

## Анализ наземных спектроскопических измерений содержания CO<sub>2</sub> в Петергофе

А. А. Никитенко, Г. М. Неробелов, Ю. М. Тимофеев, А. В. Поберовский

*Санкт-Петербургский государственный университет  
Санкт-Петербург, 199034, Россия  
E-mail: nikki\_nic@mail.ru*

Регулярный мониторинг антропогенных эмиссий диоксида углерода CO<sub>2</sub> в мегаполисах планеты — актуальная задача, поскольку крупные города ответственны за ~70 % антропогенных эмиссий CO<sub>2</sub> на Земле. В работе анализируются возможности количественных оценок антропогенного вклада Санкт-Петербурга в эмиссии CO<sub>2</sub> на основе анализа спектроскопических измерений в Петергофе с использованием данных стационарного инфракрасного (ИК) фурье-спектрометра Bruker 125HR в период 2018–2019 гг. Анализ измерений содержания CO<sub>2</sub> при различных направлениях ветра показал, что антропогенный вклад Санкт-Петербурга составляет 1,5–5,3 ppm в терминах среднего отношения смеси для сухой атмосферы. Полученные оценки хорошо согласуются с независимыми и высокоточными оценками антропогенных вкладов в рамках проведения программы ЕММЕ в марте–апреле 2019 г. Для практического использования регулярных измерений общего содержания (ОС) CO<sub>2</sub> в Петергофе для оценки городских эмиссий газа необходимо существенно повысить точность оценок антропогенного вклада. Этого можно добиться при использовании дополнительных дифференциальных измерений ОС CO<sub>2</sub> с помощью стационарного прибора и мобильного фурье-спектрометра Bruker EM27/SUN.

**Ключевые слова:** антропогенные эмиссии CO<sub>2</sub>, мониторинг, вариация CO<sub>2</sub>, наземные спектроскопические измерения, валидация, спутниковые измерения, дифференциальный метод

Одобрена к печати: 03.12.2021

DOI: 10.21046/2070-7401-2021-18-6-265-272

### Введение

Известно, что крупные города Земли ответственны за ~70 % антропогенных эмиссий важнейшего антропогенного парникового газа — диоксида углерода (CO<sub>2</sub>) (World..., 2008). Соответственно, мониторинг антропогенных эмиссий CO<sub>2</sub> в мегаполисах планеты становится актуальной задачей ближайшего будущего и должен быть организован глобально и на регулярной основе. Независимая качественная информация об эмиссиях CO<sub>2</sub> с территорий городов позволит контролировать выполнение международных соглашений по сокращению выбросов парниковых газов и верифицировать существующие национальные инвентаризационные базы эмиссий. В последние десятилетия всё более широко используются методы оценки эмиссий CO<sub>2</sub> (т. е. количество выбрасываемого газа с определённой площади за единицу времени), основанные на наземных и спутниковых спектроскопических измерениях пространственно-временных вариаций общего содержания CO<sub>2</sub> и использовании численных моделей атмосферного переноса (A Guidebook..., 2018). Спутниковые приборы тщательно калибруются, также калибруются и получаемые от них данные о содержании CO<sub>2</sub> и валидируются с помощью наземных и самолётных измерений в рамках международной системы наблюдений TCCON (*англ.* Total Carbon Column Observing Network) (Wunch et al., 2011). На следующем этапе данные спутниковых измерений пространственно-временных вариаций содержания CO<sub>2</sub> используются для решения обратной задачи атмосферного переноса — определения антропогенных эмиссий мегаполисов (Enting, 2002).

Качество данных об эмиссиях CO<sub>2</sub>, полученных на основе спутниковых измерений, зависит от многих факторов (точности измерений содержания CO<sub>2</sub>, качества используемой априорной информации, численной модели атмосферного переноса и т. д.), и они также должны валидироваться с помощью независимых и высокоточных измерений. К подобным можно

отнести наземные измерения различного типа (локальные и дистанционные, стационарные и мобильные и т. д.), с помощью которых можно оценить городской антропогенный вклад в содержание CO<sub>2</sub>. Примеры таких измерений приведены, например, в работах (Тимофеев и др., 2020а; Makarova et al., 2021).

Цель настоящего исследования заключается в определении антропогенного вклада эмиссий CO<sub>2</sub> мегаполиса Санкт-Петербурга на основе анализа данных наземных спектроскопических измерений содержания CO<sub>2</sub>, проведённых в Петергофе (Санкт-Петербургский государственный университет (СПбГУ)) в период 2018–2019 гг.

