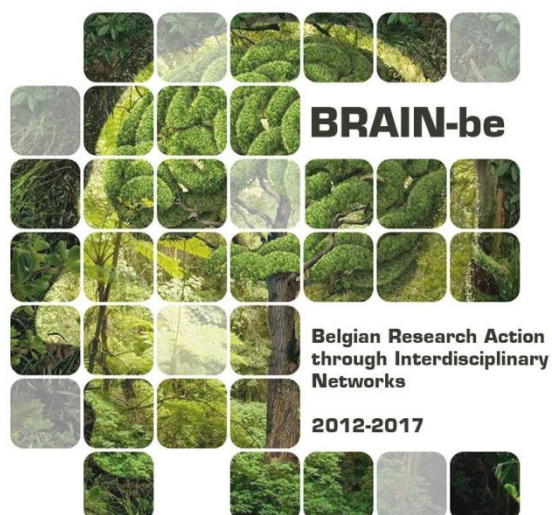


CHASE

Het ontrafelen van fijnstofchemie in Dronning Maud Land: van atmosfeer tot sneeuwoppervlak

Alexander Mangold (RMI) – Andy Delcloo (RMI) – Herman Van Langenhove (UGent) –
Kristof Demeestere (UGent) – Christophe Walgraeve (UGent) – Nadine Mattielli (ULB)
– Philippe Claeys (VUB) – Karen De Causmaecker (RMI) – Preben Van Overmeiren
(UGent) – Stefania Gili (ULB) – Sibylle Boxho (ULB)

Axis 2: Geosystems, universe and climate



NETWORK PROJECT

CHASE

**Het ontrafelen van fijnstofchemie in Dronning Maud Land: van
atmosfeer tot sneeuwoppervlak**

Contract - BR/175/A2/CHASE

FINAL REPORT

PROMOTORS:

Dr. Alexander Mangold (RMI)
 Dr. Andy Delcloc (RMI)
 Prof. Dr. Herman Van Langenhove (UGent)
 Prof..Dr. Kristof Demeestere (UGent)
 Prof. Dr. Christophe Walgraeve (UGent)
 Prof. Dr. Nadine Mattielli (ULB)
 Prof. Dr. Philippe Claeys (VUB)

AUTHORS:

Dr. Alexander Mangold (RMI) – Dr. Andy Delcloc (RMI)
 Prof. Dr. Herman Van Langenhove (UGent)
 Prof. Dr. Kristof Demeestere (UGent) – Prof. Dr. Christophe Walgraeve (UGent)
 Prof. Dr. Nadine Mattielli (ULB) – Prof. Dr. Philippe Claeys (VUB)
 Dr. Karen De Causmaecker (RMI) – MSc Preben Van Overmeiren (UGent)
 Dr. Stefania Gili (ULB) – MSc Sibylle Boxho (ULB).





Published in 2022 by the Belgian Science Policy Office
WTCIII
Simon Bolivarlaan 30 Boulevard Simon Bolivar
B-1000 Brussels
Belgium
Tel: +32 (0)2 238 34 11
<http://www.belspo.be>
<http://www.belspo.be/brain-be>

Contact person: Maaïke Vancauwenberghe
Tel: +32 (0)2 238 36 78

Neither the Belgian Science Policy Office nor any person acting on behalf of the Belgian Science Policy Office is responsible for the use which might be made of the following information. The authors are responsible for the content.

No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording, or otherwise, without indicating the reference :

Mangold A., Delcloo A., Van Langenhove H., Demeestere K., Walgraeve C., Mattielli N., Claeys Ph., De Causmaecker K., Overmeiren P., Gili S., Boxho S. ***Het ontrafelen van fijnstofchemie in Dronning Maud Land: van atmosfeer tot sneeuwoppervlak.*** Final Report. Brussels : Belgian Science Policy Office 2022 (BRAIN-be - (Belgian Research Action through Interdisciplinary Networks))

ABSTRACT

Context van het onderzoek

De fluxen en bronnen van atmosferische deeltjes en gasvormige verbindingen op Antarctica en de daarmee verbonden Zuidelijke Oceaan zijn slecht gekarakteriseerd, in het bijzonder de deeltjeschemie. Antarctica wordt beschouwd als het gebied op aarde dat het best gevrijwaard blijft van antropogene emissies. Alhoewel, het effect van antropogene deeltjes en verontreinigende stoffen in de lucht zou echter aanzienlijk groter kunnen zijn dan verwacht. Bovendien blijft een gedetailleerd begrip van de huidige atmosferische transportroutes van deeltjes en van (semi-)vluchtige organische verbindingen ((S)-VOC's) van bron tot depositie op Antarctica essentieel om de biogeochemische cycli en het relatieve belang van natuurlijke en antropogene verbindingen te documenteren, die momenteel niet goed gekarakteriseerd zijn. Bovendien fungeren atmosferische deeltjes ook als wolkencondensatiekernen en ijskernen en spelen zij hierbij een cruciale rol bij de vorming van wolken, waarbij deze zowel de stralingseigenschappen als de neerslag ervan beïnvloeden.

