

УДК 551.510.41

СРАВНЕНИЕ РАЗЛИЧНЫХ МЕТОДИК НАЗЕМНЫХ СПЕКТРОСКОПИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЙ ОБЩЕГО СОДЕРЖАНИЯ МЕТАНА В АТМОСФЕРЕ

© 2001 г. **Ф. В. Кашин***, **Н. Е. Каменоградский***, **Е. И. Гречко****, **А. В. Джола****,
А. В. Поберовский***, **М. В. Макарова*****

**Институт экспериментальной метеорологии
249020 Обнинск, Калужская обл., просп. Ленина, 82*

***Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН
109017 Москва, Пыжевский пер., 3*

****Научно-исследовательский институт физики Санкт-Петербургского государственного университета
198504 Санкт-Петербург, Петродворец, ул. Ульяновская, 1
E-mail: pober@troll.phys.spbu.ru*

Поступила в редакцию 07.06.2000 г.

Спектроскопические измерения общих содержаний (ОС) ряда важных атмосферных газовых составляющих (метан, окись углерода, водяной пар и т.д.) проводятся регулярно в ИФА, ИЭМ и НИИФ. Для совместного анализа данных измерений в различных регионах и использования сети наземных измерений как единой системы валидации спутниковых измерений необходима взаимокалибровка различных систем мониторинга газовых составляющих. Специальные программы сопоставлений независимых измерений ОС метана проводились на Звенигородской научной станции ИФА в различные сезоны 1997–1998 гг. В работе проведен анализ основных результатов, полученных в течение этих программ сопоставлений. Показано, что важное значение для получения согласованных результатов измерений ОС метана по различным методикам имеет адаптация их к локальным условиям измерений и использование единой спектроскопической информации.

ВВЕДЕНИЕ

Увеличение содержания ряда “парниковых” газов (CO_2 , H_2O , CH_4 , N_2O и т.д.) приводит к изменению радиационных свойств атмосферы и, как следствие, к изменениям климата Земли. Именно по этим причинам в настоящее время существуют различные, прежде всего, наземные и космические, системы мониторинга характеристик газового состава атмосферы. Значительная роль в этих измерениях отводится дистанционным методам. Так, в частности, за последние годы были проведены многочисленные спутниковые эксперименты, позволившие получить очень большое количество информации о вариациях (в том числе и долговременных) общих содержаний озона, водяного пара, а также вертикальных профилей содержания многих малых газовых составляющих в стратосфере. Дистанционные методы широко используются и в наземном мониторинге характеристик газового состава атмосферы. Достаточно указать на обширную сеть станций наземных озонметрических наблюдений.

В последние годы роль наземных систем измерений существенно возросла в связи с необходимостью определять и постоянно контролировать каче-

ство различных спутниковых измерений. При этом важное значение имеют проблемы унификации измерений и определения реальной точности различных систем наблюдений. Так, например, сеть наземных озонметрических наблюдений периодически калибруется по добсоновскому эталону.

Одним из хорошо известных и используемых наземных методов измерений характеристик газового состава является метод, основанный на регистрации спектров поглощения солнечного ИК излучения. Использование этого метода в СССР было начато в ИФА РАН В.И. Диановым-Клоковым с сотрудниками еще в 60-х годах [1, 2], и в настоящее время в России этот метод используется для регулярных измерений содержаний CO_2 , H_2O , CH_4 , N_2O и т.д. [3–12].

Для сопоставления результатов наземных измерений содержаний газовых составляющих атмосферы в различных районах, а также валидации спутниковых измерений необходимы специальные измерения для взаимной калибровки различных методов и аппаратуры [2, 13, 14]. Такая взаимная калибровка спектроскопических методов и аппаратуры для измерений общего содержания (ОС) метана в толще атмосферы была проведена в сен-

