

Е.В. Моложникова, Е.В. Кучменко\*

## Оценка некоторых характеристик образования и выпадения сульфатов в городах Прибайкалья

\* Институт систем энергетики им. Л.А. Мелентьева СО РАН,  
Лимнологический институт СО РАН, г. Иркутск

Поступила в редакцию 27.01.2004 г.

В задачах развития энергетических систем необходимо оценивать долю первичных выбросов  $\text{SO}_2$ , превращающихся в пределах рассматриваемой территории (локальной зоны) во вторичный аэрозоль (сульфаты). Предлагается в первом приближении для получения ориентировочных оценок превращения и выпадения серосодержащих соединений использовать данные химического анализа образцов снежного покрова, которые отбираются в конце зимнего периода. Для разработки методики использовались данные подробной снегосъемки, проводившейся на территории г. Иркутска в течение четырех лет (2000–2003), а также г. Слюдянки в течение двух лет (2002–2003). Были определены интегральные скорости осаждения серосодержащих соединений, которые зимой в Прибайкалье существенно отличаются от величин аналогичных параметров, определенных в Европе.

Обосновывается возможность использования данных о фоновом загрязнении осадков для определения вклада дальнего переноса в выпадения сульфатов на территории города.

### Введение

В настоящее время установлено, что наиболее существенное негативное влияние на здоровье людей оказывают субмикронные аэрозоли антропогенного происхождения, поскольку именно эта фракция обладает способностью проникать глубоко внутрь дыхательного тракта человека [1]. Источниками их поступления в воздушный бассейн являются, во-первых, промышленность, прежде всего энергетика, выбрасывающая твердые частицы (первичные аэрозоли), и, во-вторых, процессы трансформации кислотообразующих газов ( $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{CO}$ ) в частицы (вторичные аэrozоли, которые характеризуются развитой поверхностью и высокой адсорбирующей способностью). Следует подчеркнуть, что при решении прикладных задач, например при разработке экологических ограничений, необходимо учитывать количество вторичных аэrozолов, образующихся в локальной зоне путем трансформации кислотообразующих газов. Так, концентрация аэрозоля, создаваемая  $j$ -м промышленным объектом в точке  $u$ , определяется соотношением

$$c'_{uj} = \left( \sum_{m \in L} c_{ujm} + \sum_{p \in P_{ag}} \beta c_{uj} \right), \quad (1)$$

где  $L$  – множество фракций аэrozоля;  $\beta$  – коэффициент превращения  $\text{SO}_2$  во вторичный аэrozоль; первая сумма – это концентрация первичного аэrozоля, а вторая – вторичного, образующегося в результате трансформации газов, выбрасываемых тем же объектом.

Целью проводимых исследований была, в частности, разработка способов оценки, доли  $\text{SO}_2$ , пре-

вращающегося в сульфатный аэrozоль в локальной зоне (на территории города). Выбор серосодержащих соединений в качестве объекта изучения обусловлен следующими причинами: во-первых, во многих городах региона, в частности в рассматриваемых далее Иркутске и Слюдянке, основным источником выброса оксидов серы в атмосферу являются процессы сжигания органических топлив; во-вторых, определение концентраций ионов  $\text{SO}_4^{2-}$  в пробах снега требует небольших затрат на химические анализы.

### Материалы и объекты исследования

Для изучения процессов антропогенного поступления и трансформации серосодержащих соединений рассматривались города Прибайкалья: Иркутск – как характерный для Восточной Сибири промышленный центр, и Слюдянка – орографически изолированный населенный пункт, имеющий несколько промышленных предприятий и сеть мелких теплоисточников.

Следует пояснить, что Иркутск – административный центр Иркутской области с населением около 600 тыс. чел. Доля выбросов предприятий энергетики составляет 86% валового выброса и 99% выбросов оксида серы [2]. На территории города функционируют 196 промышленных и коммунальных котельных и одна крупная ТЭЦ. В некоторых районах сохраняется печное отопление. Общее количество домовых печей в городе превышает 30 тыс.

