

О.А. Тарасова, К.А.М. Бренникмайер*, Н.Ф. Еланский**,
Г.И. Кузнецов, С.С. Ассонов*

Исследование изменчивости концентрации монооксида углерода над Россией по данным экспедиций TROICA

Московский государственный университет, Россия

** Институт химии Макса-Планка, г. Майнц, Германия*

*** Институт физики атмосферы РАН, г. Москва, Россия*

Поступила в редакцию 17.01.2005 г.

Представлены результаты предварительного анализа пространственного распределения и временной изменчивости концентрации СО над континентальными районами России, полученные на основании измерений в экспедициях TROICA вдоль Транссибирской железной дороги от Москвы до Хабаровска. Показано, что в весенний период положительные аномалии концентрации связаны в основном с антропогенной деятельностью, а в летний — с горением биомассы. Выявленные особенности внутригодовой изменчивости концентрации СО хорошо согласуются с наблюдениями на фоновых станциях. Основной особенностью пространственного распределения монооксида углерода над континентом является рост характерной концентрации СО на восток летом и на запад весной.

Введение

Монооксид углерода (СО) является достаточно реактивным газом и играет в химии атмосферы важную роль. Источниками СО являются как антропогенная деятельность, так и горение биомассы. Важность этого соединения определяется в первую очередь той ролью, которую СО играет в пространственном распределении и концентрациях атмосферных окислителей, таких как озон (O_3), гидропероксирадикал (HO_2) и гидроксил-радикал (ОН). В тропосфере реакция СО с гидроксил-радикалом обеспечивает 90–95% стока СО [6] и до 75% стока ОН [7]. В настоящее время обсуждается, что СО приводит к рециклингу ОН, а также к уменьшению времени жизни ОН в тропосфере, не меняя при этом саму концентрацию ОН [5]. Поскольку СО является основным партнером в реакциях с ОН и его концентрация в атмосфере является важным показателем состояния климатической системы, СО является предметом долговременного мониторинга.

Измерения СО на глобальной сети станций NOAA показали, что эмиссии СО высокоразвитых индустриальных районов и развивающихся стран приводят к изменению глобального фона монооксида углерода в тропосфере. Вместе с тем сами регионы антропогенных эмиссий в средних широтах подвергаются влиянию горения биомассы в тропиках и бореальных лесах. В глобальном масштабе наблюдается уменьшение концентрации СО на 0,5 ppb в год за период с 1991 по 2001 г. [8], в то время как модельные оценки прогнозируют рост средней глобальной концентрации СО до 190 ppb к 2100 г. [12].

Следует отметить проблему временного дрефта содержания СО в газовых стандартах [7, 8] — по этой причине обсуждаемые долговременные вариации

концентрации СО на уровне 0,5 ppb в год [8] могут нести существенную неточность. В данной статье обсуждаются большие вариации СО, и надежность данных на этом уровне не вызывает сомнений.

Значительное время жизни СО в атмосфере (~ 2 мес) приводит к тому, что влияние отдельных источников эмиссий, например лесных пожаров, может определять качество воздуха в огромном регионе [11, 13]. До настоящего времени наблюдаются существенные разногласия в оценке вклада как естественных, так и антропогенных источников СО в его глобальный баланс. Например, оценки эмиссий монооксида углерода за счет горения лесов в зоне выше 30° с.ш. составляют у разных авторов от 50 до 121 Тг СО в год [4]. Огромная неопределенность существует и в оценке вклада лесных пожаров на огромных территориях Сибири. Как видно, вопрос о глобальном и региональном балансе СО в атмосфере Земли до сих пор не разрешен.

С целью улучшения понимания вклада антропогенных и естественных процессов в баланс монооксида углерода над территорией России Институтом физики атмосферы РАН совместно с Институтом химии Макса-Планка (Германия) был организован ряд экспедиций с использованием специально оборудованного экологического вагона-лаборатории (экспедиции TROICA). Предварительный анализ особенностей пространственного распределения и сезонной изменчивости концентрации монооксида углерода на основании данных 5 экспедиций TROICA представлен в данной статье.