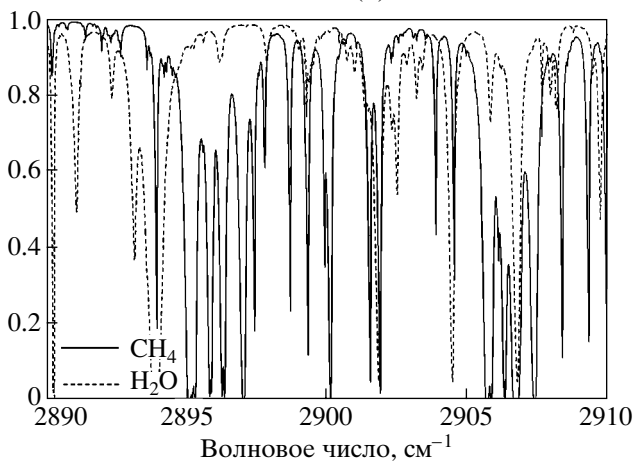
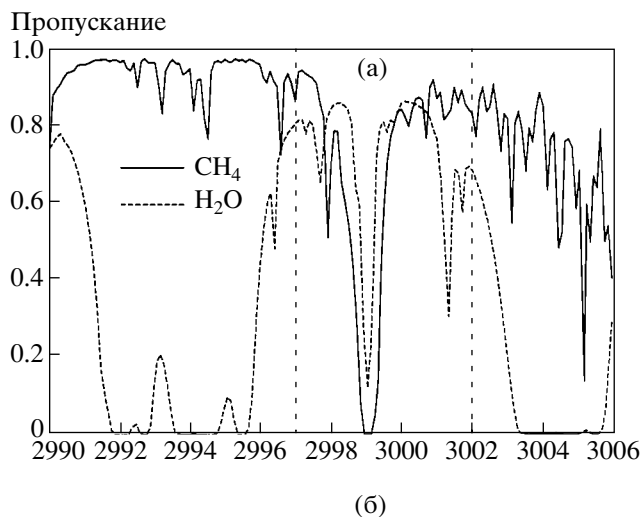


Рис. 1. Пропускание толщи атмосферы в спектральных интервалах, используемых в ИФА и ИЭМ (а) и в НИИФ (б).

тябре 1997 г., марте-апреле и сентябре-декабре 1998 г. с участием Института физики атмосферы (ИФА), Института экспериментальной метеорологии НПО "Тайфун" (ИЭМ) и Научно-исследовательского института физики СПбГУ (НИИФ) на Звенигородской научной станции (ЗНС) ИФА [15, 16].

АППАРАТУРА И МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЙ

Применяемые в ИФА, ИЭМ и НИИФ измерительные комплексы включают в себя следующие основные блоки – следящие солнечные системы, монохроматоры, приемно-регистрационные системы [11, 13, 14]. Измерения солнечных спектров осуществляются в одной и той же полосе поглощения метана вблизи 3.3 мкм. На рис 1а, 1б приведены функции пропускания толщи атмосферы (воздушная масса $m = 3$) для метана и водяного пара (являющихся основными поглощающими ком-

понентами) в спектральных интервалах, используемых в ИФА, ИЭМ (рис. 1а) и НИИФ (рис. 1б) для определения ОС метана. Интервал ИЭМ включает всю шкалу волновых чисел на рис.1а и включает в себя интервал измерений ИФА 2997–3002 см^{-1} , который выделен на рисунке вертикальными линиями. НИИФ использует не перекрывающуюся с ИФА и ИЭМ спектральную область, показанную на рис.1б.

Основная информация об используемых методиках измерений приведена в табл. 1. Видно, что при определении ОС CH_4 используются различные спектральные интервалы, отличающаяся спектроскопическая информация, а также различные информационные характеристики, извлекаемые из регистрируемых спектров. Как следствие этого, общее содержание метана в толще атмосферы при использовании разных методик определяется с различными погрешностями.

Точность определения ОС метана зависит от случайной погрешности (погрешности измерений и обработки спектрограмм; в частности, высокая инструментальная точность измерений ИЭМ достигнута за счет большого отношения сигнал/шум, малого времени регистрации спектрального интервала и компьютерной обработки спектрограмм) и систематической погрешности. Последняя связана:

- с точностью задания спектроскопической информации – интенсивностей и полуширин спектральных линий поглощения всех газов в рабочем спектральном диапазоне, формы контура линий поглощения и зависимостей этих параметров от давления и температуры (анализ влияния этих факторов для методики НИИФ был проведен, например, в работе [10]);
- с адекватностью используемых модельных вертикальных профилей концентраций метана и других газов (прежде всего, водяного пара), температуры и давления реальным вертикальным распределениям;
- с погрешностью методики определения ОС газа в атмосфере.