## Методика исследования

Спектроскопические наземные измерения общего количества молекул CO<sub>2</sub> в атмосферном столбе или общего содержания (ОС) CO<sub>2</sub> проводятся на кафедре физики атмосферы СПбГУ в Петергофе (Санкт-Петербург) с 2009 г. (Ракитин и др., 2013; Timofeyev et al., 2016). Долговременные наземные измерения ОС CO<sub>2</sub> использовались для исследований временных вариаций ОС CO<sub>2</sub> и определения их долговременных трендов. Благодаря данным наземных спектроскопических измерений и удалённости Петергофа от антропогенного воздействия Санкт-Петербурга (расстояние от центра города около 30 км) можно получить оценки антропогенного вклада мегаполиса в содержание CO<sub>2</sub> и в дальнейшем — эмиссий газа. Вклад может быть оценён при помощи измерений ОС газа в загрязнённом городом и фоновой воздушных массах анализом зависимости этих данных от направления ветра. Определяя разность между содержаниями CO<sub>2</sub> в загрязнённом и фоновом воздухе можно оценить городской вклад (или антропогенный вклад города) в ОС CO<sub>2</sub> ( $\Delta\text{CO}_2 = \text{CO}_{2\text{загрязн}} - \text{CO}_{2\text{фон}}$ ).

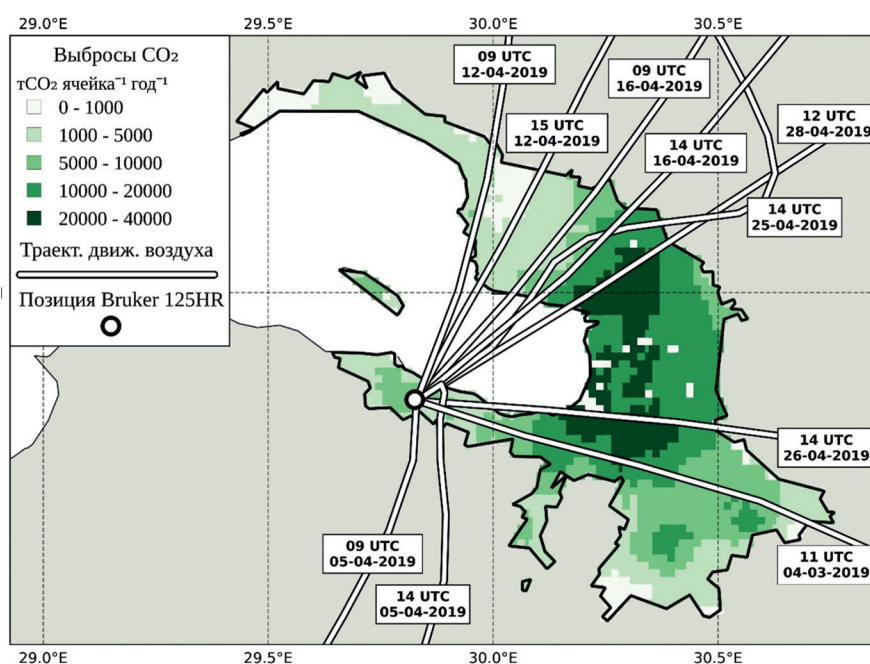
Наземные спектроскопические измерения ОС CO<sub>2</sub> в Петергофе проводятся на основе регистрации спектров солнечного инфракрасного (ИК) излучения с помощью фурье-спектрометра высокого разрешения Bruker 125HR со спектральным разрешением 0,005 см<sup>-1</sup> (Тимофеев и др., 2019). В работах (Тимофеев и др., 2020б, 2021) анализировались информационные возможности наземного ИК-спектроскопического метода и предложена методика определения элементов вертикального профиля содержания CO<sub>2</sub> — содержания в тропосфере и стратосфере. Исследования погрешностей определения содержания CO<sub>2</sub> в различных слоях при использовании отличающихся интервалов спектра солнечного излучения позволили выбрать диапазоны вблизи 2600 см<sup>-1</sup> с минимальной погрешностью определения содержания CO<sub>2</sub> в ~0,65 % (~2,7 ppm в единицах среднего отношения смеси газа для сухой атмосферы). Под средним отношением смеси понимается отношение общего количества молекул газа в атмосферном столбе ко всему количеству молекул сухого воздуха (XCO<sub>2</sub>). Приведённое значение случайной погрешности — 2,7 ppm — относится к единичным измерениям. В течение дня количество измерений составляло от 2 до 18, и использование среднесуточных данных приводит к снижениям случайной погрешности до 0,6–0,9 ppm (0,1–0,2 %). Именно эти данные использовались в настоящей работе. Систематические погрешности при оценке разности между измерениями в загрязнённой и фоновой воздушных массах не оказывают заметного влияния на результаты оценок.