1. Измерения

Эксперименты TROICA (Trans-Siberian Observations Into the Chemistry of the Atmosphere)

проводятся с 1995 г. с целью изучения особенностей поведения химически активных и парниковых газов в нижней атмосфере над континентальными районами, где практически отсутствуют станции мониторинга атмосферы и где сосредоточены их естественные и антропогенные источники. Эксперименты проводятся в специально оборудованном вагоне-лаборатории, перемещающемся в составе пассажирского поезда вдоль Транссибирской железнодорожной магистрали. Подробное описание целей и задач эксперимента, состава участников и используемой аппаратуры представлено в [2, 9, 14]. Для on-line измерения концентрации монооксида углерода CO в этих экспедициях применялся газоанализатор типа TE48S производства компании «Thermo Environmental Instruments Inc.» (США). Использовались аттестованные калибровочные смеси, уровень нуля контролировался с использованием катализатора SOFNOCAT (Molecular Products; UK), эффективно разрушающего CO. Это исключает появление артефактов в измеренных сигналах CO.

В ряде работ проводится исследование влияния отдельных процессов на изменчивость газового состава приземного слоя атмосферы для отдельных экспедиций [1, 3], проведено исследование влияния самого поезда [10] на измеряемый состав газов.

За период с 1995 по 2004 г. было проведено 8 российско-германских экспериментов TROICA. Маршруты экспедиций, а также сроки их проведения представлены в таблице. В работе использованы данные измерений в экспедициях 2, 3, 5, 7 и 8.

Маршруты и сроки наблюдений экспериментов TROICA

Эксперимент	Время	Путь
TROICA-1	17–24/11/95 26/11–2/12/95	Н. Новгород–Хабаровск Хабаровск–Москва
TROICA-2	26/07–2/08/96 6–13/08/96	Н. Новгород–Владивосток Владивосток–Москва
TROICA-3	1–7/04/97 8–14/04/97	Н. Новгород–Хабаровск Хабаровск–Москва
TROICA-4	17–26/02/98 1–7/03/98	Н. Новгород–Хабаровск Хабаровск–Н. Новгород
TROICA-5	26/06–2/07/99 3–7/07/99 11–13/07/99	Н. Новгород–Хабаровск Хабаровск–Новосибирск Новосибирск–Москва
TROICA-6	6–9/04/2000 23–27/05/2000 23–25/06/2000	Мурманск–Кисловодск Кисловодск–Мурманск Мурманск–Москва
TROICA-7	27/06–3/07/01 4–10/07/01	Москва–Хабаровск Хабаровск–Москва
TROICA-8	19–25/03/04 26/03–1/04/04	Москва–Хабаровск Хабаровск–Москва

Для исследования влияния геофизических условий и уровня антропогенной нагрузки на пространственное распределение и временные вариации CO вся трасса экспедиции разделена на 4 зоны, отличающиеся своими географическими и метеорологическими условиями и уровнем антропогенной нагрузки:

1) Москва – Екатеринбург (Восточно-Европейская равнина). Это район с наибольшей плотностью

расположения антропогенных источников загрязнения и, кроме того, подверженный влиянию трансграничного переноса загрязняющих примесей.

2) Екатеринбург – Новосибирск (Западно-Сибирская равнина). Обширная низменность с преимущественно лесными массивами и болотами. Роль антропогенных источников в балансе примесей значительно меньше.

3) Новосибирск – Иркутск (южная часть Среднесибирского плоскогорья). Это крупный промышленный район. В холодное полугодие здесь господствует обширный сибирский антициклон, поэтому из-за практически постоянной инверсии происходит накопление некоторых примесей в приземном слое.