Основной задачей взаимной калибровки методов и аппаратуры для измерений общего содержания метана являлось определение и устранение систематических погрешностей.

РЕЗУЛЬТАТЫ ОДНОВРЕМЕННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

Одновременные измерения общего содержания метана тремя измерительными комплексами ИФА, ИЭМ и НИИФ были проведены в сентябре 1997 г. на Звенигородской научной станции ИФА РАН (55.42° N, 36.48° E). Позднее измерения были продолжены двумя комплексами ИФА и ИЭМ в марте-апреле и сентябре-декабре 1998 г.

Таблица 1. Характеристики спектроскопических методов измерений

Параметр	ИФА	ИЭМ	НИИФ
Спектральный интервал	2997–3002 см^{-1} , линия P(2), полоса ν_3	2990–3006 см^{-1} , линия P(2), полоса ν_3	2890–2910 см^{-1} , полоса ν_3
Спектральное разрешение	0.35 см^{-1}	0.33 см^{-1}	0.6 см^{-1}
Исходная спектроскопическая информация	HITRAN-92 [17]	HITRAN-96 [18]	HITRAN-92 [17]
Модель атмосферы	Средняя, соответствующая условиям измерений	Средняя, соответствующая условиям измерений	Средняя, соответствующая условиям измерений
Методика интерпретации	Анализ интегрального поглощения в линии P(2) на основе предварительных расчетов модельных спектров	Анализ функций пропускания в интервале 2997–3000.8 см^{-1} , содержащем линию P(2) на основе предварительных расчетов	Минимизация среднеквадратической разности между измеренным и рассчитанным спектрами
Случайная погрешность единичного измерения	Меньше 10%	Меньше 4%	6–8%
Случайная погрешность среднедневного значения	В зависимости от числа измерений, 5–10%	В зависимости от числа измерений, 0.2–0.4%	В зависимости от числа измерений, 2–8%

На первом этапе каждой группой была проведена независимая обработка собственных зарегистрированных солнечных спектров с использованием исходных вариантов методик измерений. В качестве примера на рис.2 представлены результаты измерений 20.09.1997 г. Приведенные данные демонстрируют случайные и систематические погрешности различных методик спектроскопических измерений общего содержания метана. Видно, что различия в результатах измерений ОС метана НИИФ и ИЭМ составляют около 15% и носят систематический характер. В то же время для ИФА характерен очень широкий разброс (до 20%) данных единичных измерений.

На следующем этапе программы калибровки были внесены уточнения в исходные данные и усовершенствованы методики интерпретации регистрируемых спектров. В методике ИЭМ были изменены границы рабочего спектрального интервала и по результатам сравнений экспериментальных и расчетных спектров внесены поправки в интенсивности линий поглощения метана из [18], формирующие поглощение излучения в коротковолновом крыле линии P2 его основной полосы ν_3 . В методике НИИФ при обработке данных использовавшиеся модельные значения приземных температур были заменены наблюдавшимися во время измерений.

На рис. 3 приведены результаты повторной обработки спектров 20.09.1997 г. с учетом всех уточнений, внесенных в методики измерений. Из рисунка видно, что согласие данных, полученных по трем независимым методикам ИФА, ИЭМ и

НИИФ, улучшилось – исчезли систематические различия величин общего содержания метана. При среднем уровне значений общего содержания метана 1.22–1.25 атм · см максимальный разброс данных, полученных по трем независимым методикам, составил 0.15 атм · см, что соответствует примерно 10 %. Величины общего содержания метана в этот день наблюдений по данным ИФА находились в диапазоне 1.18–1.30; ИЭМ – 1.20–1.25; НИИФ – 1.18–1.27 атм · см. Наблюдавшийся разброс значений в значительной степени объясняется соответствующими погрешностями измерений (см. табл. 1).

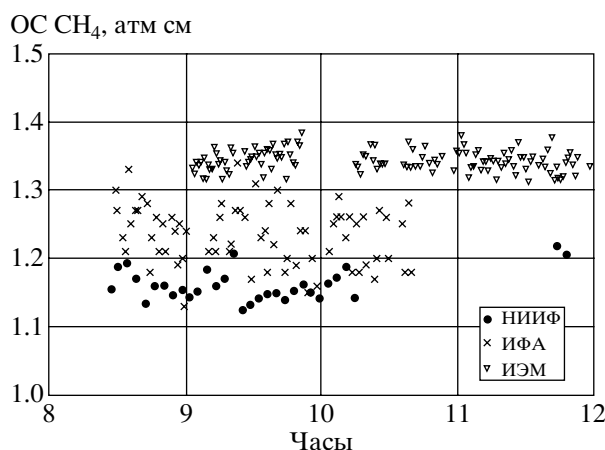
**Рис. 2.** Значения ОС CH_4 (20 сентября 1997 г.) до взаимокалибровки.