Расчёты ОС CO<sub>2</sub> из зарегистрированного солнечного ИК-излучения выполнялись с помощью программного обеспечения PROFFIT (Hase et al., 2004). Для отбора качественных спектральных измерений в Петергофе использовалась методика, оптимизированная для научной измерительной станции St. Petersburg (Virolainen, 2018; Virolainen et al., 2020).

Для каждого дня спектроскопических измерений была подобрана информация по направлению и скорости ветра из данных метеорологического реанализа ERA5 (<https://www.ecmwf.int/en/forecasts/datasets/reanalysis-datasets/era5>). Чтобы выбрать углы направления ветра, при которых по наземным измерениям ОС CO<sub>2</sub> в Петергофе можно зафиксировать максимальный антропогенный вклад Санкт-Петербурга, были проведены расчёты этих вкладов на основе инвентаризационной базы данных антропогенных эмиссий CO<sub>2</sub> ODIAC (*англ.* Open-source Data Inventory for Anthropogenic CO<sub>2</sub>) (Oda, Maksyutov, 2011) и простой боксовой модели (Тимофеев и др., 2020а; Makarova et al., 2021). Расчёты показали, что максимальный вклад

мегаполиса в ОС CO<sub>2</sub> в Петергофе наблюдается в диапазоне направлений ветра 20–150°. Минимальный вклад антропогенных эмиссий (для оценок фоновых содержаний ОС CO<sub>2</sub>) фиксируется для углов 330–25 и 150–260°. Соответственно, из всего набора спектроскопических измерений ОС CO<sub>2</sub> преимущественно были выбраны те, для которых по данным ERA5 наблюдались направления ветра примерно 25–150°.

Затем на основе отобранных измерений XCO<sub>2</sub> в загрязнённом мегаполисом воздухе и фоновых значений были проведены оценки антропогенного вклада Санкт-Петербурга в ОС CO<sub>2</sub> для рассматриваемого периода. Фоновые значения были определены как усреднённые величины для направлений ветра, соответствующих переносу воздушных масс, таким образом, что вероятность зафиксировать вклад Санкт-Петербурга по измерениям в Петергофе была минимальна (т. е. для углов 330–25 и 150–260°).



Траектории движения воздушных масс в дни измерений в Петергофе по данным HYSPLIT для высоты 100 м над поверхностью земли и карта эмиссий по ODIAC

Также для оценки вероятного движения воздушных масс в рассматриваемые дни использовалась модель HYSPLIT (*англ.* Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model) (Stein et al., 2015), которая позволяет рассчитать траектории движения частиц в атмосфере. С её помощью проводилось обратное во времени моделирование атмосферного переноса из пункта проведения измерений в каждый из выбранных дней. Таким образом, были получены вероятные траектории переноса воздушных масс, каждая из которых начиналась за пределами города (начальный момент времени) и заканчивалась в Петергофе (конечный момент времени) (*рисунок*).

## Результаты

Диапазон антропогенного вклада в ОС CO<sub>2</sub> за исследуемый период зависел от конкретной траектории распространения воздушных масс (т. е. от локальных эмиссий CO<sub>2</sub> различных частей Санкт-Петербурга), скорости ветра и длины трассы, на которой воздушная масса находилась под антропогенным влиянием. На *рисунке* приведены примеры траекторий движения атмосферных масс для различных рассмотренных дней наблюдений (даты и часы приведены в виде подписей) и карта пространственного распределения эмиссий CO<sub>2</sub> по данным базы

ODIAC. Из рисунка следует, что в различные дни наблюдений траектории движения воздушных масс проходили через разные районы мегаполиса, где, по данным ODIAC, представлены отличающиеся эмиссии CO<sub>2</sub>. Например, согласно *рисунку*, большинство траекторий проходило через северную часть города и почти ни одной — через центральную. Вероятно, приведённые далее вклады Санкт-Петербурга в ОС CO<sub>2</sub> относятся к северной и южной частям города.