4) Иркутск – Хабаровск (Забайкалье, горные районы и предгорья). Железная дорога проходит здесь в основном по горным долинам, уровень загрязненности которых определяется наличием и интенсивностью антропогенных источников, в частности лесных пожаров и затоков воздуха из Китая и Японии.

2. Результаты

2.1. Распределение концентрации CO в различных регионах

На рис. 1 представлено распределение концентрации CO в различных экспедициях. Поскольку измерения в разных экспедициях проводились в разное время, но в основном в весенне-летний период, то наиболее ярко в распределении CO можно выделить влияние лесных и торфяных пожаров в летние месяцы (экспедиции 2, 5 и 7) и мощные антропогенные источники весной (экспедиции 3 и 8). Следует заметить, что наибольшее влияние лесные пожары оказывают в Забайкалье (зона 4), торфяные пожары – в Подмосковье, а мощные антропогенные источники присутствуют во всех зонах и в основном связаны с крупными городами и промышленными зонами. Особенностью антропогенных источников является их одинаковая локализация во всех экспедициях, в то время как лесные и торфяные пожары наблюдаются в разных местах одного и того же региона и зависят в большой степени от погодных условий. Сравнивая, например, лето 1999 г. (TROICA-5) и 2001 г. (TROICA-7) можно заметить, что первый из указанных годов был более сухим и жарким и сопровождался большим числом лесных пожаров по сравнению с 2001 г.

В районе лесных пожаров максимальные регистрируемые концентрации могут достигать уровня 3500 ppb для всех экспедиций. В большинстве случаев пиковые концентрации по пространству совпадают с районами городов (населенных пунктов), поэтому разделить вклад естественного горения и антропогенной деятельности в этих регионах достаточно сложно. Максимальные концентрации, зарегистрированные в крупных городах в отсутствие естественного горения, также составляют величину, близкую к 3000 ppb.