Таблица 2. Среднедневные содержания метана в столбе атмосферы (атм · см)

Дата	ИФА		ИЭМ		НИИФ	
	CH ₄	N	CH ₄	N	CH ₄	N
06.09	1.20 ± 0.01	34	1.201 ± 0.003	43	1.31 ± 0.03	9
07.09	1.20 ± 0.02	43	1.212 ± 0.003	60	–	–
16.09	1.24 ± 0.02	13	–	–	1.24 ± 0.02	10
17.09	–	–	1.256 ± 0.004	53	–	–
18.09	1.16 ± 0.04	7	1.242 ± 0.003	43	1.25 ± 0.04	13
19.09	1.29 ± 0.02	33	–	–	1.27 ± 0.01	25
20.09	1.23 ± 0.01	72	1.232 ± 0.003	134	1.22 ± 0.04	31
21.09	1.20 ± 0.02	39	1.226 ± 0.002	184	1.21 ± 0.07	10

Примечание. CH₄ – среднее содержание метана в столбе атмосферы и погрешность средневзвешенной величины; N – число спектров за день.

По результатам единичных измерений были найдены средневзвешенные значения общего содержания метана, погрешности определения которых зависят от числа измерений в течение дня (в предположении, что отклонения результатов единичных измерений от средневзвешенных величин являются случайными). Средневзвешенные значения общего содержания метана, полученные независимо тремя группами в сентябре 1997 г. на ЗНС, и их погрешности приведены в табл. 2 и на рис. 4. Величины погрешностей средневзвешенных значений общего содержания метана зависят от погрешностей единичных измерений и числа измерений в течение дня. Минимальные значения погрешностей средне-

дневных содержаний метана в измерениях 1997 г. на ЗНС составили ±0.02 атм см для ИЭМ и ±0.01 атм · см для ИФА и НИИФ.

Как видно из табл. 2 и рис. 4, средневзвешенные значения общего содержания метана, полученные с учетом всех методических уточнений, согласуются между собой в пределах суммарных погрешностей для большинства из дней совместных измерений. Исключение составляют 6.09 и 18.09, для которых выпадающими являются результаты НИИФ и ИФА соответственно.

В период с 16 по 21.09.1997 г. были зарегистрированы независимо всеми тремя аппаратными комплексами изменения общего содержания ме-

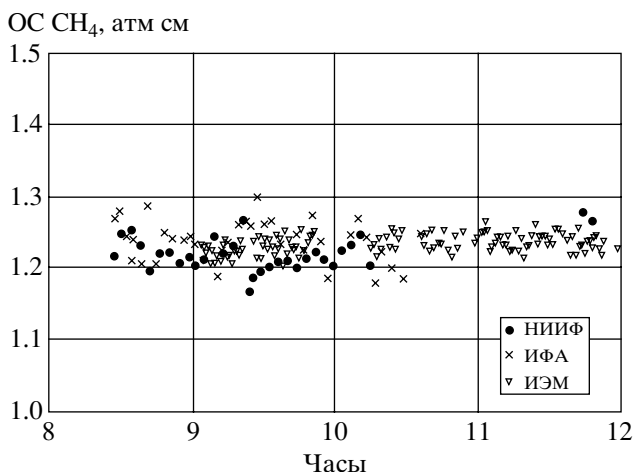


Рис. 3. Значения ОС CH₄ (20 сентября 1997 г.), полученные после взаимокалибровки.

