

УДК 551.510.41

Анализ информативности и вертикального разрешения наземного спектроскопического ИК-метода определения вертикальной структуры CO₂

Ю.М. Тимофеев, Н.Н. Филиппов, А.В. Поберовский*

Санкт-Петербургский государственный университет
199034, Санкт-Петербург, Университетская наб., 7–9

Поступила в редакцию 10.07.2020 г.

Проведен анализ потенциальной информативности и вертикального разрешения наземного спектроскопического ИК-метода определения профилей CO₂ на примере измерений солнечного излучения Фурье-спектрометром Bruker 125HR на ст. St. Petersburg. На основе методических исследований различных спектральных окон и областей показано, что этим методом возможно определять 3–4 независимых параметра вертикальной структуры CO₂. Измерения в линиях сильного и среднего поглощения дают максимальную информацию о содержании CO₂ в нижней и средней тропосфере с вертикальным разрешением 3–5 км. Линии слабого поглощения обеспечивают информацию о содержании CO₂ в стратосфере с вертикальным разрешением 10–25 км.

Ключевые слова: ИК-Фурье-спектроскопия, дистанционное зондирование углекислого газа, вертикальное разрешение, информативность; infrared Fourier transform spectrometry, carbon dioxide remote sensing, information content, vertical resolution.

Введение

Изменения климата Земли, в значительной степени обусловленные ростом содержания парниковых газов и, прежде всего, углекислого газа, стали стимулом создания глобальной системы мониторинга содержания CO₂ [1]. Она состоит из средств наземных локальных и дистанционных измерений различного типа, самолетных и спутниковых систем наблюдений, наблюдений на высотных мачтах, кораблях и т.д. Значительную роль в получении информации играют наземные спектроскопические международные сети наблюдений TCCON (Total Carbon Column Observing Network) [2] и NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) [3]. Большую часть информации в этих сетях получают в виде общего содержания или среднего отношения смеси газа для сухой атмосферы.

В то же время известно (см. [4, 5]), что спектры солнечного ИК-излучения высокого разрешения несут в себе определенную информацию и о вертикальной структуре ряда атмосферных газов. В монографии [5] приведены примеры получения информации о профилях содержания O₃, H₂O, CH₄, CO, HCl, HF и N₂O. Информативность измерений оценивается, как правило, с помощью определения

количества независимых параметров вертикальных профилей по величине dofs (degree of freedom for signal – степень свободы полезного сигнала), и для упомянутых выше газов возможно определять 2–4 параметра [3].

Определение элементов вертикальной структуры содержания углекислого газа CO₂ имеет большое значение для исследований обмена парниковыми газами между тропосферой, где антропогенный фактор определяет рост их содержания, и стратосферой. В настоящей работе исследуются потенциальная информативность и вертикальное разрешение наземного спектроскопического ИК-метода определения профилей CO₂ на основе рассмотрения микроокон с отдельными спектральными линиями разной интенсивности и разной степени поглощения в земной атмосфере, а также комбинаций этих микроокон на примере наземных измерений солнечного ИК-излучения Фурье-спектрометром (ФС) Bruker 125HR на станции NDACC St. Petersburg.

Спектроскопические измерения и оценки их информативности

Информация о вертикальной структуре газов может быть извлечена из результатов наземных измерений спектров солнечного ИК-излучения с высоким разрешением благодаря двум факторам: зависимости коэффициентов молекулярного поглощения спектральных линий от давления и измере-

* Юрий Михайлович Тимофеев (y.timofeev@spbu.ru);
Николай Николаевич Филиппов (nfilippov@yandex.ru);
Анатолий Васильевич Поберовский (avp@troll.phys.spbu.ru).

нию спектров поглощения солнечного излучения при различных зенитных углах Солнца [4, 5]. С учетом того, что в реальной атмосфере контур линий поглощения обусловлен двумя главными эффектами – соударениями (Лоренц) и эффектом Доплера, а вклад доплеровского эффекта увеличивается с ростом волнового числа, для усиления вклада эффекта Лоренца следует выбирать максимально длинноволновые линии поглощения. Однако не менее важную роль играют и другие факторы информативности данных измерений солнечных спектров относительно вертикальной структуры содержания CO_2 . В первую очередь это отношение сигнал-шум и спектральное разрешение измерений, влияние других поглощающих газов, точность задания температуры атмосферы, влияющей на интенсивности линий, а также качество используемой спектральной информации о линиях поглощения.