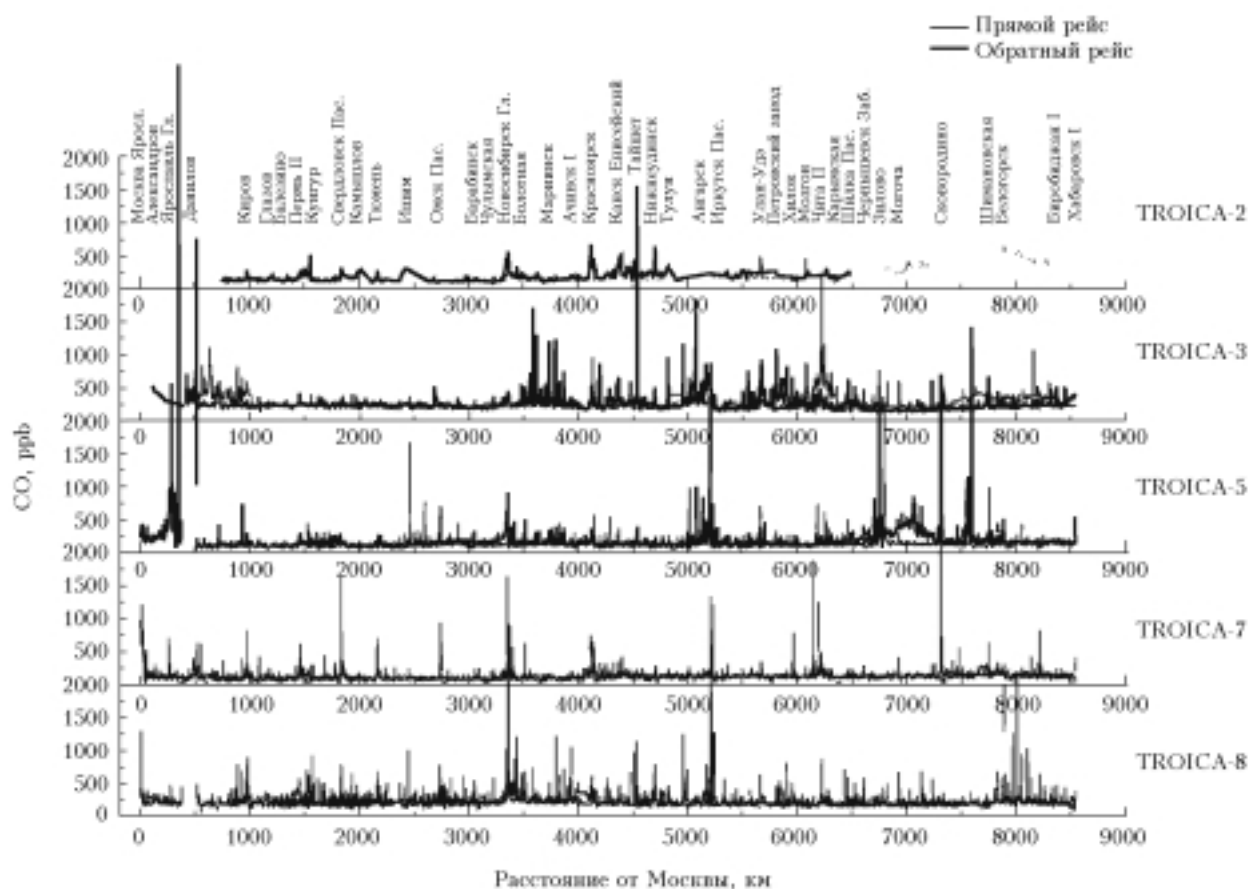


Рис. 1. Пространственное распределение концентрации монооксида углерода в экспедициях TROICA вдоль Транссибирской магистрали. Номер экспедиции указан справа

Наибольшее количество локальных пиков концентрации CO антропогенного происхождения наблюдается в Восточной и Западной Сибири (зоны 2 и 3). Самые высокие концентрации за все периоды измерений отмечались в районе торфяных пожаров в Подмоскowie летом 1999 г. (до 7 400 ppb), что демонстрирует особую роль низкотемпературного горения (торфяные пожары), эффективность которого в образовании CO существенно выше, чем высокотемпературного.

Отличительной особенностью «естественных эпизодов» является их протяженность. В частности, в районах, подверженных влиянию лесных пожаров, протяженность зон повышенных концентраций CO может достигать 1 000 км, в то время как повышения концентрации, связанные с антропогенной деятельностью, простираются от 5 (в случае слабых источников) до 100 км (шлейфы крупных городов при выносе по ветру вдоль железной дороги). Пространственная структура распределения CO наиболее легко интерпретируема весной, когда на однородное фоновое распределение накладываются узкие пространственные пики антропогенного происхождения. Такая структура поля CO подтверждается высокими (до 0,9) коэффициентами корреляции CO с окислами азота для некоторых зон, например в экспедиции TROICA-8.

2.2. Распределение уровней концентрации CO (персентайлей)

Для исследования особенностей изменчивости концентрации CO в каждой из географических зон было построено распределение повторяемости различных концентраций (персентайлей) для каждой из рассматриваемых зон (рис. 2).

Как видно на рис. 2, в экспедициях TROICA-3 и TROICA-8 практически не наблюдается низких концентраций CO. Число измеренных концентраций ниже 150 ppb составляет соответственно 0,5 и 5% для Европейской территории России, 0 и 4% для Западной Сибири, менее 0,5% для Восточной Сибири в обеих экспедициях и менее 4% на Дальнем Востоке. В то же время для летней экспедиции TROICA-7 число низких значений составляет для соответствующих зон 80–90, 90–95, 75–80 и около 70%.

На Европейской территории России число высоких концентраций (более 500 ppb) не превышает 4% для всех экспедиций за исключением прямого рейса TROICA-3 (около 7%). Большое количество высоких значений концентраций в этой экспедиции может быть связано с использованием дизель-генератора на протяжении 480-км трассы, эти данные не исключены из дальнейших построений.