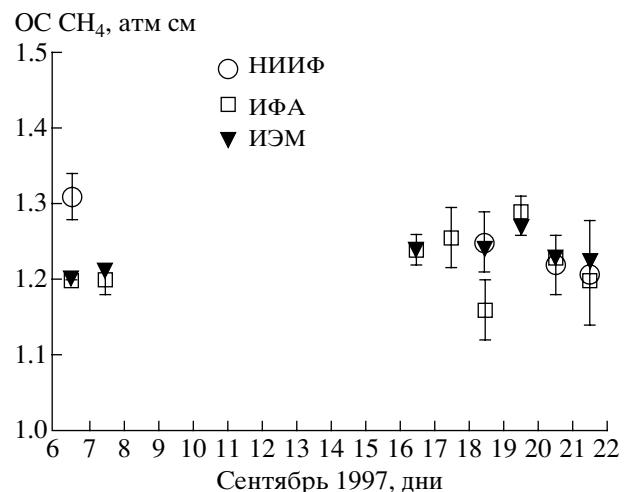


Рис. 4. Средневзвешенные содержания метана в атмосфере (сентябрь 1997 г.) на Звенигородской научной станции ИФА РАН.

Таблица 3. Среднедневные значения общего содержания метана в марте–апреле 1998 г. (атм · см)

Дата	ИФА	ИЭМ
27.03	1.27 ± 0.02	1.242 ± 0.004
28.03	1.24 ± 0.02	1.245 ± 0.002
29.03	1.27 ± 0.06	1.244 ± 0.003
30.03	1.24 ± 0.02	1.240 ± 0.002
02.04	1.23 ± 0.04	1.264 ± 0.003
03.04	1.25 ± 0.02	1.273 ± 0.002
21.04	1.22 ± 0.03	1.229 ± 0.002
22.04	1.27 ± 0.02	1.223 ± 0.002
26.04	1.25 ± 0.02	1.230 ± 0.002
27.04	1.23 ± 0.01	1.230 ± 0.002
28.04	1.19 ± 0.02	1.207 ± 0.002

Таблица 4. Среднедневные значения общего содержания метана в сентябре–декабре 1998 г. (атм · см)

Дата	ИФА	ИЭМ
09.09	1.19 ± 0.02	1.225 ± 0.006
10.09	1.15 ± 0.02	1.177 ± 0.005
11.09	1.21 ± 0.03	1.187 ± 0.007
13.09	1.16 ± 0.01	1.212 ± 0.003
14.09	1.19 ± 0.02	1.175 ± 0.004
27.11	1.31 ± 0.02	1.340 ± 0.010
30.11	1.23 ± 0.02	1.290 ± 0.005
01.12	1.19 ± 0.02	1.345 ± 0.006
04.12	1.30 ± 0.01	1.296 ± 0.005

тана в пределах 1.16–1.28 атм · см. Амплитуда этих изменений составила 0.12 атм · см, или 10%.

В марте–апреле и сентябре–декабре 1998 г. на ЗНС были продолжены совместные измерения общего содержания метана двумя группами – ИФА и ИЭМ. В табл. 3 приведены результаты одновременных измерений общего содержания метана в марте–апреле 1998 г.

Среднедневные величины общего содержания метана по данным измерений ИФА и ИЭМ в этот период отличаются друг от друга не более, чем на 0.047 атм · см. Разности среднедневных величин имеют разные знаки, а их абсолютные значения не превышают суммы погрешностей измерений ИФА и ИЭМ. В марте–апреле 1998 года среднедневные величины общего содержания метана изменялись в диапазонах 1.19–1.27 атм · см по данным ИФА и 1.207–1.273 атм · см по данным ИЭМ. Средние значения содержания метана в атмосфере в этот период по результатам измерений ИФА и ИЭМ составили 1.24 ± 0.02 атм · см.

В табл. 4 приведены данные измерений ИФА и ИЭМ в сентябре–декабре 1998 г.

Данные ИФА и ИЭМ, приведенные в табл. 4, показывают, что среднедневные значения ОС метана согласуются в ряде случаев в пределах суммарных погрешностей. Однако для ряда дней (09.09, 13.09, 30.11, 01.12) рассогласование между независимыми измерениями превышает суммарные погрешности измерений.

Среднемесячные значения в сентябре составляли 1.18 (ИФА) и 1.195 атм · см (ИЭМ). Соответствующие значения в ноябре равны 1.315 (ИФА) и 1.325 атм · см (ИЭМ), в декабре – 1.245 (ИФА) и

1.270 атм · см (ИЭМ). Приведенные значения среднемесячных величин общего содержания метана из-за малого числа дней измерений приведены здесь только для характеристики возможных систематических различий данных, полученных по двум независимым методикам. В осенне-зимний период 1998 г. эти систематические отличия в измерениях ИФА и ИЭМ составляли 3–6 %.