Город Слюдянка расположен на берегу оз. Байкал в его юго-западной оконечности в долинах рек Слюдянка и Похабиха между отрогами хребта Хамар-Дабан. Население города составляет 21,1 тыс. чел. В настоящий момент в городе эксплуатируется 21 котельная. Большая часть населения проживает в част-

ных домах с печным отоплением. Это примерно 2,2 тыс. домов.

Для оценки выпадения ионов  $\text{SO}_4^{2-}$  в пределах рассматриваемой территории использовались результаты химического анализа проб снежного покрова, отбирающихся регулярно в конце зимы в течение 2000–2003 гг. [3]. Приближенная оценка количества сульфатов, приносимых на территорию города извне, была получена на основании исследования материалов по химическому составу атмосферных осадков в г. Иркутске, пос. Монды и пос. Листвянка.

Кроме того, учитывались данные о химическом составе проб снежного покрова, отобранных в эти же годы вдоль автомобильных трасс Иркутск–Листвянка и Иркутск–Слюдянка. Для сопоставления концентраций первичных и вторичных аэрозолей использовались расчетные характеристики, полученные при помощи модели рассеивания гауссова факела ISCST3 [4].

### Расчет выбросов от стационарных источников

Установленные мощности, присоединенные тепловые нагрузки, технические характеристики рассматриваемых теплоисточников и виды сжигаемого в них топлива оценивались по результатам энергетических обследований, выполненных в 1995–2003 гг. специалистами ИСЭМ СО РАН, а также путем переработки материалов, накопленных в рамках ряда международных проектов [5,6]. Мгновенные ( $\text{г}/\text{с}$ ) выбросы  $\text{SO}_2$  котельными и домовыми печами определялись на основании методики [7] для реальных нагрузок ТЭЦ и котельных. При этом в расчетах были использованы удельные выбросы  $\text{SO}_2$  ( $\text{кг}/\text{ГДж}$ ), полученные по результатам сопоставительного сжигания ряда углей Восточной Сибири различными группами котельных и домовыми печами [8].

### Гауссова модель ISCST3

Для получения расчетных характеристик полей концентрации в гг. Иркутск и Слюдянка использовалась стандартная модель рассеивания ISCST3, разработанная Агентством по охране окружающей среды США [4].

Необходимо отметить, что это локальная стационарная модель, получившая в настоящее время наиболее широкое распространение в природоохраных организациях Европейского сообщества и США. Использованная в данной работе версия модели ISCST3 позволяет получать поля рассеивания от многих источников. Расчет приземных концентраций для каждого источника производится на основании решения уравнения Гаусса для прямолинейного квазистационарного факела выброса.

Кроме уже описанных особенностей модели, следует отметить, что данная версия снабжена блоком, позволяющим производить учет влияния рельефа на концентрацию примесей. В расчетах использовалась реальная метеорологическая информация.

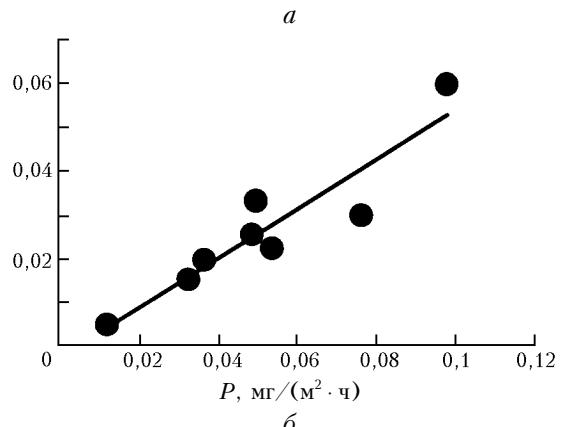
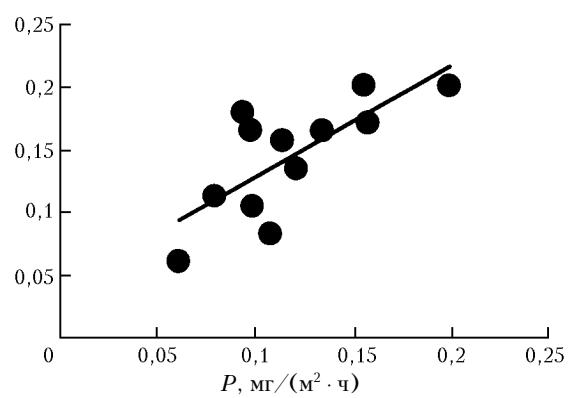
Оценка некоторых характеристик образования и выпадения сульфатов в городах Прибайкалья