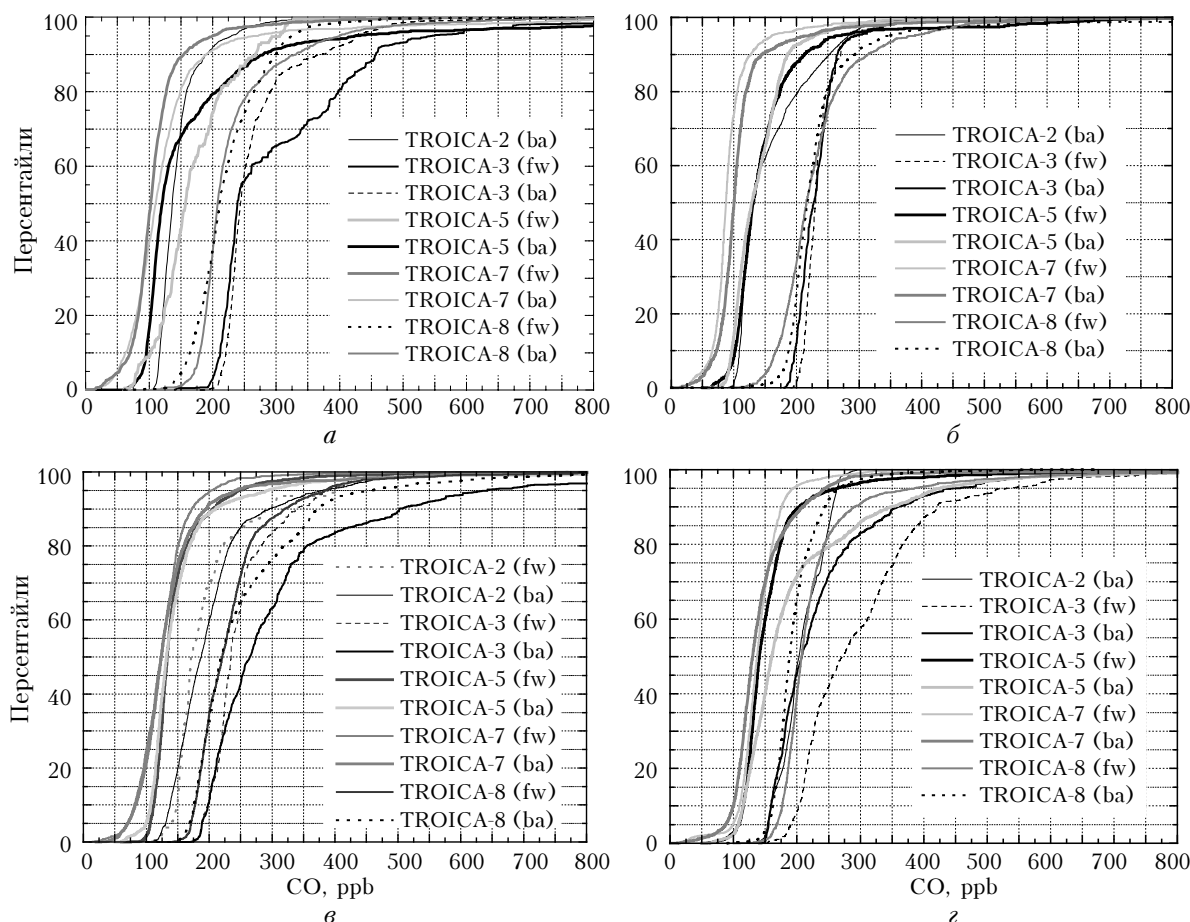


Рис. 2. Распределение уровней концентрации CO для различных зон экспедиций: *a* – Европейская часть территории России и Урал; *б* – Западная Сибирь; *в* – Восточная Сибирь; *г* – Забайкалье и Дальний Восток. (fw) – прямые рейсы, т.е. на Восток; (ba) – обратные, т.е. на Запад

В Западной Сибири число высоких значений концентрации CO не превышает 3% для всех экспедиций. В Восточной Сибири число высоких значений не превышает 4% для всех экспедиций за исключением обратного рейса экспедиции TROICA-3 (около 11% значений). В районе Восточной Сибири отмечается рост концентрации CO, сопровождающийся ростом концентрации окислов азота на протяжении почти 650 км. Причина такого роста не ясна.