ВЫВОДЫ

Изменения, внесенные в процедуры интерпретации ИК спектров прямого солнечного излучения, позволили получить хорошее согласие независимых измерений ОС метана комплексами ИФА, ИЭМ и НИИФ. Во многих случаях независимые измерения лежат в пределах погрешностей измерений отдельных реализаций спектроскопической методики. Однако необходим дальнейший анализ причин наблюдающихся в ряде случаев отличий среднедневных значений ОС метана на величины, превышающие суммарные погрешности индивидуальных измерений.

Взаимокалиброванные спектроскопические методики измерений ОС метана дают возможность уверенно регистрировать вариации ОС метана ото дня ко дню с амплитудой 10%. В ряде случаев для среднедневных значений ОС метана (а также для среднемесячных величин) результаты независимых измерений отличаются на величины, превышающие суммарные погрешности индивидуальных измерений.

Проведенные программы сопоставления спектроскопических наземных методов измерений ОС метана позволяют указать на возможные пу-

ти дальнейшего повышения точности и согласованности измерений:

– использование при интерпретации данных о реальной термической структуре атмосферы, например, результатов аэрологического зондирования;

– использование единых баз данных о параметрах тонкой структуры полос поглощения (метана и “мешающих” газов), а также проведение специальных лабораторных измерений этих параметров с повышенной точностью;

– использование оптимальных модельных вертикальных профилей содержания метана;

– проведение измерений приземных концентраций метана в моменты спектроскопических измерений для контроля наличия локальных возмущений.

Проведенная взаимокалибровка методик и аппаратуры, применяющихся для определения ОС метана, позволяет использовать их для долговременного мониторинга содержания метана в атмосфере, а также проводить анализ пространственно-временной изменчивости исследуемого газа на основе совместного использования баз данных различных организаций.

Существенно подчеркнуть, что проведенные программы совместных измерений спектров солнечного излучения и интерпретации данных необходимы также для взаимокалибровки спектроскопических методов измерений ОС других атмосферных составляющих. Примеры таких исследований даны в работе [16], посвященной сопоставлению результатов измерения ОС водяного пара. Все эти меры позволят получить согласованный массив долговременных измерений ОС газовых составляющих для различных районов России и СНГ, а также создать единую наземную систему мониторинга МГС для валидации спутниковых измерений.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты № 98-05-65586, 99-05-64275 и 99-05-64925, 00-05-65224) и ИНТАС-IESA-99-1511.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Дианов-Клоков В.И. Спектроскопические исследования фонового содержания газовых примесей в атмосфере // Вест. АН СССР. 1980. Т. 4. С. 33–41.
2. Dianov-Klokov V.I., Yurganov L.N. A spectroscopic study of the global space-time distribution of CO // *Tellus*. 1981. V. 33. P. 262–273.
3. Дворяшина Е.В., Дианов-Клоков В.И. Результаты спектроскопических измерений содержания метана в атмосфере Северного полушария // Изв. АН СССР. Физика атмосферы и океана. 1986. Т. 22. № 1. С. 87–89.
4. Dianov-Klokov V.I., Yurganov L.N., Grechko Ye.I., Dzhola A.V., Spectroscopic measurements of atmospheric carbon dioxide and methane. 1 : Latitudinal distribution. // *J. Atmos. Chem.* 1989. V. 8. P. 139–151.
5. Dianov-Klokov V.I., Yurganov L.N. Spectroscopic measurements of atmospheric carbon dioxide and methane, 2 : Seasonal variations and long-term trends // *J. Atmos. Chem.* 1989. V. 8. P. 153–164.
6. Арефьев В.Н., Каменоградский Н.Е., Кашин Ф.В. Систематические измерения концентрации углекислого газа в атмосфере // Изв. АН СССР. Физика атмосферы и океана. 1990. Т. 26. № 6. С. 584–593.
7. Арефьев В.Н., Каменоградский Н.Е., Кашин Ф.В., Устинов В.П. Исследование интегрального содержания водяного пара в атмосфере // Изв. АН СССР. Физика атмосферы и океана. 1995. Т. 31. № 5. С. 660–666.
8. Каменоградский Н.Е., Кашин Ф.В. Спектроскопические измерения содержания метана в атмосфере // *Тр. ИЭМ*. 1995. Вып. 25(160). С. 15–25.
9. Arefev V. N., Kamenogradsky N.Ye., Kashin F.V., Visheratin K.N., Ustinov V.P. The spectroscopic method for atmospheric carbon dioxide and water vapor investigation // *SPIE*. 1997. V. 3237. P. 144–151.
10. Мироненков А.В., Поберовский А.В., Тимофеев Ю.М. Методика интерпретации инфракрасных спектров прямой солнечной радиации для определения общего содержания атмосферных газов // Изв. АН. Физика атмосферы и океана. 1996. Т. 32. № 2. С. 207–215.
11. Мироненков А.В., Поберовский А.В., Тимофеев Ю.М. Спектроскопические измерения общего содержания метана в атмосфере вблизи Санкт-Петербурга // Изв. АН. Физика атмосферы и океана. 1996. Т. 32. № 4. С. 471–478.
12. Мироненков А.В., Макарова М.В., Поберовский А.В. Результаты спектроскопических измерений общего содержания атмосферного СО в Петергофе // *Вест. СПбГУ*. 1997. Сер. 4. Вып. 3. № 18.
13. Арефьев В.Н., Дианов-Клоков В.И., Малков И.П. Полевой спектральный комплекс для исследования содержания в атмосфере загрязняющих газов // *Тр. ИЭМ*. 1978. Вып. 8(81). С. 73–78.
14. Арефьев В.Н., Вишератин К.Н., Кашин Ф.В., Устинов В.П. Аппаратура для измерений спектроскопическим методом интегрального содержания газов в атмосфере // *Тр. ИЭМ*. 1995. Вып. 25(160). С. 119–125.
15. Kamenogradsky N.Ye., Kashin F.V., Grechko Ye.I., Dzhola A.V., Poberovsky A.V., Divina S.A. Measurements of methane content in the atmosphere with the use of several modifications of the spectroscopic method and instrumentation // *Proc. SPIE*. 1998. V. 3583. P. 542–546.