В *таблице* приведены оценки вклада Санкт-Петербурга в ОС CO<sub>2</sub> на основе наземных спектроскопических измерений в Петергофе (СКО — среднеквадратическое отклонение). Усреднённые значения антропогенного вклада Санкт-Петербурга в ОС CO<sub>2</sub> по рассматриваемому периоду времени составляют около 3 ppm при использовании фоновых величин.

Из 14 дней измерений в Петергофе семь дней, приведённых в *таблице*, совпадают с периодом высокоточных измерений эксперимента ЕММЕ (*англ.* Emission Monitoring Mobile Experiment), погрешности которых составляли около 0,025 % (Makarova et al., 2021). По данным ЕММЕ, диапазон вариации антропогенного вклада CO<sub>2</sub> составлял 0,05–4,46 ppm, тогда как в измерениях из текущего исследования с сентября 2018 г. по июнь 2019 г. — 1,5–5,3 ppm, что говорит о хорошем согласии указанных двух типов измерений. Подобные вклады городов в ОС CO<sub>2</sub> были измерены для различных мегаполисов. В среднем они составляли 0,5–2,0 ppm, но могли достигать 8 ppm (Лос-Анжелес, США) (Kort et al., 2012). Полного совпадения антропогенных вкладов двух типов оценки не должно быть, так как траектории измерения использовались разные.

Кроме того, мы провели дополнительный анализ локальных измерений приземного отношения смеси CO<sub>2</sub> на станции Петергоф (газоанализатор Los Gatos Research) (Фока и др., 2019). Для этого мы оценили временное изменение приземного отношения смеси CO<sub>2</sub> в Петергофе при направлениях ветра со стороны Санкт-Петербурга и противоположных ему. Анализ показал, что локальные измерения CO<sub>2</sub> в Петергофе достаточно чётко определяют присутствие загрязнённых (приходящих с Санкт-Петербурга) и фоновых атмосферных масс. Загрязнённые массы характеризуются высокими значениями отношения смеси (до ~500 ppm) и большими вариациями (до 30–50 ppm и более) за относительно короткие промежутки времени (несколько часов), а фоновые — малыми значениями (~415 ppm) и вариациями (~5 ppm).

Оценки антропогенного вклада Санкт-Петербурга относительно фоновых значений

Дата	Антропогенный вклад, ppm
07.09.2018	2,6
29.10.2018	3,3
24.01.2019	2,2
21.02.2019	2,8
04.03.2019	2,1
12.04.2019	3,4
16.04.2019	4,0
25.04.2019	1,5
26.04.2019	5,3
28.04.2019	4,0
30.04.2019	1,6
06.06.2019	3,1
23.07.2019	3,3
26.07.2019	1,7
Среднее/СКО	3,0/2,3

## Обсуждение результатов

Сегодня становится всё более популярным дифференциальный спектроскопический (ДС) метод определения антропогенных эмиссий CO<sub>2</sub> с территорий крупных городов. Он основан на использовании одновременных измерений по крайней мере двух взаимно калиброванных приборов и анализе разностей между наземными измерениями ОС CO<sub>2</sub> в наветренной (чистой) и подветренной (загрязнённой) частях города. Данная разность может быть интерпретирована как антропогенный вклад города в содержание газа, из чего можно получить оценки эмиссий. Весной 2019 г. исследователи из СПбГУ с немецкими коллегами участвовали в совместном эксперименте ЕММЕ, в рамках которого использовались два мобильных фурье-спектрометра Bruker EM27/SUN с применением ДС-метода для оценки удельных эмиссий CO<sub>2</sub> (с единичной площади) и других газов для территории Санкт-Петербурга (см. работы (Ionov et al., 2021; Makarova et al., 2021)).

Описанный метод на основе одновременных измерений мобильными спектрометрами типа Bruker EM27/SUN сложно реализовать из-за высокой стоимости приборов и требуемой квалификации участников измерений. Однако современные исследования продемонстрировали успешное применение одного измерительного спутникового прибора для оценки антропогенного вклада региональных и локальных источников в содержание CO<sub>2</sub> измерением содержания газа в загрязнённом и незагрязнённом воздухе (Nassar et al., 2017; Shekhar et al., 2020). Хотя на основе данных спутникового зондирования высокого пространственного разрешения (например, OCO-2 (*англ.* Orbiting Carbon Observatory 2), до 2 км) можно получить информацию об увеличении содержания CO<sub>2</sub> в различных частях города, спутниковые измерения по сравнению с наземными имеют относительно грубое временное и пространственное покрытие, в особенности для таких небольших объектов (дни, недели, месяцы).