На Дальнем Востоке для той же экспедиции TROICA-3 наблюдается систематический сдвиг в сторону повышенных значений, причина которого также до конца не ясна. Поскольку в обратном рейсе экспедиции TROICA-3 вагон находился в хвосте поезда, то повышенные значения CO могут быть связаны с угольным отоплением состава на этом участке трассы.

Интересно отметить, что хотя экспедиции TROICA-5 и TROICA-7 проводились с одно и то же время года (с разницей 2 года), значения в первой из них систематически сдвинуты в сторону более высоких значений в Западной Сибири и в меньшей степени в остальных регионах. Это, вероятно, связано с межгодовыми особенностями, определяемыми комплексом факторов, требующих дальнейшего анализа.

2.3. Внутригодовые вариации концентрации CO

В качестве репрезентативных (характерных) концентраций для каждой зоны и каждой экспедиции были выбраны концентрации, соответствующие максимуму функции распределения для соответствующих условий. На рис. 3 представлены характерные значения концентрации CO, позволяющие оценить как внутригодовые вариации для теплого периода года, так и пространственные градиенты концентрации между зонами.

В экспериментах TROICA минимальные характерные концентрации CO наблюдаются в летних экспедициях (июнь–июль). Их величина варьируется от 90–120 до 120–140 ppb в различных зонах для разных экспедиций. Этот разброс объясняется различием в условиях наблюдения и короткосрочностью самих измерений. Самые высокие концентрации в этот период наблюдаются на Дальнем Востоке, что связано со значительным влиянием лесных пожаров в регионе. Однако несмотря на тот факт что TROICA-5 и TROICA-7 проводились практически в одни и те же сроки с интервалом 2 года, для этих экспедиций наблюдаются немного различные характерные концентрации. Наибольший раз-

брос значений наблюдается в Западной Сибири (около 30 ppb), что, вероятно, связано с различными метеорологическими условиями в 1999 и 2001 гг.

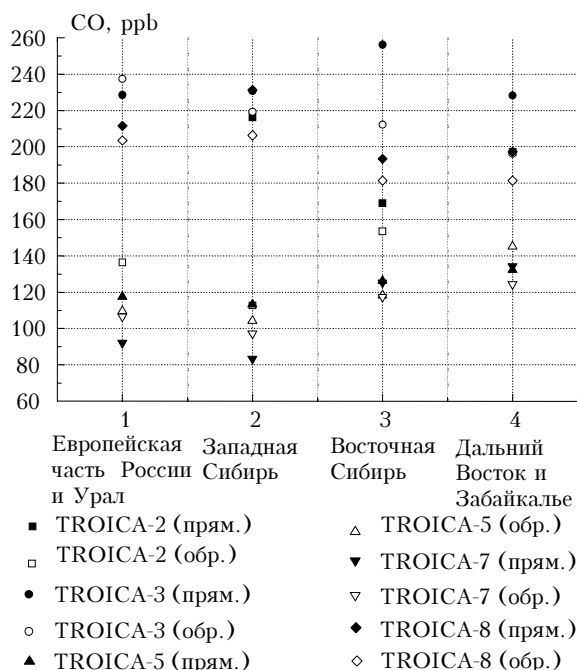


Рис. 3. Распределение характерных концентраций CO в различных экспедициях в выбранных пространственных зонах

Максимальные характерные концентрации наблюдаются в начале апреля (TROICA-3). Их величина составляет 250–260 ppb для различных зон.