Поле концентраций рассчитывалось с шагом 1 км. Для Иркутска площадь рассматриваемой территории составляет  $16 \times 22$  км, для Слюдянки –  $10 \times 14$  км.

### Методика оценки доли превращения $\text{SO}_2$ в локальной зоне

На современном этапе изучения процессов рассеивания и трансформации примесей довольно сложно оценить реальную долю первичных выбросов  $\text{SO}_2$ , превращающихся в пределах рассматриваемой территории (локальной зоны) во вторичный аэрозоль (сульфаты).

В ходе исследований выяснилось, что модельные расчеты дают большой разброс при оценке параметра  $\beta$ . По данным наблюдений за химическим составом снежного покрова были оценены средние выпадения серосодержащих соединений за период устойчивого снежного покрова ( $P_{\text{SO}_4^{2-}}$ ,  $\text{мг}/(\text{м}^2 \cdot \text{ч})$ ). Для этого же периода с использованием модели ISCST3 были рассчитаны средние за период приземные концентрации сульфатов ( $c_{\text{SO}_4^{2-}}$ ,  $\text{мг}/\text{м}^3$ ) (рисунок).



Сопоставление наблюдавшихся выпадений сульфатов ( $P$ ) и расчетных приземных концентраций ( $c$ ) в точках отбора проб:  $a$  – г. Иркутск;  $b$  – г. Слюдянка

При моделировании процессов загрязнения атмосферы принято считать [9], что выпадение примеси пропорционально приземной концентрации:

$$V_d = P_{SO_4^{2-}} / c_{SO_4^{2-}}, \quad (2)$$

где  $V_d$ , м/ч – скорость сухого выпадения. Имеющиеся экспериментальные данные не дают возможности разделить процессы сухого и влажного выпадения. В первом приближении по формуле (2) можно получить оценку некой интегральной скорости выпадения серосодержащих соединений. Средняя по всем точкам отбора проб величина  $V$  составляет для Иркутска 0,024 см/с, а для Слюдянки, экранированной отрогами хр. Хамар-Дабан, – 0,059 см/с, в то время как скорость только сухого выпадения  $SO_2$ , по литературным данным, – от 0,07 до 3–5 см/с [9].

Полученная оценка скорости выпадения, конечно, является довольно грубой и может содержать ошибки моделирования, случайные погрешности и т.п., однако в первую очередь необходимо отметить, что полученная величина существенно ниже литературных данных. Очевидно, при наличии снежного покрова в условиях большой повторяемости инверсий температуры и ослабления турбулентного обмена скорость сухого выпадения снижается и, возможно, оказывается существенно меньше известных ранее величин, поскольку климатические условия Восточной Сибири в зимнее время (слабые ветры, мощные инверсии температуры) практически не имеют аналогов.

Разность полученных значений для Иркутска и Слюдянки, в принципе, не так уж велика и, возможно, обусловлена особенностями локальной циркуляции, которая в Слюдянке имеет горно-долинный и близовый характер, а в Иркутске, по-видимому, иногда возникает «городская» циркуляция – потоки между центром и окраинами. Используемая для расчетов модель ISCST3 не учитывает местные циркуляции, которые возникают при слабых скоростях основного потока.