Регулярные данные наземных спектроскопических измерений ОС CO<sub>2</sub> в Петергофе можно использовать для периодического независимого контроля антропогенных эмиссий мегаполиса Санкт-Петербурга. Однако для этого требуется повысить точность регистрации антропогенного вклада. Минимизация погрешности измерений имеет большую значимость, так как величина антропогенного вклада может быть меньше погрешности одного стационарного прибора. Повысить точность оценок антропогенного вклада возможно при использовании дополнительных измерений, например с помощью одного мобильного фурье-спектрометра типа Bruker EM27/SUN. При использовании двух откалиброванных приборов (стационарного и мобильного) погрешности измерений антропогенного вклада CO<sub>2</sub> могут быть снижены более чем на порядок (Makarova et al., 2021). Создание такой системы мониторинга антропогенных эмиссий в городах России (стационарные и мобильные измерения ОС CO<sub>2</sub>) позволит проводить регулярные независимые оценки антропогенных эмиссий CO<sub>2</sub> высокой точности.

## Заключение

Наземные спектроскопические измерения ОС CO<sub>2</sub>, осуществляемые с помощью фурье-спектрометра высокого спектрального разрешения Bruker 125HR в Петергофе (СПбГУ), проанализированы с точки зрения возможности их использования для независимой оценки антропогенных эмиссий CO<sub>2</sub> мегаполиса Санкт-Петербурга. Показано, что для определённых направлений ветра стационарные спектроскопические измерения ОС CO<sub>2</sub> в Петергофе регистрируют антропогенный вклад эмиссий CO<sub>2</sub> мегаполиса, который хорошо согласован с более точными дифференциальными измерениями вклада в рамках программы ЕММЕ. Для практического использования регулярных измерений ОС CO<sub>2</sub> в Петергофе с целью оценки городских эмиссий газа необходимо существенно повысить точность измерений антропогенного вклада. Этого можно добиться при использовании дополнительных дифференциальных измерений ОС CO<sub>2</sub> с помощью стационарного прибора и мобильного фурье-спектрометра Bruker EM27/SUN.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 20-05-00627). Экспериментальные данные получены на оборудовании ресурсного центра СПбГУ «Геомодель».

## Литература

1. Ракитин А. В., Поберовский А. В., Тимофеев Ю. М., Макарова М. В., Конвей Т. Вариации среднего по высоте отношения смеси CO<sub>2</sub> вблизи Санкт-Петербурга // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2013. Т. 49. № 3. С. 298–303. DOI: 10.7868/S0002351513030127.
2. Тимофеев Ю. М., Березин И. А., Виролайнен Я. А., Макарова М. В., Поляков А. В., Поберовский А. В., Филиппов Н. Н., Фока С. Ч. Пространственно-временные вариации содержания CO<sub>2</sub> по данным спутниковых и наземных измерений вблизи Санкт-Петербурга // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2019. Т. 55. № 1. С. 65–72. <https://doi.org/10.31857/S0002-351553165-72>.