16. *Kashin F.V., Kamenogradsky N.Ye., Grechko Ye.I., Dzhola A.V., Poberovsky A.V., Makarova M.V.* Measurements of water vapor and methane contents in the atmosphere with the use of several modifications of the spectroscopic method and instrumentation // *Proc. SPIE*. 1999. V. 3983. P. 493–498.
17. *Rothman L.S. et al.* The HITRAN molecular database: editions of 1991 and 1992 // *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*. 1992. V.48. P. 469–507.
18. *Rothman L.S.* HITRAN'96 // *Hitran newsletter*. September 1996. V. 5. № 1. P. 1–4.

Comparisons of Different Methods of Ground-Based Spectroscopic Measurements of the Total Methane Content in the Atmosphere

F. V. Kashin*, **N. E. Kamenogradskii***, **E. I. Grechko****, **A. V. Dzhola****,
A. V. Poberovskii***, and **M. V. Makarova*****

* *Institute of Experimental Meteorology,
pr. Lenina 82, Obninsk, Kaluga oblast, 249020 Russia*

** *Oboukhov Institute of Atmospheric Physics, Russian Academy of Sciences,
Pyzhevskii per. 3, Moscow, 109017 Russia*

*** *Research Institute of Physics, St. Petersburg State University,
Ul'yanovskaya ul. 1, Petrodvorets, 198504 Russia
E-mail: pober@troll.phys.spbu.ru*

Received June 7, 2000

Abstract—Spectroscopic measurements of the total contents (TCs) of a number of important atmospheric gases (methane, CO, water vapor, and others) are regularly taken at the Institute of Atmospheric Physics (IFA), the Institute of Experimental Meteorology, and the Research Institute of Physics. Different systems of monitoring gaseous constituents must be intercalibrated to analyze measurement data obtained in different regions and to use the network of ground-based measurements as a unified system of validating satellite measurements. Special programs on comparisons of the results of independent measurements of the methane TC were carried out at the IFA Zvenigorod Research Station in different seasons of 1997–1998. The basic results obtained from these programs are analyzed in this paper. It is shown that, for consistent results of total methane measurements to be obtained by different methods, their adaptation to the local conditions of measurements and the use of the unified spectroscopic information are of great importance.