

Вариация аммиака в районе Санкт-Петербурга на основе наземных и спутниковых измерений

Неробелов Г. ^{1,2,3}, Тимофеев Ю.¹, Никитенко А.¹, Гордюшкин В. А.⁴
Поберовский А.¹, Филиппов Н.¹,

¹Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург, Россия

²Санкт-Петербургский Федеральный исследовательский центр РАН, Санкт-Петербург, Россия

³Российский государственный гидрометеорологический университет (РГГМУ), Санкт-Петербург, Россия

⁴ОА «ОПТЭК», Санкт-Петербург, Россия

Актуальность и цель исследования

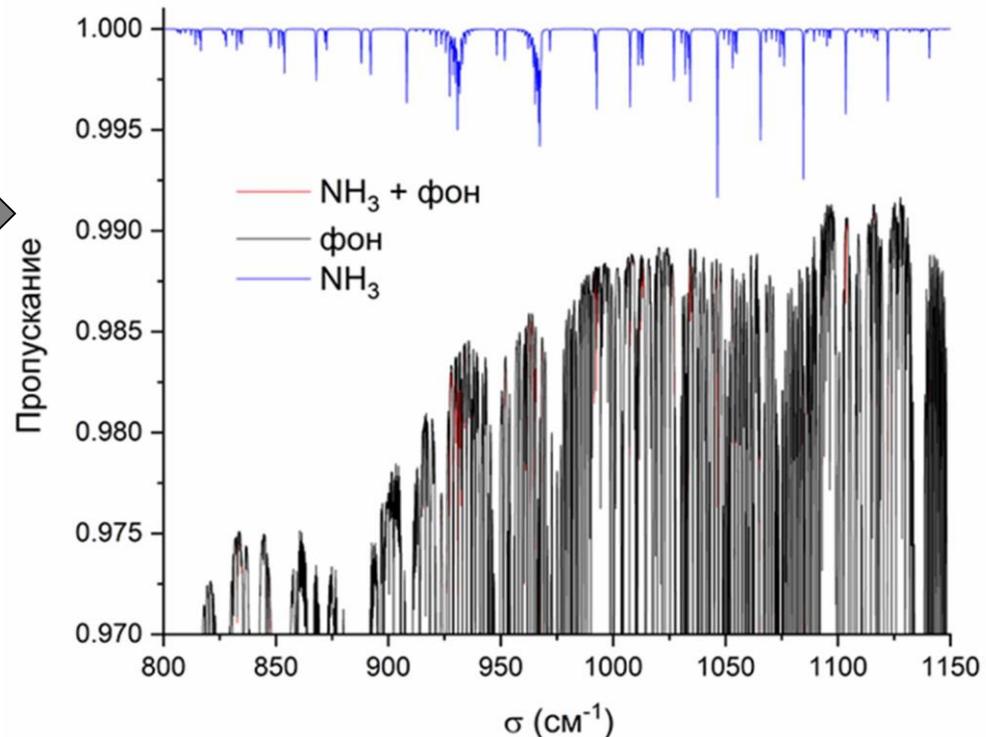
- Аммиак (NH_3) – токсичный газ, разъедает кожу, слизистую глаз и легких, при определенных условиях взрывоопасен.
- Источники - сельское хозяйство (**основной** - до 85% всех выбросов, например в виде удобрений), промышленность, транспорт, горение биомассы, выделение растительностью, выделение из почвы и водной поверхности, др.
- Аммиак участвует в формировании большей части атмосферных аэрозолей и таким образом **косвенно влияет на радиационный баланс Земли**.
- Газ приводит к **ухудшению водных экосистем** (эвтрофикация) и **почв** (изменение кислотности), выпадая в виде аэрозолей [Zhu et al. 2015].
- Аммиак имеет малое время жизни (нескольких часов-сутки) и подвержен локальным эмиссиям, т.е. **содержание** газа очень **изменчиво во времени и пространстве**.
- Все перечисленное делает необходимым регулярные измерений содержаний аммиака в воздухе городов и окружающих территорий.
- **В докладе представлены** результаты наземных и спутниковых измерений содержания NH_3 в районе Санкт-Петербурга (Россия) за период 2008-2022 гг.

Методы исследования:

наземные измерения общего содержания (ОС) NH_3

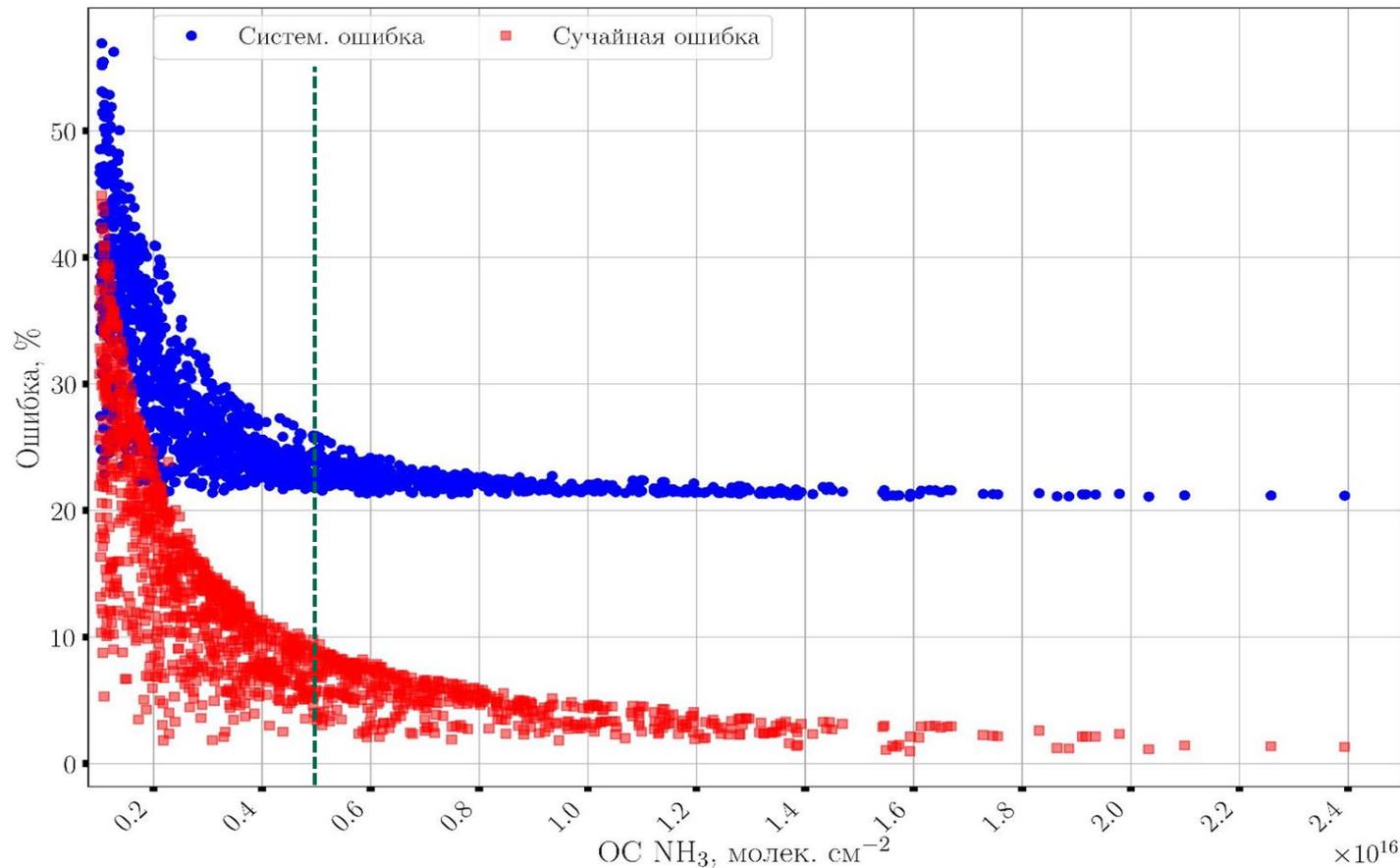
- Измерения прямого солнечного ИК излучения высокого спектрального разрешения (до 0.005 см^{-1}) Фурье-спектрометром (ФС) **Bruker 125HR** проводятся в Петергофе [Timofeev et al., 2016].
- Интерпретация измеренных спектров - ПО **PROFFIT** [Hase et al. 2004].
- Для оценок ОС NH_3 использовалось два микроокна поглощения солнечного излучения газом - **926.4-932.5** и **964.1-968.4** см^{-1} .
- При восстановлении ОС NH_3 учитывалось поглощение ИК излучения в атмосфере H_2O , O_3 и CO_2