3. Тимофеев Ю. М., Неробелов Г. М., Виrolайнен Я. А., Поберовский А. В., Фока С. Ч. (2020а) Оценки антропогенных эмиссий CO<sub>2</sub> мегаполиса Санкт-Петербурга // Докл. РАН. Науки о Земле. 2020. Т. 494. № 1. С. 97–100. DOI: 10.31857/S2686739720090182.
4. Тимофеев Ю. М., Филиппов Н. Н., Поберовский А. В. (2020б) Анализ информативности и вертикального разрешения наземного спектроскопического ИК-метода определения вертикальной структуры CO<sub>2</sub> // Оптика атмосферы и океана. 2020. Т. 33. № 11. С. 836–841. DOI: 10.15372/AOO20201102.
5. Тимофеев Ю. М., Неробелов Г. М., Поберовский А. В., Филиппов Н. Н. Определение содержания CO<sub>2</sub> в тропосфере и стратосфере наземным ИК методом // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2021. Т. 57. № 3. С. 322–333. DOI: 10.31857/S0002351521020115.
6. Фока С. Ч., Макарова М. В., Поберовский А. В., Тимофеев Ю. М. Временные вариации концентрации CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> и CO в пригороде Санкт-Петербурга (Петергоф) // Оптика атмосферы и океана. 2019. Т. 32. № 10. С. 860–866. DOI: 10.15372/AOO20191010.
7. A Guidebook on the Use of Satellite Greenhouse Gases Observation Data to Evaluate and Improve Greenhouse Gas Emission Inventories. 1<sup>st</sup> ed. / eds. Matsunaga T., Maksyutov S.; Satellite Observation Center. National Institute for Environmental Studies. Japan, 2018. 129 p.
8. Enting I. G. Inverse Problems in Atmospheric Constituent Transport. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2002. 392 p. <https://doi.org/10.1017/CBO9780511535741>.
9. Hase F., Hannigan J. W., Coffey M. T., Goldman A., Höpfner M., Jones N. B., Rinsland C. P., Wood S. W. Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements // J. Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. 2004. V. 87. P. 25–52. DOI: 10.1016/j.jqsrt.2003.12.008.
10. Ionov D. V., Makarova M. V., Hase F., Foka S. C., Kostsov V. S., Alberti C., Blumenstock T., Warneke T., Virolainen Y. A. The CO<sub>2</sub> integral emission by the megacity of St Petersburg as quantified from ground-based FTIR measurements combined with dispersion modelling // Atmospheric Chemistry and Physics. 2021. V. 21. Iss. 14. P. 10939–10963. <https://doi.org/10.5194/acp-21-10939-2021>.
11. Kort E. A., Frankenberg C., Miller C. E., Oda T. Space-based observations of megacity carbon dioxide // Geophysical Research Letters. 2012. V. 39. Art. No. L17806. DOI: 10.1029/2012GL052738.
12. Makarova M. V., Alberti C., Ionov D. V., Hase F., Foka S. C., Blumenstock T., Warneke T., Virolainen Ya. A., Kostsov V. S., Frey M., Poberovskii A. V., Timofeyev Yu. M., Paramonova N. 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., Mikhailov E. F. Emission Monitoring Mobile Experiment (EMME): an overview and first results of the St. Petersburg megacity campaign-2019 // Atmospheric Measurement Techniques. 2021. V. 14. P. 1047–1073. <https://doi.org/10.5194/amt-14-1047-2021>.
13. Nassar R., Hill T. G., McLinden C. A., Wunch D., Jones D. B. A., Crisp D. Quantifying CO<sub>2</sub> emissions from individual power plants from space // Geophysical Research Letters. 2017. V. 44. Iss. 19. P. 10045–10053. <https://doi.org/10.1002/2017GL074702>.
14. Oda T., Maksyutov S. A very high-resolution (1 km × 1 km) global fossil fuel CO<sub>2</sub> emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights // Atmospheric Chemistry and Physics. 2011. V. 11. P. 543–556. <https://doi.org/10.5194/acp-11-543-2011>.
15. Shekhar A., Chen J., Paetzold J. C., Dietrich F., Zhao X., Bhattacharjee S., Ruisinger V., Wofsy S. C. Anthropogenic CO<sub>2</sub> emissions assessment of Nile Delta using XCO<sub>2</sub> and SIF data from OCO-2 satellite // Environmental Research Letters. 2020. V. 15. Iss. 9. DOI: 10.1088/1748-9326/ab9cfe.
16. Stein A. F., Draxler R. R., Rolph G. D., Stunder B. J. B., Cohen M. D., Ngan F. NOAA's HYSPLIT Atmospheric Transport and Dispersion Modeling System // Bull. American Meteorological Society. 2015. V. 96. Iss. 12. P. 2059–2077. DOI: 10.1175/BAMS-D-14-00110.1.
17. Timofeyev Y., Virolainen Y., 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. Molecular Spectroscopy. 2016. V. 323. P. 2–14. DOI: 10.1016/j.jms.2015.12.007.
18. Virolainen Ya. A. Methodical Aspects of the Determination of Carbon Dioxide in Atmosphere Using FTIR Spectroscopy // J. Applied Spectroscopy. 2018. V. 85. Iss. 3. P. 462–469. <https://doi.org/10.1007/s10812-018-006>.
19. Virolainen Y. A., Nikitenko A. A., Timofeyev Y. M. Intercalibration of Satellite and Ground-Based Measurements of CO<sub>2</sub> Content at the NDACC St. Petersburg Station // J. Applied Spectroscopy. 2020. V. 87. Iss. 5. P. 888–892. DOI: 10.1007/s10812-020-01085-0.
20. World Energy Outlook. International Energy Agency, 2008. 578 p.
21. Wunch D., Toon G. C., Blavier J.-F. L., Washenfelder R. A., Notholt J., Connor B. J., Griffith D. W. T., Sherlock V., Wennberg P. O. The Total Carbon Column Observing Network // Philosophical Trans. Royal Society A. 2011. V. 369. P. 2087–2112. <http://dx.doi.org/10.1098/rsta.2010.0240>.