Для энергетических задач предлагается определять  $\beta$  по результатам снегосъемки:

$$\beta = \frac{M_{SO_2} \left( P_{SO_4^{2-}} - P_{SO_4^{2-}}^{\text{д.п.}} \right)}{M_{SO_4^{2-}} G_{SO_2}}, \quad (3)$$

где  $M$  – молекулярный вес;  $P_{SO_4^{2-}}$  – выпадение ионов  $SO_4^{2-}$  в пределах рассматриваемой территории;  $P_{SO_4^{2-}}^{\text{д.п.}}$  – поступление ионов  $SO_4^{2-}$  на рассматриваемую территорию с дальним переносом воздушных масс;  $G_{SO_2}$  – выбросы  $SO_2$  в пределах рассматриваемой территории, мг/ч. При определении  $\beta$  выпадения и выбросы оцениваются не за 1 ч, а за период.

В этом случае выпадение ионов  $SO_4^{2-}$  в пределах рассматриваемой территории вычисляется по формуле

$$P_{SO_4^{2-}} = \sum_{n=1}^N \left( p_{SO_4^{2-}} \right)_n \Delta F_n, \quad (4)$$

где  $p_{SO_4^{2-}}$  – удельное выпадение ионов  $SO_4^{2-}$  в  $n$ -й зоне промышленного центра (т/км<sup>2</sup> за рассматриваемый период);  $\Delta F_n$  – площадь  $n$ -й зоны рассматриваемой территории, км<sup>2</sup>.

## Методика приближенной оценки $P_{SO_4^{2-}}^{\text{д.п.}}$

Поступление ионов  $SO_4^{2-}$  на территорию города извне для энергетических задач, а также в других областях промышленной экологии предлагается определять, используя наблюдаемые показатели их содержания в осадках, выпадающих в непромышленных пунктах региона.

Были проведены специальные исследования, включавшие:

а) анализ минерализации (ионного состава) атмосферных осадков, выпадающих в южной части Иркутской области и Бурятии (от 51° с.ш. до 54° с.ш., от 100° в.д. до 105° в.д.) вне городов и промышленных центров;

б) анализ регионов формирования осадков, выполняемый с использованием модели дальнего переноса HYSPLIT [10].

Для обоснования корректности методики проведен подробный анализ факторов, влияющих на состав осадков, – сезонных, циркуляционных, локальных. По архивным метеорологическим данным были построены обратные траектории воздушных масс (ВМ) для разных сезонов года. Было выделено 12 наиболее часто встречающихся типов траекторий ВМ на высоте 1500 и 3000 м. Приведенный статистический анализ данных химического состава атмосферных осадков дает возможность утверждать следующее:

– в городах Прибайкалья (как больших, так и малых) зимой выпадение сульфатов определяется преимущественно локальными антропогенными источниками выбросов, основными из которых являются теплоисточники. В первую очередь это относится к старым городам, построенным до второй половины XIX в., теплоснабжение которых базируется на большом количестве мелких энергоисточников;

– траектории ВМ для г. Иркутска, пос. Листянка и пос. Монды совпадают в 90% случаев;

– сезонный ход концентраций ионов  $SO_4^{2-}$  в составе атмосферных осадков имеет ряд сходных особенностей в различных пунктах региона.

Таким образом, с одной стороны, природные факторы, формирующие химический состав осадков в различных пунктах региона, достаточно близки. С другой стороны, зимой преобладающее поступление сульфатов в городах имеет локальное происхождение, т.е. поступление за счет дальнего переноса существенно меньше.