Пример расчетных функции пропускания атмосферы для фонового содержания NH_3 с учетом поглощения «мешающих газов» в спектральной области $800\text{-}1150 \text{ см}^{-1}$



Методы исследования: погрешности определения ОС NH_3 по наземным измерениям

Зависимость относительных случайной и систематической погрешностей определения ОС NH_3 от значений ОС в Петергофе

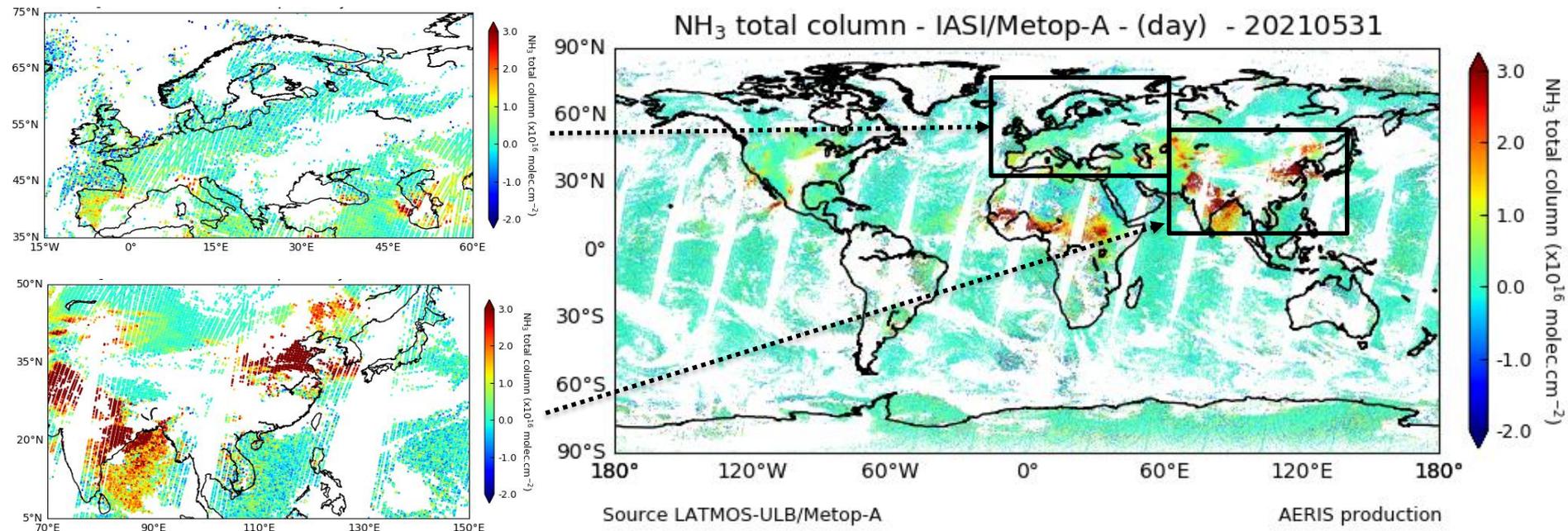


Вывод: > ОС 0.5×10^{16} мол. см^{-2} (правее вертикальной пунктирной линии) погрешности мало меняются, набор данных при этом уменьшается примерно в 4 раза (500 из 2200 значений)

Методы исследования: спутниковые измерения ОС NH_3

- ИК интерферометр **IASI** (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) расположен на борту спутника Metop-A
- Спектральный диапазон: $645\text{--}2760\text{ см}^{-1}$ (15.5 – 3.62 мкм)
- Спектральное разрешение: $0.3\text{--}0.5\text{ см}^{-1}$
- Пространственное разрешение: 12 км, полоса захвата 2200 км
- Версия данных ОС NH_3 : ANNI-NH3-v3 (L2) [Van Damme et al, 2017]
- Диапазон длин волн при восстановлении NH_3 : $812\text{--}1126\text{ см}^{-1}$
- Временное покрытие: 2008-2021 гг., два раза в день над одним объектом (~9:30, 21:30 UTC)
- Погрешность восстановления: 5 - более 1000% [Van Damme et al, 2017]

Примеры данных измерений ОС NH_3 спутниковым прибором IASI



Методы исследования: фильтрация измерений ОС NH_3

Наземные измерения Bruker 125HR:

