in spring 2019 and 2020, an experimental estimate of the total atmospheric CO emission of 220 ± 40 kilotons per year was obtained.

Keywords: anthropogenic emissions, carbon monoxide, FTIR, HYSPLIT