Следовательно, в качестве приближенной оценки выпадения сульфатов, формирующихся за счет природных источников и дальнего переноса, можно принимать величину их поступления с осадками в непромышленных пунктах региона (т/км<sup>2</sup>), которая определяется по формуле

$$P_{\text{SO}_4^{2-}}^{\text{д.п.}} = \sum_{\tau=1}^{\Phi} \left( c_{\text{SO}_4^{2-}} \right)_{\tau} V_{\tau}, \quad (5)$$

где  $c_{\text{SO}_4^{2-}}$  – концентрация ионов  $\text{SO}_4^{2-}$  в исследуемой пробе, г/л;  $V_{\tau}$  – объем осадков в месяц  $\tau$ , л/ $\text{м}^2$ ;  $\Phi$  – количество месяцев в рассматриваемом периоде.

## Обсуждение полученных результатов

Обобщенные оценки влажного выпадения  $\text{SO}_4^{2-}$  (по данным наблюдений) для промышленного (г. Иркутск), отдаленного или сельского (пос. Листвянка) и фонового (пос. Монды) районов представлены в табл. 1.

Таблица 1  
Оценка влажного выпадения  $\text{SO}_4^{2-}$

Населенный пункт. Сезон	$\text{SO}_4^{2-}$ , т/ $\text{км}^2$
г. Иркутск	
Теплый период	0,845
Холодный период	0,685
Весь год	1,530
пос. Листвянка	
Теплый период	0,456
Холодный период	0,218
Весь год	0,674
пос. Монды	
Теплый период	0,220
Холодный период	0,036
Весь год	0,256

По данным о влажных выпадениях с учетом результатов химического анализа проб снежного покрова, отобранных вдоль трасс, величина удельного выпадения ионов  $\text{SO}_4^{2-}$  в непромышленной зоне Прибайкалья за холодный период может быть принята равной 0,036 т/ $\text{км}^2$ . Необходимо подчеркнуть, что это весьма приблизительная оценка среднего по региону выпадения и может быть использована лишь при изучении загрязнения городов, где локальное поступление сульфатов значительно превышает поступление с дальним переносом. Данные выпадений, полученные на основании результатов анализа химического состава проб снега, приведены в табл. 2.

Таблица 2  
Оценка доли превращения  $\text{SO}_2$  в сульфаты на территории гг. Иркутск и Слюдянка

Характеристика образования и выпадения сульфатов	Иркутск	Слюдянка
Выбросы $\text{SO}_2$ за период устойчивого снежного покрова ( $G_{\text{SO}_2}$ ), т	10650	195
Средняя плотность выбросов $\text{SO}_2$ , т/ $\text{км}^2$	30,3	1,4
Выпадение сульфат-ионов на территории города (в пересчете на $\text{SO}_2$ ) ( $P_{\text{SO}_4^{2-}}$ ), т	186,6	10,5
Доля $\text{SO}_2$ , переходящего в сульфаты, % от выброса ( $\beta$ )	1,8	5,4
Вклад дальнего переноса, % от выпадения	4,5	30,0
Доля $\text{SO}_2$ , переходящего в сульфаты с учетом $P_{\text{SO}_4^{2-}}^{\text{д.п.}}$	1,7	4,0

Оценка некоторых характеристик образования и выпадения сульфатов в городах Прибайкалья

Поступление сульфатов извне в процентах от общего выпадения ( $P'$ ) составляет для г. Иркутска – 4,5%, для г. Слюдянки – 30%. Следует отметить, что расчеты величины  $P'$  с использованием моделей рассеивания для Иркутска дают разброс значений ± 10–15% [5, 11].

Различие в оценках параметра  $\beta$  обусловлено следующими основными факторами: плотность и средняя высота выброса  $\text{SO}_2$  в Иркутске намного выше и, соответственно, в расчет принимается меньшая территория рассеивания; в г. Слюдянке вынос примесей за пределы локальной зоны препятствуют повышенные формы рельефа, а также местные циркуляции, возникающие под влиянием оз. Байкал.