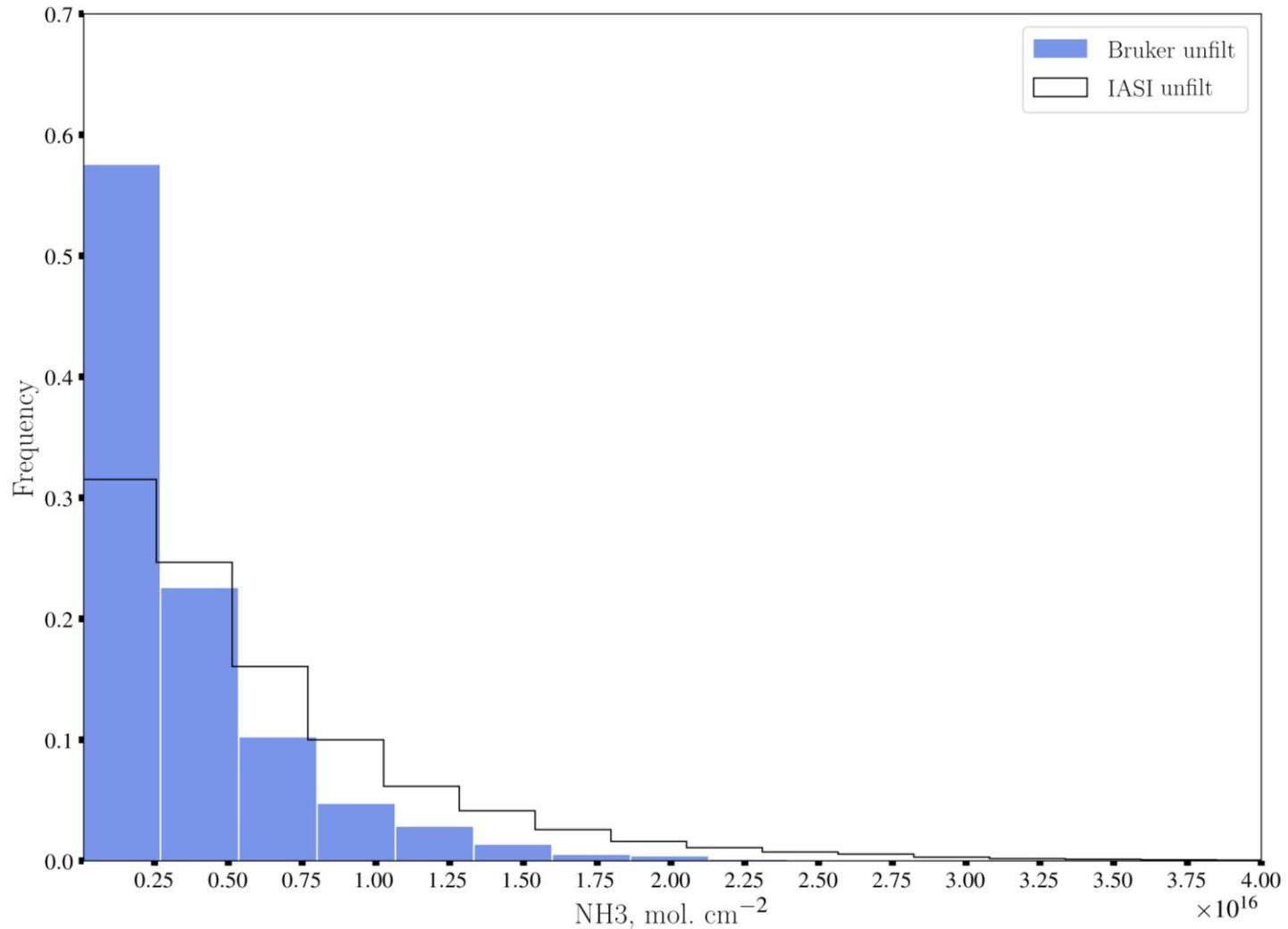
- 1.a Погрешность восстановления ОС NH_3 менее 50%
- 1.б ОС NH_3 более $0.5 \cdot 10^{16}$ мол. см⁻²

Спутниковые измерения IASI:

- 1. Измерения в радиусе 100 км от Петергофа
- 2. Исключение отрицательных значений
- 3.a Погрешность восстановления ОС NH_3 менее 50%
- 3.б ОС NH_3 более $0.5 \cdot 10^{16}$ мол. см⁻²

Методы исследования: фильтрация измерений ОС NH₃

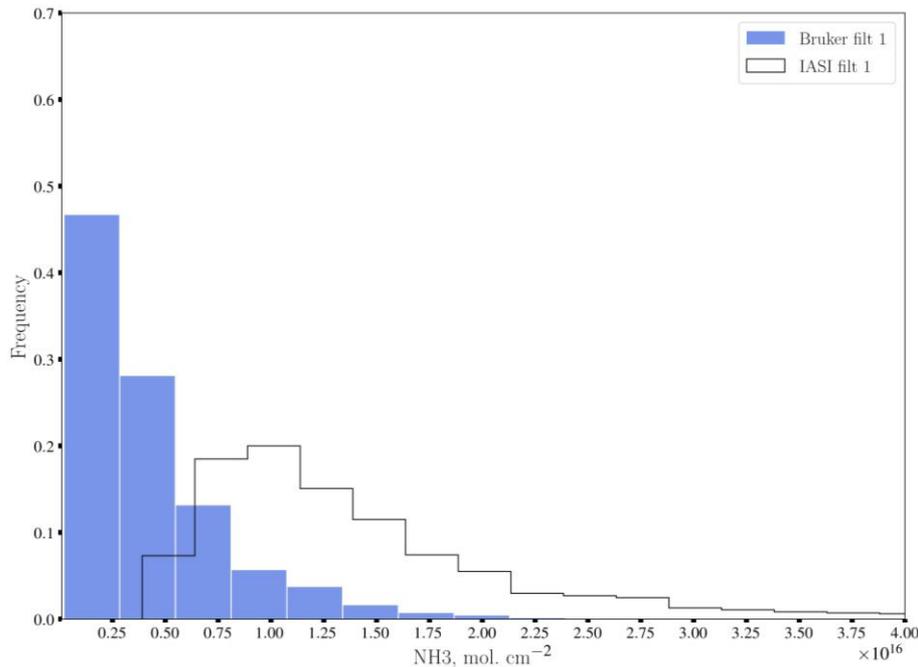
Гистограмма ОС NH₃ в Санкт-Петербурге за 2016-2021 гг.
по данным **нефильтрованных** наземных измерений
Bruker 125HR и спутниковых измерений IASI



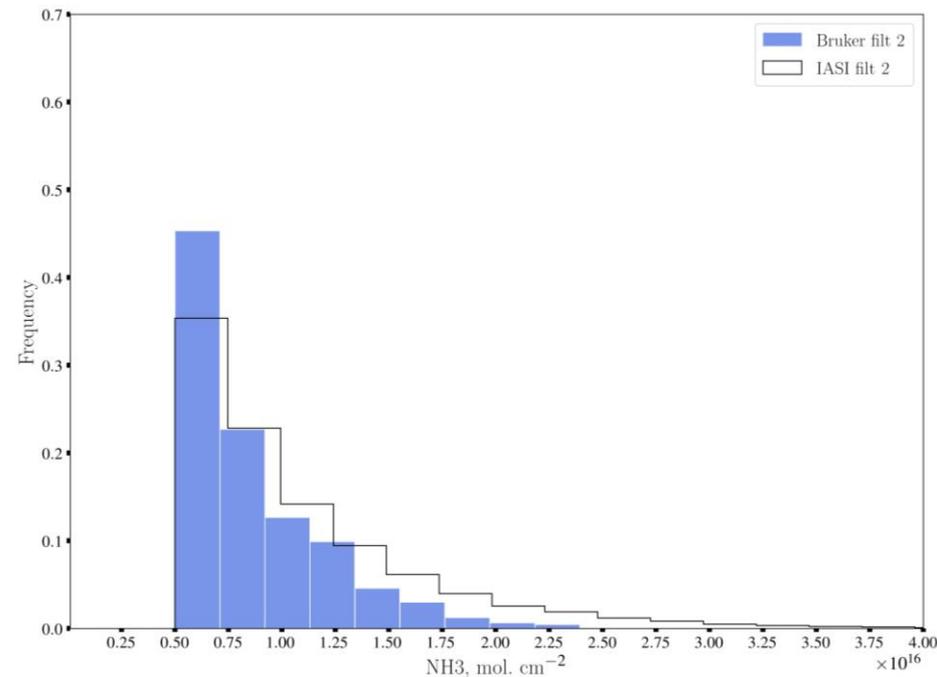
Методы исследования: фильтрация измерений ОС NH₃