Het CHASE-project zorgde voor gedetailleerde fysisch-chemische analyses van zowel atmosferische deeltjes als deeltjes in oppervlaktesneeuw en van (half-)vluchtige organische verbindingen die werden teruggevonden in de buurt van het Belgische onderzoeksstation Princess Elisabeth (PEA), Dronning Maud Land, Oost-Antarctica (71,95°S, 23,35°E, 1390 m boven zeeniveau). De atmosferische transportroutes van deze deeltjes werden hierbij ook grondig onderzocht met behulp van een dispersiemodel. Dergelijke gedetailleerde studies zijn nog nooit uitgevoerd in de regio waar het Princess Elisabeth-station zich bevindt.

CHASE was gebaseerd op een interdisciplinair onderzoeksteam dat partners samenbracht met een complementair expertise in experimenteel werk op lange termijn, Antarctische onderzoekscampagnes, geavanceerde chemische analyses en in het modelleren van atmosferisch transport en dispersie. Er zijn zowel actieve als passieve monsters genomen van atmosferische deeltjes en van (half)vluchtige organische verbindingen. Actieve bemonstering maakte een hogere tijdsresolutie van de monsters tijdens de zomer mogelijk. Met passieve bemonstering konden tijdgewogen gemiddelde concentraties over een langere periode worden verkregen en was het ook mogelijk om monsters in afgelegen gebieden te bekomen. De locatie van de passieve bemonsteringsplaatsen langs een transect van het Antarctisch plateau naar de kust maakte het mogelijk om monsters te verzamelen die beïnvloed werden door verschillende brongebieden.

Doelstellingen

De doelstellingen van CHASE waren:

- Het opbouwen van een unieke database van de organische en anorganische samenstelling van zowel atmosferische als oppervlaktesneeuwdeeltjes alsook van vluchtige organische verbindingen in Dronning Maud Land, Oost-Antarctica.
- Het evalueren van brongebieden, atmosferische transportroutes en seizoensgebonden variaties in Dronning Maud Land, Oost-Antarctica.

- Beter begrijpen hoe de samenstelling van de Antarctische atmosfeer wordt beïnvloed door lagere breedtegraden.
- Het bestaande observatorium op het Princess Elisabeth-station (PEA) valoriseren en een langetermijnmonitoring van de organische en anorganische atmosferische chemie opzetten door middel van passieve bemonstering in de omgeving van PEA.

Conclusies

- De hoeveelheid polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK's) en zuurstofrijkere PAK's in de deeltjesfase bleek verwaarloosbaar. Zeer waarschijnlijk was dit het gevolg van de zeer lage deeltjesconcentratie in de atmosfeer die op PEA werd gemeten. Fluoreen, fenantreen, fluorantheen en pyreen waren de meest voorkomende PAK-verbindingen die in de monsters werden aangetroffen, met concentraties tussen 1 en meer dan 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Voor deze verbindingen werden geen significante verschillen tussen de jaren gevonden.
- Er werden 158 monsters voor de analyse van vluchtige organische stoffen verzameld, waarin ongeveer 65 verbindingen werden geïdentificeerd en zo mogelijk gekwantificeerd. Dit resulteerde in een dataset van meer dan 10000 datapunten en is daarmee de grootste dataset van VOS's en zuurstofhoudende vluchtige organische stoffen, gemeten op Antarctica. We kunnen hieruit besluiten dat aromatische zuurstofverbindingen qua concentratie veruit de belangrijkste groep vormen. Acetofenon, fenol, benzaldehyde en benzoëzuur zijn bekende oxidatieproducten van primaire aromatische verbindingen en zijn aanwezig in concentraties tot 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Voorts vertoonde dimethylsulfon (DMSO₂), een oxidatieproduct van dimethylsulfide (DMS), duidelijk een dalende trend in functie van de afstand van de bemonsteringsplaats tot de oceaan.
- Voor het eerst werden de koolstofisotopenverhoudingen van organische koolstof uit deeltjes (POC) en opgeloste organische koolstof (DOC) bepaald in monsters van oppervlakteneeuw in het PEA-gebied. De lineaire correlatie tussen de DOC-flux en de ssNa⁺-flux gaf aan dat zeezout de belangrijkste bron van DOC was. Dit werd bevestigd door de koolstofisotopenverhouding van de DOC.
- Uit de anorganisch-chemische analyses bleek dat de grote meerderheid, tot 89 %, van de bemonsterde deeltjes kleiner was dan 2 μm en dat tot 50 % van de deeltjes van submicrongrootte was. Er werden vrijwel amper deeltjes met een grootte > 5 μm gedetecteerd. Dit deeltjesgroottepatroon vertoonde geen significant verschil langs de 250 km lange meetdoorsnede van de kust naar het plateau, noch bij de vergelijking van lucht- en oppervlakteneeuwmonsters.
- Voor het eerst zijn monsters verzameld voor de analyse van de concentratie ijskerndeeltjes voor de regio Dronning Maud Land. In vergelijking met studies in andere regio's van Antarctica liggen de aantallen voor PEA aan de lage kant. Dit is een belangrijke bevinding voor modelstudies die kijken naar de invloed van aërosolen op wolkenvorming en neerslag.
- De gehele reeks monsters vertoonde een vergelijkbare mineralogische samenstelling, gedomineerd door aluminosilicaten, silica en Mg-Fe-silicaten, op de voet gevolgd door Fe-dragende aluminosilicaten en ijzer- of titaanoxiden. In veel mindere mate en niet systematisch

