

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 98-02-03031) и Миннауки РФ (рег. № 06-21).

1. Савухин И.В. Изв. АН СССР. Сер. ФАО, 1979, Т.15, № 12, С. 1271-1279.

ТГУ, г. Томск, leo@elefot.tsu.ru

*А.Л. ВЛАСЕНКО, А.Н. АНКИЛОВ, А.М. БАКЛАНОВ,
С.И. ЕРЕМЕНКО, С.Э. ПАЩЕНКО, А.С. КОЗЛОВ*

ДИНАМИКА КОНЦЕНТРАЦИИ И ДИСПЕРСНОГО СОСТАВА СУБМИКРОННЫХ ЧАСТИЦ В АТМОСФЕРЕ ПРИГОРОДА

Введение. Свойства атмосферного аэрозоля во многом определяются его микрофизическими характеристиками: концентрацией и дисперсным составом частиц. Информация об этих параметрах объясняет сложные атмосферные процессы - трансформация газовых примесей, образование облаков, изменение радиационного баланса Земли [1,5]. При этом, представляется важным изучение суточной и сезонной динамики характеристик аэрозоля. Особенный интерес сегодня вызывает субмикронная область частиц с размером менее 100 нм, поскольку до недавнего времени отсутствовали экспериментальные методы для их регистрации.

Изучение атмосферного аэрозоля ведется в мире уже сравнительно давно. Однако эти исследования по большей части достаточно ограничены как по длительности измерения так и по набору измеряемых параметров. Для получения полной картины суточной и сезонной динамики микрофизических параметров аэрозоля необходимы длительные мониторинговые наблюдения и многолетнее накопление данных. Поэтому целью данной работы являлся первичный сбор информации и выяснение причин суточной и сезонной динамики концентрации атмосферных частиц и дисперсного состава субмикронной фракции.

Методика измерения. Измерение полной концентрации и их дисперсного состава проводилось при помощи диффузионного спектрометра аэрозолей (ДСА), разработанного в Институте химической кинетики и горения СО РАН г.Новосибирска. Прибор позволяет измерять без дополнительного разбавления счетную концентрацию частиц в воздухе до 10^5 см^{-3} с погрешностью 10%. Работа прибора автоматизирована и контролируется компьютером.

Описанный ДСА оптимизирован для определения спектра размеров частиц диапазона 3-200 нм. Частицы вне этого диапазона регистрируются прибором, но оценка их диаметра может быть сделана только сверху или снизу. Искомый спектр является решением обратной задачи, полученный численным методом MSA [4]. Результат представляется в виде гистограммы с логарифмически равномерным шагом (10 шагов на декаду), перекрывающей диапазон от 3.2 до 200 нм. Таким образом первый столбик гистограммы соответствовал фракции с диаметрами в пределах 3.2 - 4.0 нм, последний - 160 - 200 нм. Для частиц < 3.2 и > 200 нм выделялись две специальных фракции с неопределенным размером. Частицы этих фракций включались в суммарную счетную концентрацию аэрозоля, но не использовались при расчете среднего и среднеобъемного диаметра частиц, которые рассчитывались по формулам:

$$D_1 = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M n_i d_i$$

$$D_3 = \sqrt[3]{\frac{1}{M} \sum_{i=1}^M n_i d_i^3}$$

где d_i - среднегеометрический диаметр i -й фракции. M - число поддиапазонов (в данном случае $M=18$). n_i - счетная концентрация частиц i -й фракции.

Таким образом, в результате одного измерения диффузионным спектрометром получали четыре характеристики: счетную концентрацию, средний и среднеобъемный диаметр частиц, спектр распределения по размерам.

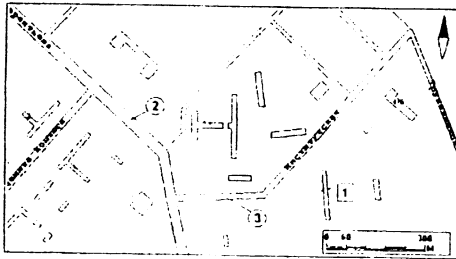


Рис.1. Схема расположения пункта отбора аэрозоля. 1-пункт отбора. 2,3 - наиболее оживленные дороги

Место измерений. Измерения характеристик субмикронного аэрозоля, представленные, проводились в период 1994-1998 годов. Стационарная точка наблюдения находилась на территории института, который расположен в нежилой зоне Академгородка, г.Новосибирска. На рис.1 представлена схема расположения пункта отбора, близлежащих строений и основных дорог. Интенсивность движения автотранспорта наиболее высока на дорогах, обозначенных на рисунке цифрами 2 и 3. Следует отметить, что вблизи точки отбора отсутствуют постоянные мощные источники аэрозоля. Влияние временных локальных источников (горение костров, близкорасположенный работающий двигатель) по возможности учитывалось и исключалось при анализе данных. В целом, точку наблюдения можно охарактеризовать как типичную урбанизированную.

Анализ экспериментальных данных.