Гистограммы ОС NH₃ в Санкт-Петербурге за 2016-2021 гг.
по данным **фильтрованных** наземных измерений
Bruker 125HR и спутниковых измерений IASI

1. Погрешность восстановления ОС NH₃ менее 50%



2. ОС NH₃ более 0.5*10¹⁶ мол. см⁻²



Выводы :

1. Фильтрация №1 (слева) приводит к заметному уменьшению значения ОС NH₃ менее 0.5*10¹⁶ мол. см⁻²
2. Фильтрация №2 приводит к уменьшению соответствующих значений в обоих наборах данных, при этом распределения стали похожи.
3. В последующем анализе используется фильтрация по значениям ОС NH₃ > 0.5*10¹⁶ мол. см⁻²

Методы исследования:

измерения приземного содержания NH_3

- Регулярные измерения приземной концентрации NH_3 выполняются приборостроительной организацией АО «ОПТЭК»
- Хемилюминесцентный анализатор Н-105 расположен на западе Санкт-Петербурга в районе с повышенным загрязнением воздуха на 2021 г. по данным Северо-Западного УГМС (Василеостровский р-н).
- Диапазон измеряемых концентраций: $0-2 \text{ мг м}^{-3}$
- Наименьшая регистрируемая концентрация: $10^{-4} \text{ мг м}^{-3}$
- Предел приведенной погрешности измерений: 20% к диапазону $0.0-0.4 \text{ мг м}^{-3}$
- Особенности эксплуатации: температура воздуха $5-40^\circ\text{C}$
- Период измерений: 2019-2022 гг. в виде среднечасовых
- **Фильтрация измерений:** диапазон $10^{-4}-0.4 \text{ мг м}^{-3}$

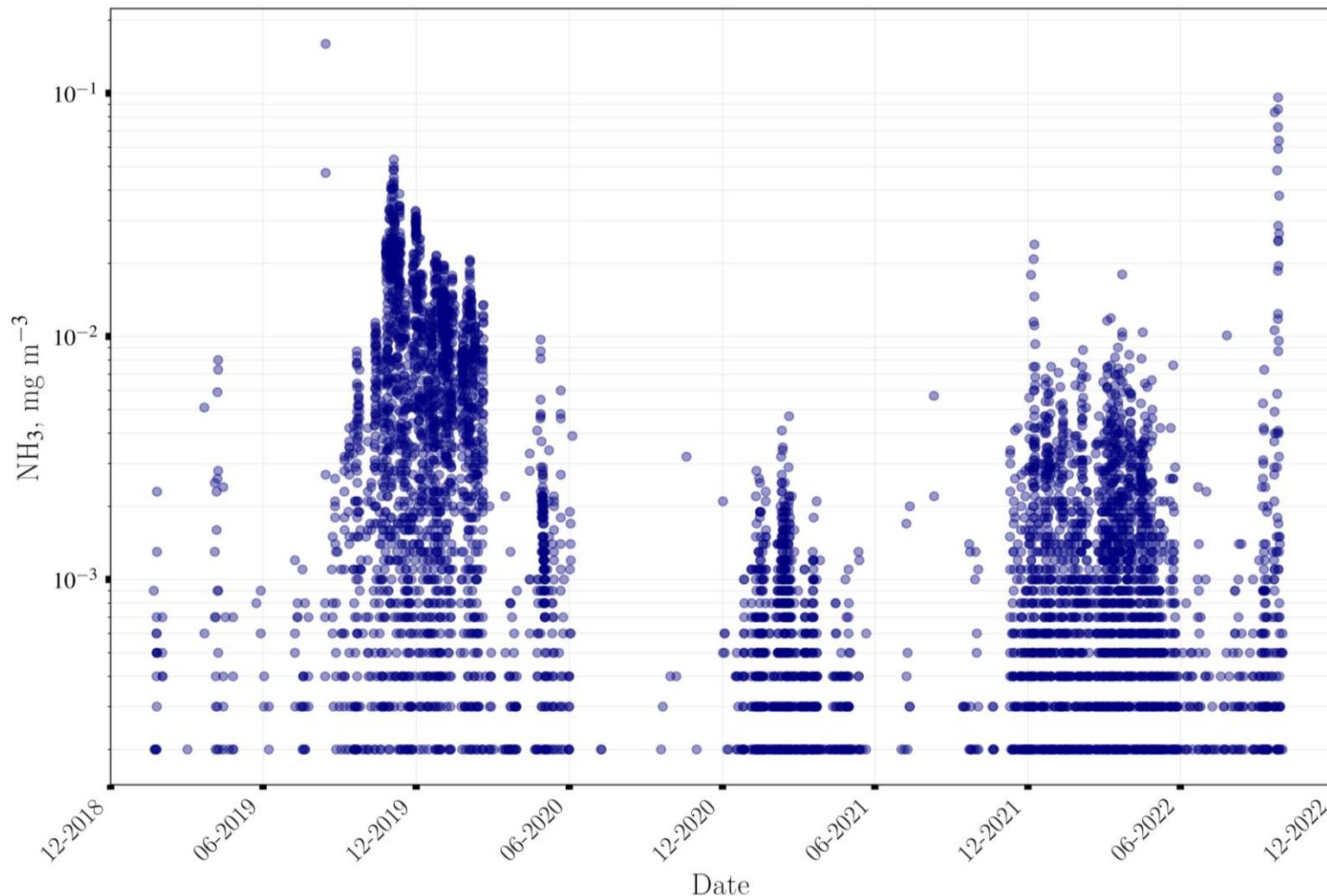
Пример измерительного прибора Н-105

Принцип хемилюминесцентного анализатора – регистрация выделяемой ЭМ энергии на определенных длинах волн при химической реакции газа внутри прибора



Результаты:

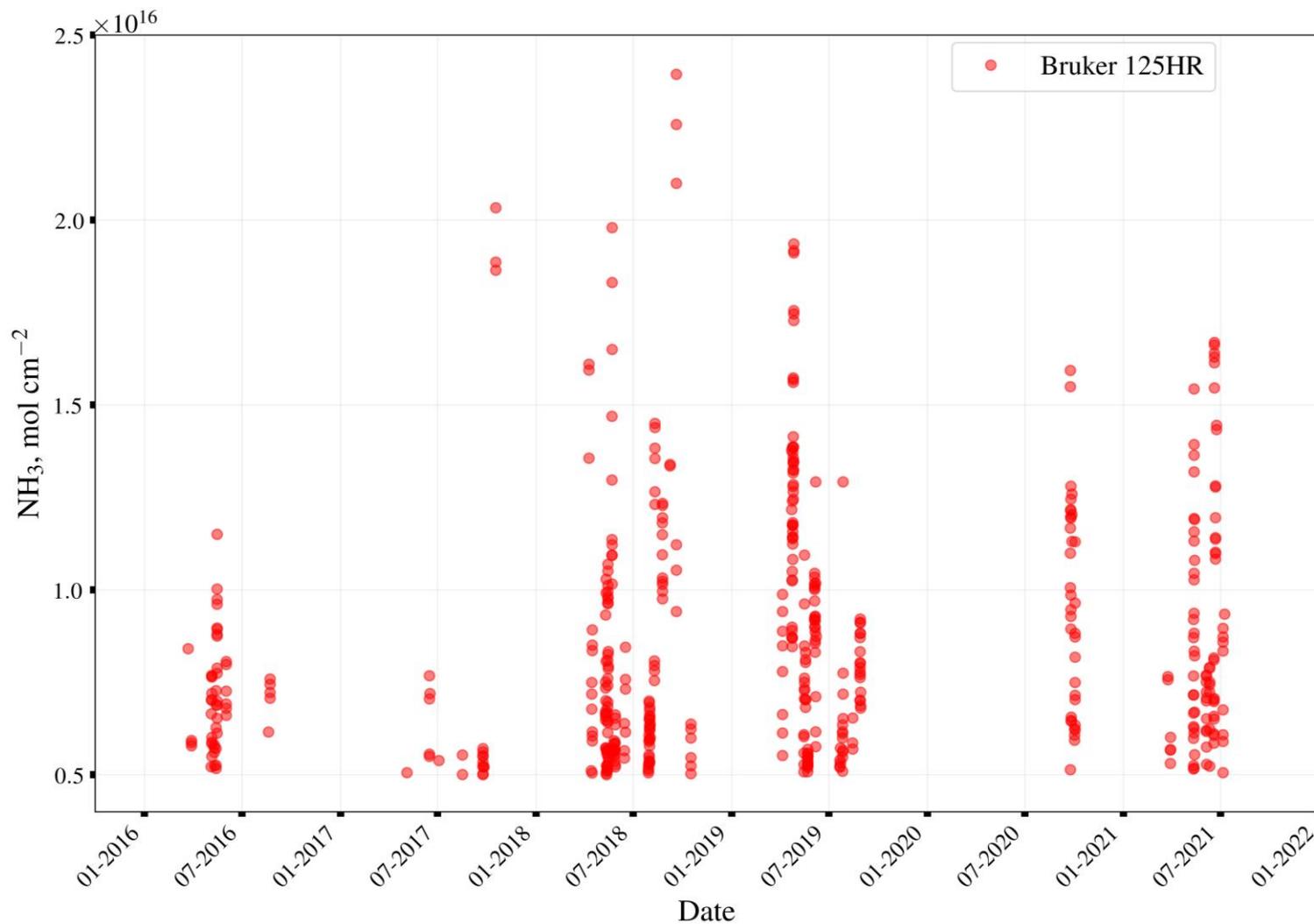
Временной ряд приземной концентрации NH_3 за период 2019-2022 гг.
в Санкт-Петербурге на основе наземных измерений



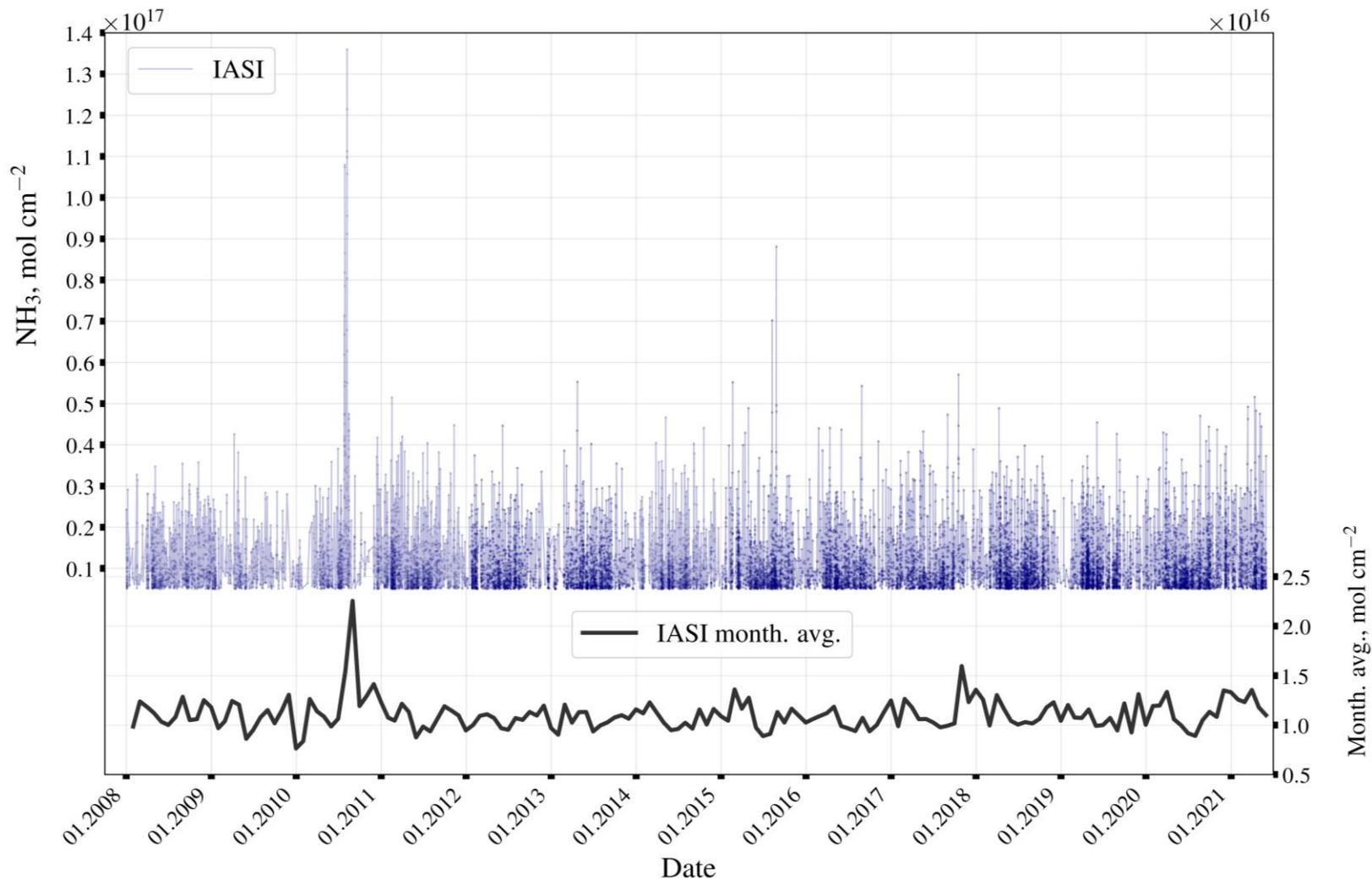
Вывод:

за 2018-2022 гг. максимально разовая предельно допустимая концентрация аммиака (0.2 mg m^{-3}) не превышалась