Таким образом, общая тенденция изменения концентрации CO в теплый сезон с более высокими весенними и пониженными летними значениями похожа на наблюдаемую на большинстве мировых фоновых станций [7]. Сравнение, например, с данными ст. Шпицберген показывает, что абсолютные значения концентраций превышают сезонные экстремумы удаленных районов более чем на 20 ppb. Следует отметить, что проведенный анализ внутригодовой изменчивости должен рассматриваться как качественный. Ограниченный по времени набор данных не позволяет сделать строгого заключения о форме сезонного хода, так как измерения проводились только весной и летом и в разные годы. На сезонную изменчивость в таком случае может наложиться долговременная изменчивость концентрации.

2.4. Пространственные градиенты концентрации CO

Рис. 3 ярко демонстрирует пространственные градиенты концентрации CO в различные периоды года. В летние месяцы (июнь–июль) максимальные концентрации регистрируются на Дальнем Востоке, в то же время минимальные значения регистрируются в Западной Сибири. Такая пространственная структура, с одной стороны, может быть связана с наличием мощных естественных источников CO

летом на Дальнем Востоке (лесные пожары) и на Европейской территории России (торфяные пожары), с другой стороны – с особенностями локальной циркуляции в отдельных регионах.

В апреле максимальная характерная концентрация CO наблюдается над Восточной Сибирью. В этом же регионе характерная концентрация минимальна по сравнению с остальными зонами в марте. В этот месяц максимальная характерная концентрация наблюдается над Западной Сибирью. Максимальные значения концентрации CO в холодный период над Сибирью, по всей видимости, связаны с высокой плотностью антропогенных источников в этих регионах (наиболее сильное влияние отопительного сезона).

В общем можно заключить, что в летние месяцы наблюдается рост характерной концентрации CO на восток, а весной – на запад.

Заключение

Проведенные исследования позволили сделать первые качественные оценки вкладов антропогенных и естественных факторов в наблюдаемую изменчивость концентрации CO. Показано, что в весенний период положительные аномалии концентрации CO связаны в основном с антропогенной деятельностью, а в летний – с горением биомассы. Выявленные особенности сезонных вариаций (в весенне-летний период) хорошо укладываются в глобальную картину изменчивости CO.

Изложенный предварительный анализ большого объема уникальных измерений экспедиций TROICA закладывает основы для дальнейшего тщательного исследования особенностей режима концентрации CO над континентом, определения механизмов короткопериодной изменчивости, оценки влияния индивидуальных факторов, таких как лесные пожары, городские условия, температурные инверсии и ряд других. В последующих работах этим вопросам будет уделено достаточно внимания.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ № 03-05-64712, INTAS 01-0016 и INTAS Young Scientist Fellowship (03-55-662).

1. Bergamaschi P., Brenninkmeijer C.A.M., Halm M., Rockmann T., Schaffe D., Crutzen P.J., Elansky N.F., Belikov I.B., Trivett N.B.A., Worthy D.E.J. Isotope analysis based on source identification for atmospheric CH₄ and CO sampled across Russia using the Trans-Siberian railroad // J. Geophys. Res. D. 1998. V. 103. N 7. P. 8227–8235.
2. Crutzen P.J., Elansky N.F., Halm M., Golitsyn G.S., Brenninkmeijer C.A.M., Scharffe D., Belikov I.B., Maiss M., Bergamaschi P., Rockmann T., Grisenko A.M., Sevostyanov V.V. Trace gas measurements between Moscow and Vladivostok using the Trans-Siberian railroad // J. Atmos. Chem. 1998. V. 29. N 2. P. 179–194.
3. Elansky N.F., Markova T.A., Belikov I.B., Oberlander E.A. Transcontinental Observations of Surface Ozone Concentrations in the TROICA Experiments: 1. Space and Time Variability // Izv. Atmos. and Ocean. Phys. 2001. V. 37. Suppl. 1. P. S24–S38.