В результате многолетних измерений были получены временные ряды данных по концентрации аэрозольных частиц и их дисперсному составу. Из них наблюдается значительная вариация для значений среди серий данных различных лет. Например, средняя за месяц концентрация частиц за январь 1995 года больше на 20% значения за 1996 год и более чем вдвое превосходит величину 1997 года (рис.2). Однако, четкой сезонной зависимости и систематической разницы между сериями различных лет выявить не удалось.

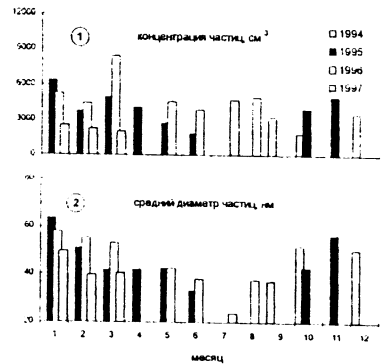


Рис.2. Среднемесячные значения полной концентрации аэрозоля (1) и среднего диаметра частиц субмикронной фракции (2).

Для каждого сезона года была построена частотная гистограмма повторяемости различных значений концентраций (рис.3). Форма обеих кривых может быть хорошо аппроксимирована логнормальным распределением, чему соответствует линейность данных в логарифмически-пробитной шкале (вставка рис.3). Для всех сезонов были вычислены средние и среднегеометрические значения концентрации (C и C_g), а также стандартные величины σ_g , характеризующие вариацию величины C_g (табл.). Различие средних значений невелико. При интерпретации данного факта следует учитывать сезонное различие метеорологических условий. Влияние мощного локального источника (автодорога) на измеряемую концентрацию, очевидно, зависит от направления скорости ветра и коэффициента турбулентной диффузии атмосферы. Однако, наблюдаются близкие значения концентрации частиц зимой и летом. Среднее за год значение вдвое превосходит величину, измеренную на фоновой станции (в районе северного леса Финляндии [6]) и на порядок меньше величины, измеренной в городе Лейпциге [7] (табл.). Данное сравнение показывает, что существенно влияние антропогенных источников в точке измерения, но гораздо меньше чем в центре крупного города.

В табл. С - среднееарифметическое значение концентрации, C_g - среднегеометрическое, σ_g - стандартная величина отклонения среднегеометрического, D- средний диаметр, D_3 -среднеобъемный диаметр. Для сравнения даны средние значения концентрации в районе северного леса (Финляндия) и атмосфере города Лейпцига (Германия).

Значения среднего диаметра субмикронной фракции атмосферного аэрозоля (рис.2) варьируются от года к году меньше чем его полная концентрация. По полученным результатам наблюдается сезонная зависимость данной характеристики аэрозоля. Максимальное значение которого достигается в летний период и минимальное в зимний. Заметной, систематической разницы между сериями данных различных лет не наблюдается. Это, по-видимому, объясняется сравнительным постоянством мощности локальных источников. В суточном ходе концентрации аэрозоля и среднеобъемного диаметра субмикронной фракции частиц наблюдается минимум, соответствующий 4-5 часам утра, и более широкий максимум, приходящийся на интервал 10-14 часов дня (рис.4).

Таблица

Средние характеристики атмосферных частиц, измеренные в атмосфере пригорода для различных сезонов.

Сезон	C	C_g	σ_g	D	D_3
лето	3700	2900	2	30	57
осень	3100	1700	2.3	48	63
весна	4200	2500	2.1	43	62
зима	4000	2100	2.5	51	71
год	3800	2100	2.3	43	60
фоновая станция [6]	1800				
город Лейпциг [7]	17500				

Для весеннего периода наблюдается более интенсивный максимум, а для осеннего периода характерно наличие нескольких пиков концентрации в вечернее время.

Суточный ход концентрации субмикронного аэрозоля обусловлен наличием двух основных источников. Первый источник (естественный) это солнечная радиация, которая максимальна днем и способна инициировать фотохимические процессы, приво-

дыщие к образованию частиц [5]. Поскольку интенсивность солнечной радиации больше летом чем зимой примерно в пять раз, следовало ожидать более интенсивного дневного максимума концентрации летом. В действительности этого не наблюдается. При этом следует учесть увеличение коэффициента турбулентной диффузии в приземном слое летом, которое приводит к выносу аэрозоля в вышележащие слои атмосферы а также сток мелких частиц на крупные. Более мощным источником является автотранспорт, интенсивность которого максимальна днем и минимальна в период 4-5 часов.

Наблюдается хорошая корреляция между суточным ходом счетной концентрации частиц и интенсивностью движения автомобилей на близлежащих дорогах. Количественно выявить вклад каждого источника на основе представленных интегральных характеристик нельзя. Для решения этой задачи требуется рассмотреть суточную динамику спектра распределения частиц, чтобы попытаться различить частицы различных источников по их размерам, а также учесть коагуляцию.

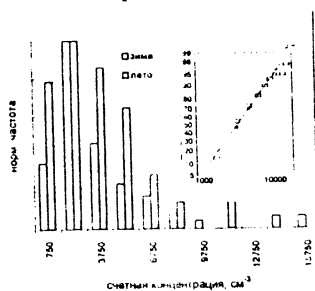


Рис.3. Нормированная частотная диаграмма повторяемости различных значений счетной концентрации атмосферного аэрозоля для зимнего и летнего сезонов. Во вставке - логарифмически вероятностная диаграмма.