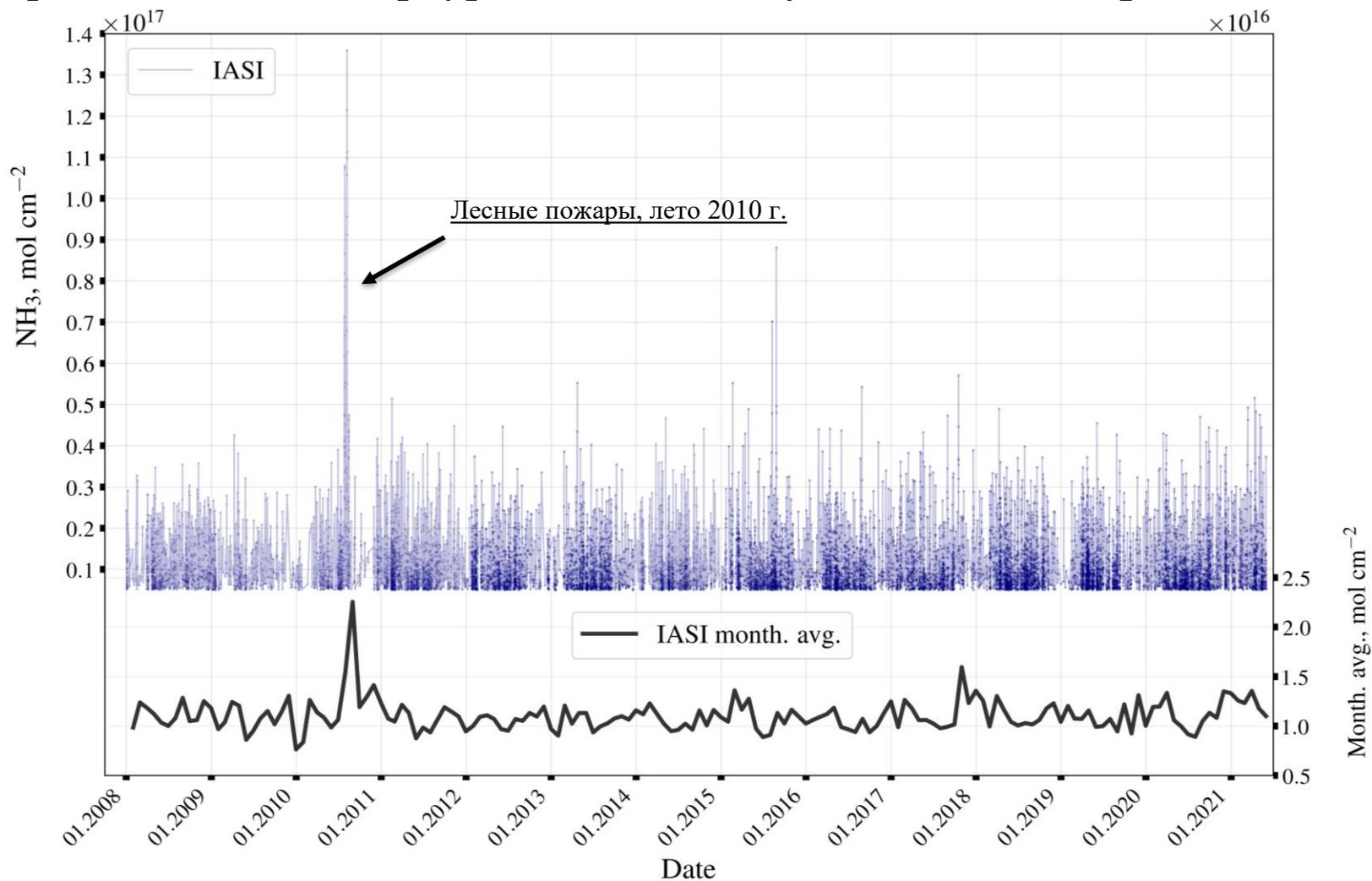
Временной ряд ОС NH_3 за период 2016-2021 гг.
на станции в Петергофе на основе наземных измерений **Bruker 125HR**



Временные ряды ОС NH_3 за период 2008-2021 гг.
в районе Санкт-Петербурга на основе спутниковых измерений IASI



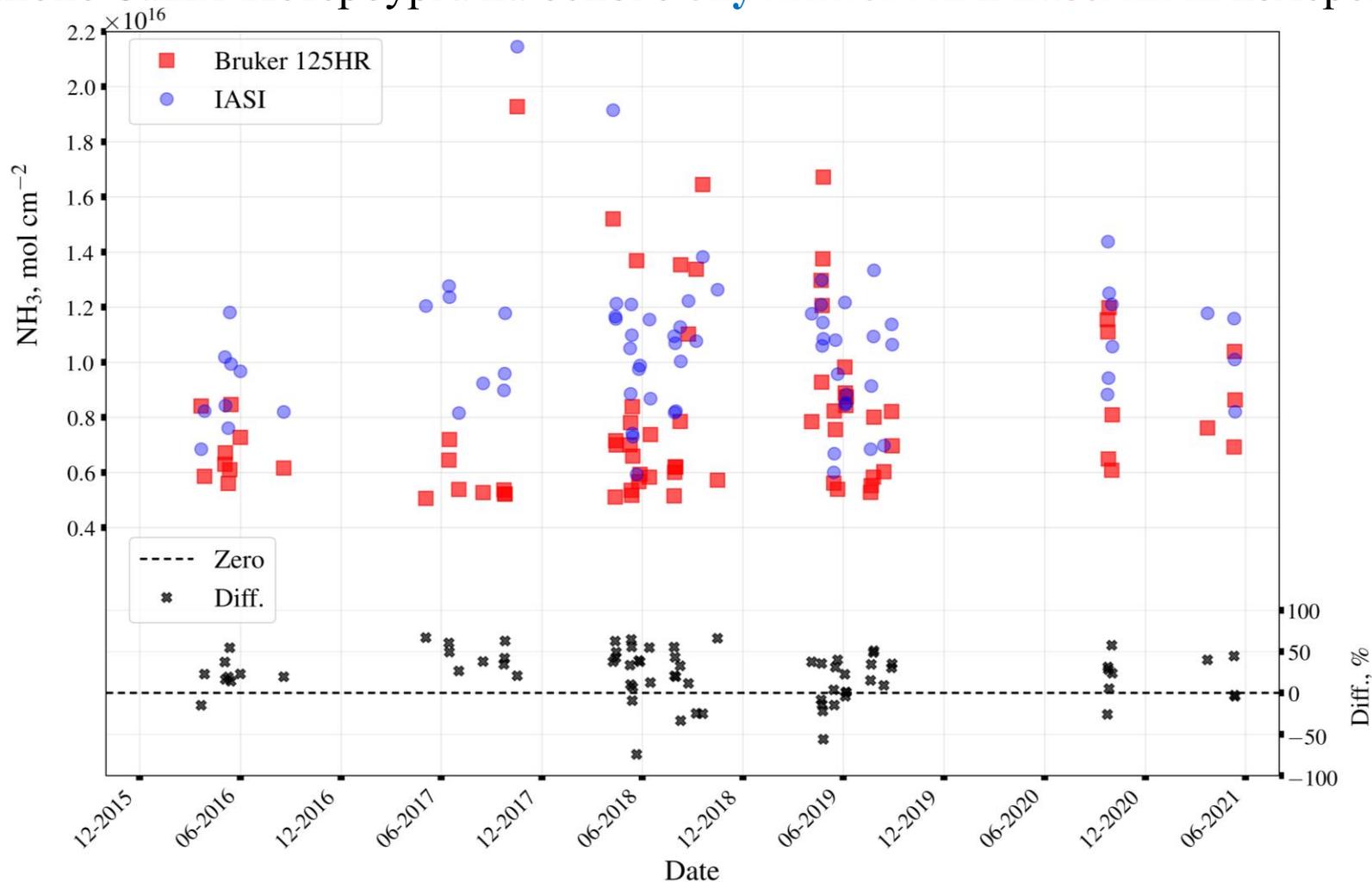
Временные ряды ОС NH_3 за период 2008-2021 гг. в районе Санкт-Петербурга на основе спутниковых измерений IASI