Для численного анализа потенциальной информативности и вертикального разрешения метода мы рассматривали матрицу усредняющих ядер (УЯ) [4, 5]:

$$A = (S_a^{-1} + K^T S_\varepsilon^{-1} K)^{-1} K^T S_\varepsilon^{-1} K.$$

Здесь S_a – априорная матрица изменчивости искомого вектора состояния атмосферы; K – матрица вариационных производных излучения по атмосферным параметрам; S_ε – матрица некоррелированных ошибок измерения излучения; T – знак транспонирования. УЯ представляют собой сглаживающие функции, связывающие вариации истинного и восстановленного профилей [4]. Полуширина УЯ характеризует вертикальное разрешение метода на различных высотах. Также мы анализировали количество независимых параметров вертикальной структуры CO_2 , определяемой из спектроскопических измерений, в терминах величины dofs , представляющей собою след матрицы УЯ.

Мы исследовали матрицу УЯ на основе данных натуральных измерений ФС Bruker 125HR на станции NDACC St. Petersburg в Петергофе [6]. Эти измерения проводятся регулярно с 2009 г. с использованием трех фильтров в спектральных областях 650–1400 cm^{-1} (MCT приемник, фильтр F1), 1700–3400 cm^{-1} (InSb приемник, фильтр F3) и 2350–5400 cm^{-1} (InSb приемник, фильтр F5). Учитывая широкий спектральный диапазон прибора, а также большое количество полос и линий поглощения различных атмосферных газов, влияющих на регистрируемое прибором солнечное излучение, мы провели предварительный анализ спектров поглощения по данным банка HITRAN и выделили ряд спектральных областей с линиями CO_2 , в которых поглощение излучения другими газами мало. На этом этапе для выбора спектральных линий CO_2 напрямую рассчитывались функции пропускания атмосферы с учетом интерференции линий по методике [7].

Для анализа информативности спектроскопических измерений на ст. St. Petersburg мы выбрали два дня (16 сентября 2018 г. и 18 мая 2019 г.)

с разными температурными профилями, влажностью, содержанием CO_2 , зенитными углами Солнца и т.д. Мы проанализировали спектры, измеренные в эти дни, и отобрали микроокна шириной 0,6 cm^{-1} с центрами на следующих волновых числах: 951,19 cm^{-1} (F1), 2626,63 cm^{-1} (F3), 3315,79 cm^{-1} (F5), 3344,81 cm^{-1} (F5), 4864,83 cm^{-1} (F5) и 4883,14 cm^{-1} (F5). Спектральные линии были выбраны таким образом, чтобы для разных линий реализовывались режимы слабого, среднего и сильного поглощения в атмосфере. В длинноволновой линии 951 cm^{-1} реализуется среднее поглощение, в линии 2627 cm^{-1} – слабое, в линиях 3316 cm^{-1} и 3345 cm^{-1} – среднее и слабое поглощения, в линиях 4865 cm^{-1} и 4883 cm^{-1} – очень сильное и сильное. На рис. 1 приведены неаподизированные спектры поглощения солнечного излучения рассматриваемых линий CO_2 , измеренные ФС Bruker 125HR 18 мая 2019 г., со спектральным разрешением 0,005 cm^{-1} .

Мы проанализировали измеренные спектры в шести представленных на рис. 1 микроокнах с помощью программного комплекса (ПК) PROFFIT [8]. Для уточнения профилей CO_2 при интерпретации спектров мы применили регуляризацию Тихонова–Филипса первого порядка [9], когда на каждом этапе решения итерационной обратной задачи ограничивается изменчивость первой производной искомого профиля. При этом для каждого рассмотренного микроокна использовались свои реальные отношения сигнал-шум, определенные при первичной обработке.

Результаты и их обсуждение

Для обоих дней измерений мы исследовали матрицы УЯ с целью анализа потенциальной информативности и вертикального разрешения спектральных измерений солнечного ИК-излучения относительно профиля CO_2 . На рис. 2 приведены величины УЯ для нескольких высот от 0 до 50 км, полученные для шести микроокон 16 сентября 2018 г.

Видно, что режим поглощения в спектральных линиях CO_2 в значительной степени определяет высотный диапазон дистанционных измерений содержания CO_2 и полуширину УЯ. Максимальный высотный диапазон 0–50 км характерен для линии поглощения 951 cm^{-1} , диапазон 0–40 км – для линии 2627 cm^{-1} , 0–30 км – для линий 3316 и 3345 cm^{-1} , 0–25 км – для линии 4883 cm^{-1} . Для очень сильной линии 4865 cm^{-1} все УЯ имеют максимум вблизи поверхности (до 5–8 км).