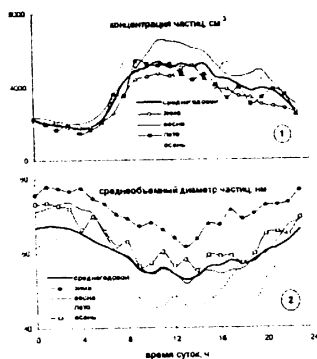


Рис.4. Суточный ход полной концентрации аэрозоля и среднеобъемного диаметра субмикронной фракции для различных сезонов года, который был получен путем усреднения данных за соответствующие периоды измерений.

Наблюдаемый минимум в дневное время суточного хода среднеобъемного диаметра субмикронной фракции частиц для различных сезонов года, который соответствует максимуму интенсивности упомянутых ранее источников, производящих частицы нанометрового диапазона. В вечернее время происходит укрупнение частиц за счет коагуляции и рост среднеобъемного диаметра. Максимум наблюдается в период 4-5 часов и совпадает с минимумом хода полной концентрации аэрозоля. В отличие от суточного хода полной концентрации ход среднеобъемного диаметра гораздо менее интенсивен, т.е. в первом случае максимум в три раза больше минимума, а во втором лишь в полтора раза. Очевидно, это объясняется тем, что большое количество малых частиц дает больший вклад в счетную концентрацию чем при расчете среднеобъемного размера.

В годовом ходе величины удельного объема аэрозоля (рис.5), рассчитанного в предположении сферичности частиц по соотношению:

$$V_{\Sigma, \lambda} = \frac{\pi}{6} D_{\Sigma, \lambda}^3 N.$$

где, D_3 - среднеобъемный диаметр частиц, N - счетная концентрация, наблюдается максимум данной характеристики в зимнее время и минимум в летнее. Это связано, прежде всего, с различием среднего размера аэрозоля D_3 , поскольку счетная концентрация для разных сезонов практически не отличается.

Возможны две причины, по которым удельный объем атмосферного аэрозоля субмикронного диапазона больше зимой. Во-первых, летом в воздухе больше мелких частиц размером 3-10 нм, которые являются продуктами фотохимической трансформации газов-предшественников.

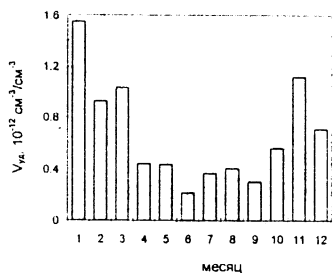


Рис.5. Годовой ход удельного объема субмикронного аэрозоля.

Причем капли, имеют большую поверхность, что приводит к активному поглощению паров органических веществ выхлопа поверхностью капель. После испарения воды, частицы имеют размер больший, чем первичные. Данное объяснение говорит в пользу образования более крупного аэрозоля зимой по сравнению с летом, что и наблюдается. Другими авторами также показано увеличение размеров субмикронных частиц в зимний период в регионе на основе многолетних наблюдений аэрозольного светорассеяния [2,3,8].

Выводы. В результате многолетних мониторинговых наблюдений получены данные полной счетной концентрации аэрозольных частиц и дисперсного состава субмикронной фракции в атмосфере пригорода. Показано, что существует четкий суточный ход концентрации и размеров аэрозоля, который главным образом обусловлен наличием мощного локального источника - автотранспорта. Обнаружен годовой ход удельного объема аэрозоля субмикронной фракции с максимумом в зимнее время.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант 97-0564807).

1. Charlson R.J., Lagner J., Rodhe H. et al. // Tellus. 1991. N 43. P. 152-163.
2. Панченко М.В. и Терпугова С.А. // Оптика атмосферы и океана. 1994. Т.7. N 8. С. 1033-1044.
3. Куценюгий П.К., Буфетов Н.С., Киров Е.И., Шуцкий С.И. // Оптика атмосферы и океана. 1995. Т.8. N 9. С. 1355-1365.
4. Еременко С.И. // Диффузионная батарея при мониторинге атмосферы: методика оценки погрешности данных. // Оптика атмосферы и океана. 2000. Т.13, N. 2, С. 204-206.
5. Pandis S.N., Wexler A.S., Seinfeld J.H. // J. Phys. Chem. 1995. N 99. P. 9646-9659.
6. I. Koponen, J. Makela, P. Aalto, M. Kulmala // J. Aerosol Sci. 1999. Vol.30. Suppl.1. p. S245-246.
7. V. Wehmer, A. Wiedensholer // J. Aerosol Sci. 1998. Vol. 29. Suppl.1. p. S597-598.
8. Куценюгий К.И., Куценюгий П.К. // Химия в интересах устойчивого развития. 1997. N 5. С. 457-474.

*ИХКиГ СО РАН, г. Новосибирск, 630090, ул. Институтская 3
(3832) 333244, email: vlasenko@kinetics.nsc.ru*