Вывод:

1. Зарегистрировано увеличение ОС NH_3 от крупномасштабных лесных пожаров на Европейской части России в 2010 г.
2. Многолетнее изменение ОС NH_3 не имеет выраженной тенденции к уменьшению или увеличению.

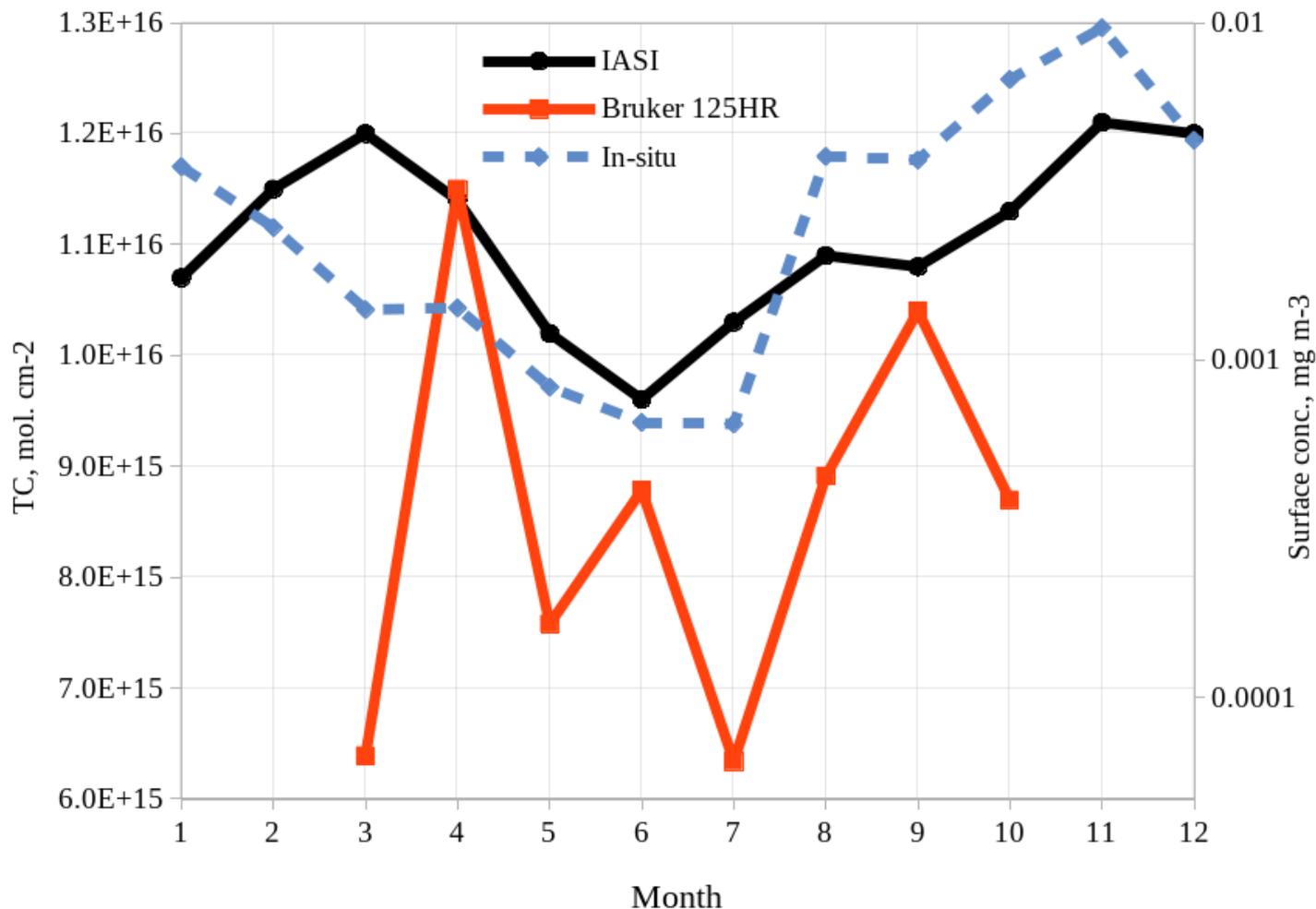
Временные ряды ОС NH_3 за период 2016-2021 гг. в районе Санкт-Петербурга на основе **спутниковых** и **наземных** измерений



Вывод:

1. Средняя разность и стандартное отклонение составляют 22.4 и 29.1%, соответственно.
2. Подобные различия между данными получены в исследованиях [Dammers et al., 2016], [Herrera et al., 2022].
3. Коэффициент корреляции относительно мал и достигает 0.45.

Сезонный ход ОС и приземной концентрации NH_3 в районе Санкт-Петербурга на основе спутниковых и наземных измерений



Вывод:

1. Сезонный ход ОС NH_3 на основе спутниковых измерений и приземной концентрации схож – уменьшение к июню с последующим увеличением
2. На сезонный ход могут влиять заметные различия в количестве измерений между сезонами у трех наборов данных
3. Похожий сезонный ход представлен в исследованиях [Viatte et al., 2020], [Tanvir et al., 2019]

Статистические характеристики ОС NH₃ в районе Санкт-Петербурга и в других регионах Земли

| Место | Среднее±СКО, мол. см ⁻² ×10 ¹⁵ | Средние по сезонам, весна/зима, мол. см ⁻² ×10 ¹⁵ | Амплитуда вариаций, мол. см ⁻² ×10 ¹⁵ | Случайная/ систематическая ошибки, % | Примечания |
|-----------------------------------|---|---|---|--|--------------------------|
| Петергоф, Bruker 125HR | 8.6±3.4 | 8.6/ - (< 5) | 18.9 | 4.8/22.1 | Данная работа |
| Петергоф, IASI | 10.9±6.4 | 11.1/11.4* | 131 | общая 18-297 | |
| Бремен | 13.7±20.2 | ~20/3 | ~90 | 9.1/23.5 | [Dammers et al., 2015] |
| Бремен* | ~ 23 ±22 | - | ~90 | общая <30 | [Dammers et al., 2016] |
| Лаудер | 4.17±6.0 | ~3/7 | ~35 | 12/27 | [Dammers et al., 2015] |
| Лаудер* | ~7±5.0 | - | ~32 | общая <30 | [Dammers et al., 2016] |
| Реюнион | 0.80±1.1 | ~0.5/0.9 | ~6 | 15.3/20 | [Dammers et al., 2015] |
| Реюнион* | ~1±1 | - | ~5 | общая <30 | [Dammers et al., 2016] |
| Юнгфрауйох | 0.18 ±0.2 | ~0.2/0.1 | ~ 2 | 25.3/23.1 | [Dammers et al., 2015] |
| Париж | 8.4±8.6 | 11.7/1.2 | ~90 | 6.7/20.8 | [Tournadre et al., 2020] |
| Торонто | ~ 8±8 | - | ~36 | общая <30 | [Dammers et al., 2016] |
| Боулдер | ~7±4 | | ~24 | | |
| Тсукуба | ~3±2 | | ~8 | | |
| Пасадена | ~12±6 | | ~27 | | |
| Мексико сити | ~15±9 | | ~36 | | |
| Воловгонг | ~4±3 | | ~13 | | |