Такое поведение УЯ связано с тем, что линия 951 cm^{-1} характеризуется средним поглощением, в разных частях спектральной линии находится информация о содержании CO_2 на различных уровнях в атмосфере. Линии 4865 и 4883 cm^{-1} с сильным поглощением несут в своих крыльях информацию о содержании CO_2 в нижней тропосфере. Линия 2627 cm^{-1} характеризуется относительно слабым поглощением (функция пропускания в центре линии

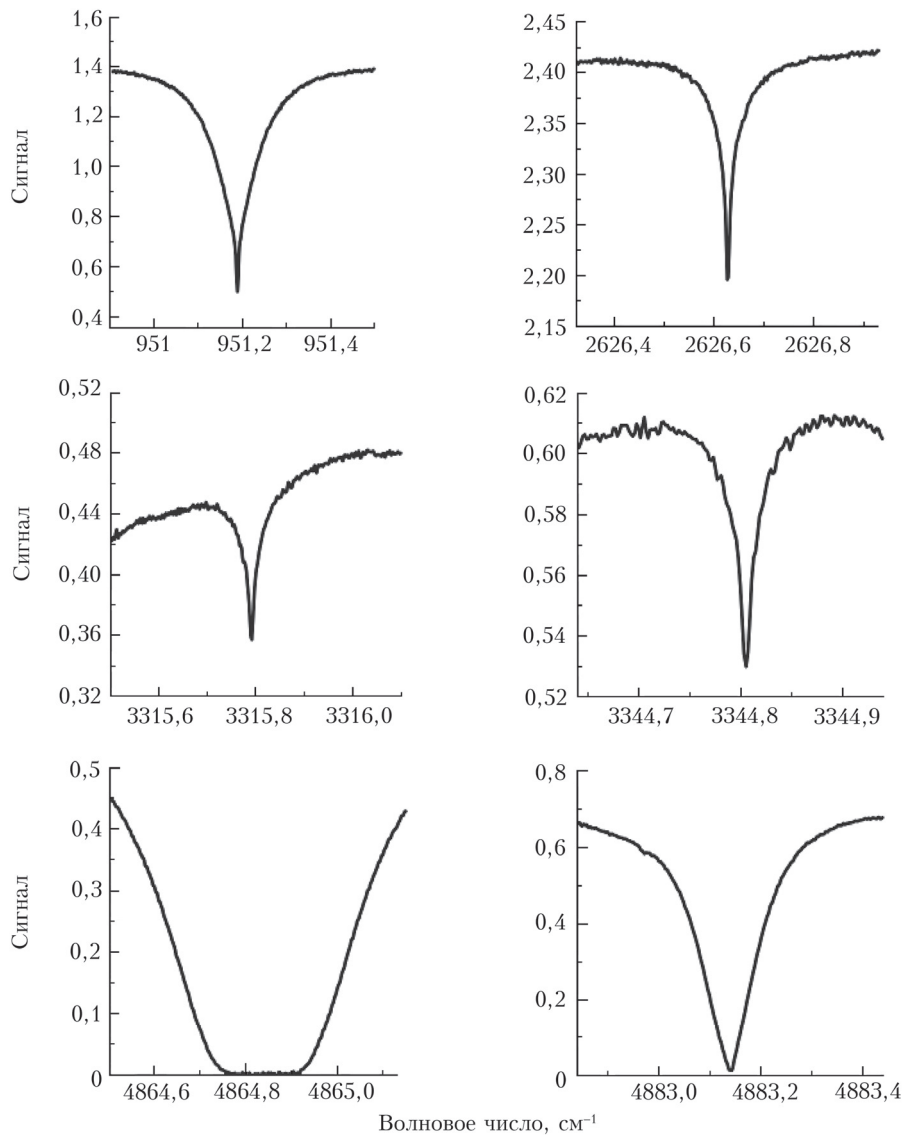


Рис. 1. Спектры поглощения солнечного излучения исследованных линий разной интенсивности в различных режимах поглощения в земной атмосфере, полученные 18 мая 2019 г. (зенитный угол Солнца ~ 40°)

близка к 0,8); в связи с этим информативным является измерение в центре линии, поэтому максимальные по величине УЯ в этой линии располагаются в средней стратосфере. Линия 3345 см⁻¹ слабее, чем линия 3316 см⁻¹, следовательно, максимумы УЯ для нее подняты выше, больше информации можно получить из измерений в центре линии. Вертикальное разрешение наземного дистанционного метода, чаще всего характеризуемое полушириной УЯ, сильно варьируется: в нижней тропосфере для линий 951 и 4883 см⁻¹ оно составляет 3–5 км, в стратосфере для линий 951, 2627 и 3345 см⁻¹ – 10–20 км.