waren metaalhoudende deeltjes aanwezig, bestaande uit Cr, Ni, Zn, Cu, Sb, Sn, Tl, Ta, hetgeen wijst op antropogene bronnen. Speciale aandacht werd besteed aan ijzerhoudende deeltjes, aangezien Fe een belangrijke micronutriënt is, essentieel voor de primaire productiviteit in de Australische oceaan. Het voorkomen van Fe-dragende deeltjes bleek wijdverspreid in Oost-Antarctica.

- Op basis van chemische en isotopische analyses van in de oppervlaktesneeuw afgezette deeltjes werd een nieuw statistisch model ontwikkeld, gebaseerd op de gevonden patronen van zeldzame aardelementen. Een bijkomend belangrijk potentieel brongebied voor stofdeeltjes in Oost-Antarctica kon worden geïdentificeerd. Naast de bevestiging dat zuidelijk Zuid-Amerika de beste kandidaat is om de stofsignatuur te verklaren die tijdens koude en warme geologische perioden werd opgetekend, stelt deze studie voor warme perioden een schema voor met ook zuidelijk Afrika als potentieel brongebied.
- Voor het gebied van Oost-Antarctica rond PEA is voor het eerst een klimatologie van de oorsprong van luchtmassa's vastgesteld voor een periode van 11 jaar (2010-2020). Hierbij werd een *k-means* clusteranalyse uitgevoerd en werden er hierbij vier clusters van brongebieden geïdentificeerd. Bronregio's uit Zuid-Amerika, Zuidelijk Afrika en Australië bleken zeer beperkt te zijn. De Zuidelijke Oceaan was een belangrijk brongebied, evenals het Antarctische continent. Voor de belangrijkste luchtmassacluster is het brongebied meestal beperkt tot het gebied boven het Antarctische continent en de gemiddelde hoogte langs de trajecten in deze cluster gaf aan dat deze cluster voornamelijk overeenkwam met lucht die uit de bovenste troposfeer neerdaalde.

Deze bevindingen tonen duidelijk de meerwaarde aan van deze interdisciplinaire aanpak van het CHASE-project, waarbij geavanceerde analysetechnieken, innovatieve bemonsteringsmethoden, deskundigheid in modellering van atmosferisch transport en in Antarctische veldexpedities werden gecombineerd om de complexe atmosferische chemie in afgelegen gebieden onder barre meteorologische omstandigheden te ontrafelen. Hoewel er veel vooruitgang is geboekt, zijn er enkele lacunes vastgesteld die bij toekomstig onderzoek moeten worden aangepakt. Ten eerste zouden, om de potentiële brongebieden nog beter te kunnen onderscheiden, meer monsternames nodig zijn, die meerdere jaren bestrijken met een hogere temporele resolutie tijdens de wintermaanden. Idealiter zouden dergelijke metingen tegelijkertijd bij de kust als op het Antarctisch plateau moeten plaatsvinden, aangezien CHASE heeft aangetoond dat monsters uit deze gebieden duidelijk verschillende chemische kenmerken vertonen. Bovendien leggen de chemische vingerafdrukken die door de CHASE-analyses zijn gevonden, een duidelijk verband tussen bepaalde brongebieden (bijv. Zuidelijk Afrika) of andere antropogene bronnen (chemische patronen van PAK, VOC, metalen) en de monsterlocaties in Oost-Antarctica. Maar de respectievelijke simulaties van de huidige modellen voor atmosferisch transport vertonen echter grote onzekerheden bij het simuleren van vele weken atmosferisch transport. Daarom is een duidelijker modellering en input van metingen nodig om te kunnen aantonen hoe deze verbindingen vanuit lagere breedtegraden Oost-Antarctica bereiken. Ten slotte wordt aanbevolen om door te gaan met de verzameling via passieve bemonstering op een of twee van de CHASE-bemonsteringsplaatsen met als doel om deze

waardevolle tijdreeksen te kunnen aanvullen. Om ook in de winter een hogere tijdsresolutie te verkrijgen en hierbij onafhankelijk te zijn van de mogelijke verontreiniging door de werking van het onderzoeksstation, moeten automatische bemonsteringssystemen met een laag debiet en zonder uitstoot onder extreme weersomstandigheden verder worden ontwikkeld.

Trefwoorden

Atmosferische deeltjes / Modelling van atmosferisch transport / Oost-Antarctica / Elementaire en isotopische samenstelling / Vluchtige organische stoffen (VOS)