4. Kasischke E.S., Bruhwiler L.P. Emissions of carbon dioxide, carbon monoxide, and methane from boreal forest fires in 1998 // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 1. P. 8146–8160.
5. Lelieveld J., Peters W., Dentener F.J., Krol M.C. Stability of tropospheric hydroxyl chemistry // *J. Geophys. Res. Atmos.* 2002. V. 107. N 23. P. 4715. doi:10.1029/2002JD002272.
6. Logan J.A., Prather M.J., Wofsy S.C., McElroy M.B. Tropospheric chemistry: A global perspective // *J. Geophys. Res.* 1981. V. 86. P. 7210–7254.
7. Novelli P.C., Masarie K.A., Lang P.M. Distributions and recent changes of carbon monoxide in the lower troposphere // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. N 15. P. 19,015–19,033.
8. Novelli P.C., Masarie K.A., Lang P.M., Hall B.D., Myers R.C., Elkins J.W. Reanalysis of tropospheric CO trends: Effects of the 1997–1998 wildfires // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 15. P. 4464. doi:10.1029/2002JD003031.
9. Oberlander E.A., Brenninkmeijer C.A.M., Crutzen P.J., Elansky N.F., Golitsyn G.S., Granberg I.G., Scharfje D.H., Hofman R., Belikov I.B., Paretzke H.G., van Velthoven P. Trace gas measurements along the Trans-Siberian railroad, the Troica 5 expedition // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 14. P. 4206. doi:10.1029/2001JD000953.
10. Panin L.V., Elansky N.F., Belikov I.B., Granberg I.G., Andronova A.V., Obvintsev Yu.I., Bogdanov V.M., Grisenko A.M., Mozgrin V.S. Estimation of reliability of the data on pollutant content measured in the atmospheric surface layer in the TROICA experiments // *Izv. Atmos. and Ocean. Phys.* 2001. V. 37. Suppl 1. P. S81–S91.
11. Tanimoto H., Kajii Y., Akimoto H., Minko N.P. The atmospheric impact of boreal forest fires in far eastern Siberia on the seasonal variation of carbon monoxide: Observations at Rishiri, a northern remote island in Japan // *Geophys. Res. Lett.* 2000. V. 27. N 24. P. 4073–4076.
12. Wang C., Prinn R.G. Impact of emissions, chemistry and climate on atmospheric carbon monoxide: 100-yr predictions from a global chemistry-climate model // *Chemosphere: Glob. Chem. Sci.* 1999. N 1. P. 73–81.
13. Wotava G., Trainer M. The influence of Canadian Forest Fires on Pollutant Concentrations in the United States // *Science.* 2000. V. 288. N 5464. P. 324–328.
14. Крутцен П.Й., Голицын Г.С., Еланский Н.Ф., Brenninkmeijer К.А.М., Шарффе Д., Беликов И.Б., Елохов А.С. Наблюдения малых примесей в атмосфере над территорией России с использованием железнодорожного вагона-лаборатории // *Докл. РАН.* 1996. Т. 350. № 6. С. 819–823.

O.A. Tarasova, C.A.M. Brenninkmeijer, N.F. Elansky, G.I. Kuznetsov, S.S. Assonov. **Investigation of carbon monoxide variability over Russia on the basis of TROICA expedition data.**

The paper presents the results of preliminary analysis of the spatial distribution and temporal variability of CO concentration over continental Russia obtained on the basis of measurements in TROICA expeditions along Trans-Siberian railroad from Moscow to Khabarovsk. It is shown that positive anomalies of CO concentration in spring are mainly associated with anthropogenic activity, while in summer they are connected to biomass burning. The found features of the intra-annual variability of the CO concentration are in a good agreement with the observations at background sites. The main feature of the spatial distribution of carbon monoxide over the continent is an increase of the concentration toward the East in summer and toward the West in spring.