В табл. 1 приведены полученные величины dofs – количество независимых параметров вертикального профиля CO₂, потенциально определяемых в ходе решения обратной задачи при использовании микроокон с отдельными линиями или их комбинаций (схемы А–D).

Максимальная информативность (примерно четыре независимых параметра) соответствует использованию микроокна с центром на линии 951 см⁻¹ (фильтр F1). Близкая информативность (более трех независимых параметров) также получена для набора микроокон С, включающего сильные линии в коротковолновой (4800 см⁻¹) области спектра и средние и слабые линии в области 3100–3300 см⁻¹ (фильтр F5). Для этих спектральных схем (соответствующих микроокон) можно ставить задачу определения CO₂ в четырех слоях атмосферы, например в нижней, средней и верхней тропосфере и стратосфере. Отметим также, что для большинства схем, в которых присутствуют сильные коротковолновые линии, dofs увеличивается с высотой Солнца, в то время как для длинноволновых линий dofs чаще всего уменьшается.

Кроме отдельных спектральных линий в микроокнах шириной 0,3–0,6 см⁻¹ мы также рассмотрели

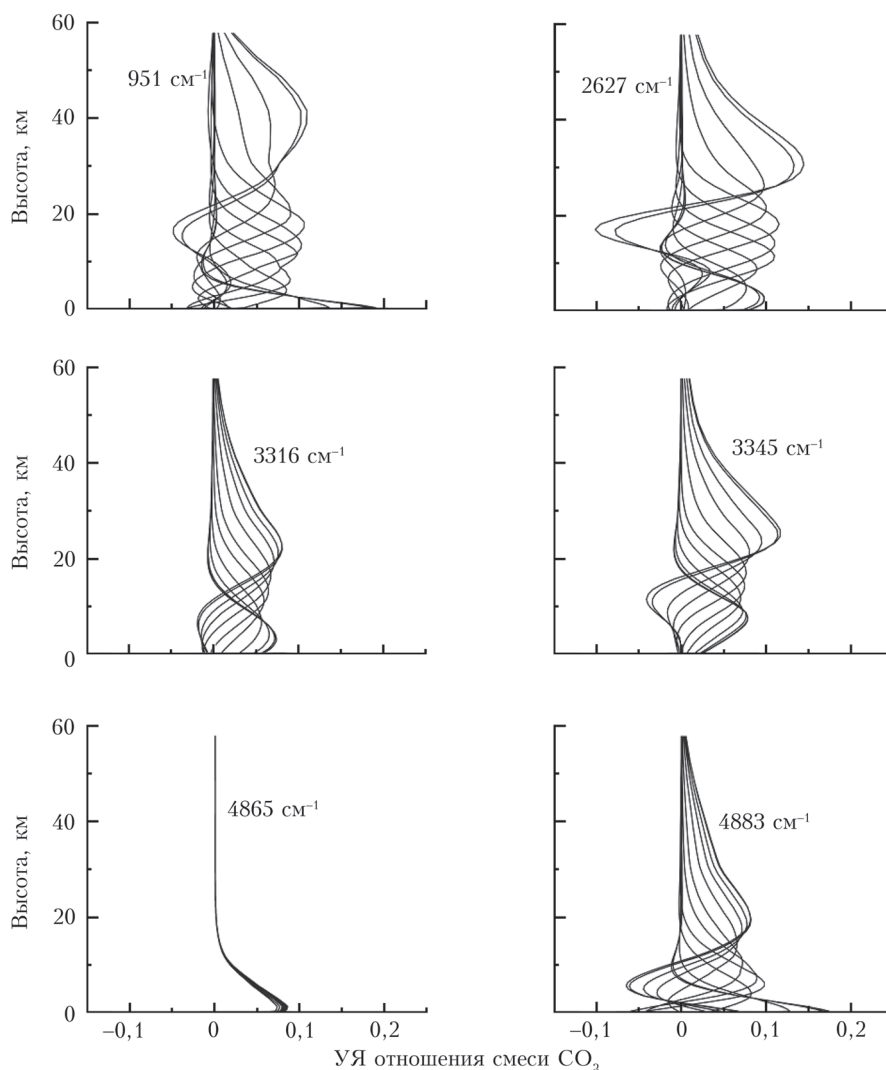


Рис. 2. Усредняющие ядра отношения смеси CO_2 (сплошные линии) от 0 до 60 км для различных линий (микроокон) 16 сентября 2018 г. (зенитный угол Солнца $\sim 60^\circ$)

схемы измерений спектров солнечного излучения с использованием других комбинаций разных микроокон в различных спектральных областях.