## Analysis of ground-based spectroscopic measurements of CO<sub>2</sub> in Peterhof

A. A. Nikitenko, G. M. Nerobelov, Yu. M. Timofeev, A. V. Poberovsky

*Saint Petersburg State University, Saint Petersburg 199034, Russia*

*E-mail: nikki\_nic@mail.ru*

Regular monitoring of CO<sub>2</sub> anthropogenic emissions by megacities of our planet is very important since large cities contribute up to ~70 % of total anthropogenic CO<sub>2</sub> emissions on Earth. In the work, the possibilities of quantitative assessment of Saint Petersburg anthropogenic contribution to CO<sub>2</sub> emissions are studied by the analysis of spectroscopic measurements in Peterhof by stationary IR Fourier-spectrometer Bruker 125HR in 2018–2019. Analysis of the measurements of CO<sub>2</sub> content during different wind directions has demonstrated that the Saint Petersburg anthropogenic contribution constituted 1.5–5.3 ppm in terms of average mixing ratio in dry atmosphere. The estimates obtained fit well with independent and highly accurate data on anthropogenic contribution calculated in the framework of EMME campaign in March–April 2019. To implement regular measurements of CO<sub>2</sub> total content in Peterhof in some practical applications for emission estimates, the accuracy of the anthropogenic contribution estimation has to be increased significantly. This can be achieved due to additional differential measurements of CO<sub>2</sub> total content using a stationary instrument and mobile Fourier-spectrometer Bruker EM27/SUN.

**Keywords:** CO<sub>2</sub> anthropogenic emissions, monitoring, CO<sub>2</sub> variation, ground-based spectroscopic measurements, validation, satellite measurements, differential method

Accepted: 03.12.2021

DOI: 10.21046/2070-7401-2021-18-6-265-272

### References

1. Rakitin A. V., Poberovskii A. V., Timofeev Yu. M., Makarova M. V., Conway T. J., Variations in the column-average dry-air mole fractions of CO<sub>2</sub> in the vicinity of St. Petersburg, *Izvestiya. Atmospheric and Oceanic Physics*, 2013, Vol. 49, No. 3, pp. 271–275.
2. Timofeev Y. M., Berezin I. A., Virolainen Y. A., Makarova M. V., Polyakov A. V., Poberovsky A. V., Filippov N. N., Foka S. Ch., Spatial-temporal CO<sub>2</sub> variations near St. Petersburg based on satellite and ground-based measurements, *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics*, 2019, Vol. 55, No. 1, pp. 59–64.
3. Timofeev Yu. M., Nerobelov G. M., Virolainen Ya. A., Poberovskii A. V., Foka S. Ch. (2020a), Estimates of CO<sub>2</sub> anthropogenic emissions from Saint-Petersburg megacity, *Doklady RAN, Nauki o Zemle*, 2020, Vol. 494, No. 1, pp. 97–100 (in Russian), DOI: 10.31857/S2686739720090182.
4. Timofeev Yu. M., Filippov N. N., Poberovskii A. V. (2020b), Analysis of the information content and vertical resolution of the ground-based spectroscopic IR method for the CO<sub>2</sub> vertical structure retrieval, *Optika atmosfery i okeana*, 2020, Vol. 33, No. 11, pp. 836–841 (in Russian), DOI: 10.15372/AOO20201102.
5. Timofeev Y. M., Nerobelov G. M., Poberovskii A. V., Filippov N. N., Determination both tropospheric and stratospheric CO<sub>2</sub> contents using a ground-based ir spectroscopic method, *Izvestiya. Atmospheric and Oceanic Physics*, 2021, Vol. 57, No. 3, pp. 286–296.
6. Foka S. Ch., Makarova M. V., Poberovsky A. V., Timofeev Yu. M., Temporal variations in CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and CO concentrations in Saint Petersburg suburb (Peterhof), *Optika atmosfery i okeana*, 2019, Vol. 32, No. 10, pp. 860–866 (in Russian), DOI: 10.15372/AOO20191010.
7. *A Guidebook on the Use of Satellite Greenhouse Gases Observation Data to Evaluate and Improve Greenhouse Gas Emission Inventories*, 1<sup>st</sup> ed., Matsunaga T., Maksyutov S. (eds.), Satellite Observation Center, National Institute for Environmental Studies, Japan, 2018, 129 p.
8. Enting I. G., *Inverse Problems in Atmospheric Constituent Transport*, Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2002, 392 p., <https://doi.org/10.1017/CBO9780511535741>.
9. Hase F., Hannigan J. W., Coffey M. T., Goldman A., Hopfner M., Jones N. B., Rinsland C. P., Wood S. W., Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements, *J. Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2004, Vol. 87, pp. 25–52, DOI: 10.1016/j.jqsrt.2003.12.008.
10. Ionov D. V., Makarova M. V., Hase F., Foka S. C., Kostsov V. S., Alberti C., Blumenstock T., Warneke T., Virolainen Y. A., The CO<sub>2</sub> integral emission by the megacity of St. Petersburg as quantified from ground-