*В среднем погрешности измерений IASI зимой на 10% больше, чем весной. Высокое среднее ОС NH₃ зимой может быть связано с меньшим количеством измерений в данный сезон из-за низкого Солнца и облачности.

Заключение

- Мониторинг аммиака на территории Санкт-Петербурга выполняется регулярно при помощи локальных и дистанционных измерений
- Приземная концентрация аммиака в Санкт-Петербурге за период 2019-2022 гг. не превышала предельно допустимую в зимний, весенний и осенний периоды
- Наблюдается слабо выраженный сезонный ход содержания NH_3 с максимумами в теплое время года и с минимумами холодное, который подтверждается независимыми оценками.
- ОС NH_3 по данным спутниковых измерений IASI и наземных измерений Bruker 125HR **плохо согласуются** – средняя разность и стандартное отклонение ~ 22 и 29% , соответственно, корреляция ~ 0.45 .
- Различия могут быть связаны с (1) большими погрешностями измерений (до 20% для Bruker 125HR, до более 200% для IASI), (2) методом фильтрации данных, (3) различиями в характеристиках приборов и (4) в измеряемом излучении, (5) размерами наборов данных и используемым осреднением и тд.
- Характеристики ОС NH_3 в районе Санкт-Петербурга близки к диапазонам результатов из независимых исследований для различных частей планеты – средние ОС **8.6-10.9** мол. см^{-2} против **0.8-2.3** мол. см^{-2} , амплитуда **18.9-131** мол. см^{-2} против **2-90** мол. см^{-2} .

Благодарности

Работа выполнена при поддержке государственного контракта № 13.2251.21.0005 Министерства науки и высшего образования РФ. Наземные спектроскопические измерения выполнены на научном оборудовании ресурсного центра СПбГУ «Геомодель». Регулярные измерения приземной концентрации NH_3 выполняются приборостроительной организацией АО «ОПТЭК».

Источники

- Zhu, L., Henze, D.K., Bash, J.O. et al. Sources and Impacts of Atmospheric NH₃: Current Understanding and Frontiers for Modeling, Measurements, and Remote Sensing in North America. *Curr Pollution Rep* 1, 95–116 (2015). <https://doi.org/10.1007/s40726-015-0010-4>
- Timofeyev, Yu.; Virolainen, Ya.; Makarova, M.; Poberovsky, A.; Polyakov, A.; Ionov, D.; Osipov, S.; Imhasin, H. Ground-based spectroscopic measurements of atmospheric gas composition near Saint Petersburg (Russia). *J. Mol.Spectr.* 2016, 323, pp. 2–14. doi: 10.1016/j.jms.2015.12.007.
- Hase, F. & Hannigan, James & Coffey, M. & Goldman, A. & Höpfner, Michael & Jones, Nicholas & Rinsland, C. & Wood, Stephen. (2004). Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer - J QUANT SPECTROSC RADIAT.* 87. 25-52. 10.1016/j.jqsrt.2003.12.008.
- Van Damme, M., Whitburn, S., Clarisse, L., Clerbaux, C., Hurtmans, D., and Coheur, P.-F.: Version 2 of the IASI NH₃ neural network retrieval algorithm: near-real-time and reanalysed datasets, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 4905–4914, <https://doi.org/10.5194/amt-10-4905-2017>, 2017.
- Dammers E , C. Vigouroux, M. Palm, E. Mahieu, T. Warneke, D. Smale, B. Langerock, B. Franco, M. Van Damme, M. Schaap, J. Notholt, and J. W. Erisman Retrieval of ammonia from ground-based FTIR solar spectra *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 12789–12803, 2015 www.atmos-chem-phys.net/15/12789/2015/ doi:10.5194/acp-15-12789-2015
- Tournadre, B., Chelin, P., Ray, M., Cuesta, J., Kutzner, R. D., Landsheere, X., Fortems-Cheiney, A., Flaud, J.-M., Hase, F., Blumenstock, T., Orphal, J., Viatte, C., and Camy-Peyret, C.: Atmospheric ammonia (NH₃) over the Paris megacity: 9 years of total column observations from ground-based infrared remote sensing, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 3923–3937, <https://doi.org/10.5194/amt-13-3923-2020>, 2020.
- Dammers E., Palm M., Van Damme M., Vigouroux C., Smale D, Conway S., Toon G.C., Jones N., Nussbaumer E., Warneke T., Petri C., Clarisse L., Clerbaux C., Hermans C., Lutsch E., Strong K., Hannigan J.W., Nakajima H., Morino I., Herrera B., Stremme W., Grutter M., Schaap M., Kruit W.R.J., Notholt J., Coheur P-F., Erisman J.W. An evaluation of IASI-NH₃ with ground-based Fourier transform infrared spectroscopy measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10351–10368, 2016. <https://doi.org/10.5194/acp-16-10351-2016>
- Herrera, B., Bezanilla, A., Blumenstock, T., Dammers, E., Hase, F., Clarisse, L., Magaldi, A., Rivera, C., Stremme, W., Strong, K., Viatte, C., Van Damme, M., and Grutter, M.: Measurement report: Evolution and distribution of NH₃ over Mexico City from ground-based and satellite infrared spectroscopic measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 14119–14132, <https://doi.org/10.5194/acp-22-14119-2022>, 2022.
- Viatte, C., Wang, T., Van Damme, M., Dammers, E., Meleux, F., Clarisse, L., Shephard, M. W., Whitburn, S., Coheur, P. F., Cady-Pereira, K. E., and Clerbaux, C.: Atmospheric ammonia variability and link with particulate matter formation: a case study over the Paris area, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 577–596, <https://doi.org/10.5194/acp-20-577-2020>, 2020.
- Aimon Tanvir, Muhammad Fahim Khokhar, Zeeshan Javed, Osama Sandhu, Tehreem Mustansar, Asadullah Shoaib, "Spatiotemporal Evolution of Atmospheric Ammonia Columns over the Indo-Gangetic Plain by Exploiting Satellite Observations", *Advances in Meteorology*, vol. 2019, Article ID 7525479, 11 pages, 2019. <https://doi.org/10.1155/2019/7525479>

Благодарим за внимание!