Таблица 1

Величины dofs для различных микроокон и их комбинаций для двух дней измерений (ЗУС – зенитный угол Солнца)

Центры микроокон и их комбинации, cm^{-1}	dofs	
	16.09.2018 г. (ЗУС = 60°)	18.05.2019 г. (ЗУС = 40°)
951	3,85	3,62
2627	3,63	3,08
3316	2,22	2,50
3345	2,37	2,25
4865	1,00	1,41
4883	2,74	3,02
A: 2627 + 3316 + 4883	2,77	3,07
B: 4854 + 4883 + 4885	3,44	3,86
C: 3316 + 3345 + 4865 + 4883 + 4885	3,57	4,00
D: 2627 + 3316 + 3345 + 4865 + 4883 + 4885	3,27	3,67

После предварительного рассмотрения и отбора вариантов для двух тестовых дней измерений мы остановились на трех спектральных схемах, представленных в табл. 2. Микроокна для схемы II взяты из [10], для схемы III – из [11], для схемы I – отобраны в ходе анализа спектров поглощения атмосферных газов, а также предварительных оценок УЯ. В таблице также приведены малые газовые составляющие (МГС) атмосферы, учитываемые при расчете функций пропускания, фильтры, с которыми проводились измерения, и величины dofs.

Максимальная информативность (3,94–4,18) приходится на схему I. При сопоставлении ее со значениями dofs из табл. 1, где ширина микроокна составляла $0,6 \text{ cm}^{-1}$, видно, что расширение спектрального канала позволило увеличить количество потенциально определяемых параметров профиля CO_2 . То же относится и к схеме II: комбинация из четырех микроокон в области 2620–2630 cm^{-1} повысила информативность спектроскопических измерений в отношении профиля CO_2 по сравнению с использованием только одного окна шириной

Параметры решения обратной задачи (каналы и учитываемые газы), а также dofs для различных схем для двух дней измерений

Схема	Каналы, см ⁻¹	Фильтр	МГС	dofs	
				16.09.2018 г. (ЗУС = 60°)	18.05.2019 г. (ЗУС = 40°)
I	950,5–953,8	F1	H ₂ O, CO ₂ , O ₃ , N ₂ O	4,18	3,94
II	2620,55–2621,1	F3	H ₂ O, CO ₂ , N ₂ O, CH ₄	3,86	3,44
	2626,4–2626,85				
	2627,1–2627,6				
	2629,275–2629,95				
III	3160,14–3160,3	F5	H ₂ O, CO ₂ , O ₃ , N ₂ O, CH ₄ , C ₂ H ₂	2,88	2,92
	3161,6–3161,8				
	3315,5–3316,05				
	3316,87–3318,0				
	3344,68–3344,94				

0,6 см⁻¹ (см. табл. 1). Для схемы III, использующей пять каналов в области 3100–3300 см⁻¹, информативность также выше, чем для отдельных микроокон. Схема I дает равномерное перекрытие УЯ широкого высотного диапазона 0–50 км. При этом вертикальное разрешение в нижней тропосфере составляет ~3–5 км, а в стратосфере оно падает до 20–25 км. Две другие схемы имеют более ограниченный высотный диапазон: схема II – 0–40 км с более равномерным по высоте вертикальным разрешением (10–20 км), схема III – 0–30 км с вертикальным разрешением 15–20 км.

Заключение

В настоящей работе на основе методических численных исследований проанализированы особенности формирования усредняющих ядер дистанционного ИК-метода и информативность измерений солнечных ИК-спектров. В ходе анализа были получены следующие результаты.

1. Определена информативность измерений спектров в разных линиях CO₂ из различных спектральных областей в терминах dofs – количество определяемых независимых параметров, которое достигает 3–4 для измерений с помощью ФС Bruker 125HR.