- based FTIR measurements combined with dispersion modelling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, Vol. 21, Issue 14, pp. 10939–10963, <https://doi.org/10.5194/acp-21-10939-2021>.
11. Kort E.A., Frankenberg C., Miller C.E., Oda T., Space-based observations of megacity carbon dioxide, *Geophysical Research Letters*, 2012, Vol. 39, Art. No. L17806, DOI: 10.1029/2012GL052738.
  12. Makarova M.V., Alberti C., Ionov D.V., Hase F., Foka S.C., Blumenstock T., Warneke T., Virolainen Ya.A., Kostsov V.S., Frey M., Poberovskii A.V., Timofeyev Yu.M., Paramonova N.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., Mikhailov E.F., Emission Monitoring Mobile Experiment (EMME): an overview and first results of the St. Petersburg megacity campaign-2019, *Atmospheric Measurement Techniques*, 2021, Vol. 14, pp. 1047–1073, <https://doi.org/10.5194/amt-14-1047-2021>.
  13. Nassar R., Hill T.G., McLinden C.A., Wunch D., Jones D.B.A., Crisp D., Quantifying CO<sub>2</sub> emissions from individual power plants from space, *Geophysical Research Letters*, 2017, Vol. 44, Issue 19, pp. 10045–10053, <https://doi.org/10.1002/2017GL074702>.
  14. Oda T., Maksyutov S., A very high-resolution (1 km × 1 km) global fossil fuel CO<sub>2</sub> emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, Vol. 11, pp. 543–556, <https://doi.org/10.5194/acp-11-543-2011>.
  15. Shekhar A., Chen J., Paetzold J.C., Dietrich F., Zhao X., Bhattacharjee S., Ruisinger V., Wofsy S.C., Anthropogenic CO<sub>2</sub> emissions assessment of Nile Delta using XCO<sub>2</sub> and SIF data from OCO-2 satellite, *Environmental Research Letters*, 2020, Vol. 15, Issue 9, DOI: 10.1088/1748-9326/ab9cfe.
  16. Stein A.F., Draxler R.R., Rolph G.D., Stunder B.J.B., Cohen M.D., Ngan F., NOAA's HYSPLIT Atmospheric Transport and Dispersion Modeling System, *Bull. American Meteorological Society*, 2015, Vol. 96, Issue 12, pp. 2059–2077, DOI: 10.1175/BAMS-D-14-00110.1.
  17. Timofeyev Y., Virolainen Y., 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. Molecular Spectroscopy*, 2016, Vol. 323, pp. 2–14, DOI: 10.1016/j.jms.2015.12.007.
  18. Virolainen Ya.A., Methodical Aspects of the Determination of Carbon Dioxide in Atmosphere Using FTIR Spectroscopy, *J. Applied Spectroscopy*, 2018, Vol. 85, Issue 3, pp. 462–469, <https://doi.org/10.1007/s10812-018-06>.
  19. Virolainen Y.A., Nikitenko A.A., Timofeyev Y.M., Intercalibration of Satellite and Ground-Based Measurements of CO<sub>2</sub> Content at the NDACC St. Petersburg Station, *J. Applied Spectroscopy*, 2020, Vol. 87, Issue 5, pp. 888–892, DOI: 10.1007/s10812-020-01085-0.
  20. *World Energy Outlook*, International Energy Agency, 2008, 578 p.
  21. Wunch D., Toon G.C., Blavier J.-F.L., Washenfelder R.A., Notholt J., Connor B.J., Griffith D.W.T., Sherlock V., Wennberg P.O., The Total Carbon Column Observing Network, *Philosophical Trans. Royal Society A*, 2011, Vol. 369, pp. 2087–2112, <http://dx.doi.org/10.1098/rsta.2010.0240>.