По данным снегосъемки поток на подстилающую поверхность вторичного аэрозоля (сульфатов) составляет 6–8% от расчетного выпадения первичного аэрозоля (летучей золы).

Таким образом, проведение специализированной снегосъемки и анализ ее результатов на примере гг. Иркутск и Слюдянка позволяют приблизительно определить долю первичных выбросов  $\text{SO}_2$  ( $\beta$ ), превращающихся в пределах рассматриваемой территории во вторичный аэрозоль. Для ориентировочной оценки вклада дальнего переноса в загрязнение городов рекомендуется использовать осредненные величины выпадения сульфатов в нескольких непромышленных точках региона.

1. Зыков С.В., Садовский А.П., Олькин С.Е., Ранута В.Ф. Об эпидемиологических последствиях химического загрязнения окружающей среды // Бюл. СО РАМН, 2000. № 3–4. С. 30–40.
2. Региональный экологический атлас / А.Р. Батуев, А.В. Белов, В.В. Воробьев, Б.А. Богоявленский. Новосибирск: Изд-во СО РАН, 1998. 321 с.
3. Моложникова Е.В., Кучменко Е.В., Нецветаева О.Г., Кобелева Н.А. Анализ механизмов формирования ионного состава атмосферных осадков юга Восточной Сибири // Оптика атмосф. и океана. 2003. Т. 16. № 5–6. С. 500–503.
4. User's Guide for the Industrial Source Complex (ISC3) Dispersion Models, EPA-454/B-95-003a, U.S. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, North Carolina, 1995. 38 р.
5. Стратегия экологически чистого энергоснабжения региона озера Байкал: Заключительный отчет проекта ТАСИС № ESIB 9304. Иркутск: СЭИ СО РАН, 1997. 198 с.
6. Сокращение вредных выбросов от котельных г. Слюдянки: Заключительный отчет по проекту SEPS. Иркутск: ИСЭМ СО РАН, 2002. 78 с.
7. Сборник методик по расчету выбросов в атмосферу загрязняющих веществ различными производствами. Л.: Гидрометеоиздат, 1986. 183 с.
8. Филиппов С.П., Павлов П.П., Кейко А.В., Горшков А.Г., Белых Л.И. Экологические характеристики теплоисточников малой мощности. Препр. / ИСЭМ СО РАН (Иркутск). 1999. № 5. 48 с.
9. Мониторинг трансграничного переноса загрязняющих воздух веществ / Ю.А. Израэль, И.М. Назаров, Ш.Д. Фридман, М.В. Гальперин, А.Я. Прессман, А.Г. Рябощапко, Ц.Д. Витков. Л.: Гидрометеоиздат, 1987. 303 с.

10. Draxler R.R., Hess G.D. Descriptio of the HYSPLIT-4 modeling system. US Environm. Protection Agency Technical Memorandum ERL ARL.
11. Казимировская Е.В. Оценка воздействия объектов теплоэнергетики на воздушный бассейн Восточной Сибири // Геогр. и природ. ресурсы. 1998. № 4. С. 52–58.

**E.V. Molozhnikova, E.V. Kuchmenko. Estimation of some characteristics of sulfate formation and deposition in cities of the Baikal region.**

Development of power system requires evaluation of the primary emissions of SO<sub>2</sub> converting into the secondary aerosol (sulfates) in the considered area (a local zone). As a first approximation, the tentative estimations of conversion and deposition of sulful-bearing compounds can be obtained on the basis of data on the chemical analysis of snow cover samples taken at the end of the winter period. The technique was developed using the data of detailed snow sampling at the territory of Irkutsk for four years (2000–2003) and in Slyudyanka and its neighborhoods for two years (2002–2003). The integral rates of deposition for sulfur-bearing compounds were determined and proved to be essentially different in winter in the Baikal region from the values of similar parameters in Europe.

The data on the background pollution of precipitation is shown to be useful for determination of the contribution of long-range transport to sulfate deposition on the urban territory.