2. Исследовано поведение УЯ при определении профилей содержания CO₂ в различных спектральных линиях и спектральных областях ИК-спектра. Показано, что в зависимости от особенностей поглощения солнечного излучения (слабого, среднего и сильного поглощения в земной атмосфере) изменяются потолок высотного наземного зондирования и высотное разрешение дистанционных измерений. Измерения в линиях сильного поглощения дают максимальную информацию о содержании CO₂ в нижней и средней тропосфере с вертикальным разрешением 3–5 км. Линии слабого поглощения обеспечивают информацию о содержании CO₂ в стратосфере с вертикальным разрешением 10–25 км.

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

1. Ciaia P., Dolman A.J., Bombelli A., Duren R., Peregion A., Rayner P.J., Miller C., Gobron N., Kinderman G., Marland G., Gruber N., Chevallier F., Andres R.J., Balsamo G., Bopp L., Bréon F.-M., Broquet G., Dargaville R., Battin T.J., Borges A., Bovensmann H., Buchwitz M., Butler J., Canadell J.G., Cook R.B., DeFries R., Engelen R., Gurney K.R., Heinze C., Heimann M., Held A., Henry M., Law B., Luyssaert S., Miller J., Moriyama T., Moulin C., Myneni R.B., Nussli C., Obersteiner M., Ojima D., Pan Y., Paris J.-D., Piao S.L., Poulter B., Plummer S., Quegan S., Raymond P., Reichstein M., Rivier L., Sabine C., Schimel D., Tarasova O., Valentini R., Wang R., van der Werf G., Wickland D., Williams M., Zehner C. Current systematic carbon-cycle observations and the need for implementing a policy-relevant carbon observing system // *Biogeosci.* 2014. V. 11, N 13. P. 3547–3602.
2. *The Total Carbon Column Observing Network (TCCON)* [Electronic resource]. URL: <https://tccon-wiki.caltech.edu/> (last access: 10.06.2020).
3. *NDACC Infrared Working Group* [Electronic resource]. URL: <https://www2.acom.ucar.edu/irwg> (last access: 10.06.2020).
4. Rodgers C.D. *Inverse methods for atmospheric sounding. Theory and practice.* Singapore, London: University of Oxford, World Scientific Publishing, 2000. 253 p.
5. Тимофеев Ю.М. Исследования атмосферы Земли методом прозрачности. СПб: Наука, 2016. 367 с.
6. Timofeev Y., Virolainen Y., Makarova M., Poborovsky A., Polyakov A., Ionov D., Osipov S., Imhasin H. Ground-based spectroscopic measurements of atmospheric gas composition near Saint Petersburg (Russia) // *J. Mol. Spectrosc.* 2016. V. 323. P. 2–14.
7. Tonkov M.V., Filippov N.N., Timofeev Yu.M., Polyakov A.V. A simple model of the line mixing effect for atmospheric applications: theoretical background and comparison with experimental profiles // *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* 1996. V. 56, N 5. P. 783–795.
8. 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. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. 2004. V. 87, N 1. P. 25–52.
9. *Тихонов А.Н.* О решении некорректно поставленных задач и методе регуляризации // Докл. АН СССР. 1963. Т. 151, № 3. С. 501–504.
10. *Виролайнен Я.А.* Методические аспекты определения содержания углекислого газа в атмосфере с помощью ИК-фурье-спектрометрии // Журн. прикл. спектроскоп. 2018. Т. 85, № 3. С. 453–460.
11. *Buschmann M., Deutscher N.M., Sherlock V., Palm M., Warneke T., Notholt J.* Retrieval of xCO₂ from ground-based mid-infrared (NDACC) solar absorption spectra and comparison to TCCON // Atmos. Meas. Tech. 2016. V. 9, N 2. P. 577–585.

Yu.M. Timofeev, N.N. Filippov, A.V. Poberovsky. **Analysis of the information content and vertical resolution of the ground-based spectroscopic IR method for the CO₂ vertical structure retrieval.**

The retrieval of the vertical structure of carbon dioxide content is important for studying the exchange of greenhouse gases between the troposphere, where the anthropogenic factor determines the growth of their content, and the stratosphere. In this study, we analyzed the potential information content and vertical resolution of the ground-based IR spectroscopic method for determining CO₂ profiles using solar radiation measurements with the Bruker 125 HR Fourier spectrometer at the St. Petersburg site. Based on methodological studies of various spectral windows and areas, we have shown that it is possible to determine 3–4 independent parameters of the CO₂ vertical structure. Measurements in the strong and medium absorption lines provide maximum information on the CO₂ content in the lower and middle troposphere with a vertical resolution of 3–5 km. The weak absorption lines provide information on the CO₂ content in the stratosphere with a vertical resolution of 10–25 km.