

УДК 551.510.4

## НАЗЕМНЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ ОБЩЕГО СОДЕРЖАНИЯ ОЗОНА ИК-МЕТОДОМ

© 2011 г. Я. А. Виролайнен, Ю. М. Тимофеев, Д. В. Ионов,  
А. В. Поберовский, А. М. Шаламянский

Санкт-Петербургский государственный университет  
198504 Санкт-Петербург, Петродворец, ул. Ульяновская, 1  
E-mail: tim@troll.phys.spbu.ru

Поступила в редакцию 02.06.2010 г., после доработки 16.11.2010 г.

Для интерпретации наземных измерений спектров прямого солнечного ИК излучения с помощью Фурье-спектрометра Брюкера разработана и реализована методика определения общего содержания озона (ОСО). При определении ОСО использовались шесть спектральных интервалов из полосы поглощения озона 9.6 мкм и коротковолнового крыла полосы поглощения углекислого газа 15 мкм, в которых влияние других атмосферных параметров на регистрируемое солнечное излучение сведено к минимуму. Потенциальные погрешности ИК-метода определения ОСО для выбранной спектральной схемы при учете влияния погрешностей измерений и задания вертикальных профилей температуры и влажности, при различных отношениях сигнал/шум и зенитных углах Солнца составляют менее 1%. Проведен анализ 269 спектров прямого солнечного ИК излучения высокого разрешения ( $0.005\text{--}0.008\text{ см}^{-1}$ ), измеренных в Петергофе в течение 52 дней в период с марта по ноябрь 2009 г. Полученные значения ОСО сопоставлены с результатами независимых наземных измерений ОСО в Воейково (ГГО) с помощью спектрофотометра Добсона и озонметра М-124, а также с данными спутникового прибора ОМІ. Показано, что средние отклонения между результатами измерений ОСО с помощью трех наземных приборов составляют не более 0.4%. Среднеквадратичные рассогласования между измерениями на спектрометре Брюкера и с помощью рассматриваемых спутниковых и наземных приборов составляют 3–4%. Сопоставление различных серий измерений показало, что оценка сверху погрешности измерений ОСО на спектрометре Брюкера составляет 2.5–3% (при игнорировании возможных пространственно-временных рассогласований измерений). Анализ дневных вариаций измерений ОСО в условиях стабильной атмосферы дает оценку сверху случайной компоненты погрешности измерений ОСО на спектрометре Брюкера ~ 3 е.Д. (порядка 1%).

**Ключевые слова:** озонметрия, спектроскопические измерения, дистанционное зондирование, атмосфера.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Мониторинг содержания озона в земной атмосфере, в связи с его важным значением в формировании УФ освещенности поверхности и радиационных свойств атмосферы, проводится различными дистанционными (наземными, спутниковыми, самолетными и аэростатными) и локальными методами. Общее содержание озона (ОСО) является наиболее доступной для измерений и в то же время весьма информативной характеристикой состояния озонового слоя. Возможность постоянно следить за состоянием аппаратуры и, соответственно, контролировать качество данных делает результаты наземных измерений ОСО опорными и для других видов измерений озона.

С начала исследований озонового слоя атмосферы было предложено много различных вариантов аппаратуры для измерений ОСО [1]. Наибольший

вклад в развитие озонметрии внесли работы Добсона [2, 3]. Измерения с помощью спектрофотометров его конструкции еще в 30-х годах прошлого столетия положили начало регулярным наблюдениям ОСО. И в настоящее время эти приборы являются наиболее точными инструментами для измерений ОСО. В начале 1960-х гг. были начаты наблюдения с помощью фильтровых озонметров М-83 [4], а позже их сменили озонметры М-124 [5]. С середины 1970-х гг. появились автоматизированные спектрофотометры Брюера [6, 7]. Всемирная метеорологическая организация (ВМО) объединила большинство станций наблюдений ОСО в мировую озонную сеть, а приборы трех указанных выше типов стали ее инструментальной основой.

Высокие требования к точности измерений ОСО (5–10 е.Д. и менее), сформулированные различными международными группами (см., напри-

мер, [8]), стимулируют совершенствование измерительной аппаратуры и методик обработки данных измерений. Одним из перспективных наземных методов измерений ОСО является метод, основанный на измерениях спектров прямого солнечного ИК излучения с высоким спектральным разрешением [9, 10]. Так, например, в [11] обсуждаются возможности измерений ОСО с помощью ИК-метода с погрешностями  $\sim 1$  е.Д., т.е. с относительной погрешностью  $\sim 0.3$ – $0.5\%$ . При этом, однако, необходимо выполнение многих требований к характеристикам аппаратуры, используемой априорной информации и методикам интерпретации результатов измерений. Существенно также, что данный метод позволяет получить в наземных измерениях определенную информацию о вертикальных профилях содержания озона [12–14].

Для начала реализации наземного ИК-метода определения вертикальных профилей содержания озона в России в данной статье приведены примеры измерений спектров ИК солнечного излучения с высоким спектральным разрешением, описана и исследована простая методика определения ОСО, приведены примеры ее использования, а также проанализирована точность ИК-метода на основе сопоставления с данными независимых измерений и анализа самих данных измерений. В качестве независимых измерений использовались традиционные наземные измерения с помощью приборов М-124 и Добсона в филиале ГГО (п. Воейково), а также спутниковые измерения с помощью аппаратуры OMI.

## 2. НАЗЕМНЫЙ ИК-МЕТОД ОПРЕДЕЛЕНИЯ ОСО

Реализация ИК-метода и его анализ были осуществлены в СПбГУ на основе измерений спектров прямого солнечного излучения высокого разрешения с помощью Фурье спектрометра Брюкера, осуществленных в СПбГУ (Петергоф) в 2009 г. Основные характеристики этого прибора и примеры его использования для определения ОС различных газов приведены в работах [15–17].

Наземные ИК-измерения ОСО основаны на интерпретации измерений прямого солнечного излучения в различных областях и спектральных интервалах, чаще всего в полосах поглощения озона вблизи 4.8 и 9.6 мкм. При измерениях с высоким спектральным разрешением можно использовать сотни отдельных спектральных линий в этих полосах, а также дополнительные измерения для учета (исключения) влияния температуры атмосферы и “мешающих” газов (прежде всего водяного пара). Во многих работах [11–14] были получены оценки погрешностей ИК-метода. В зависимости от используемых интервалов спектра, качества априор-

ной информации, характеристик приборов, общие погрешности определения ОСО этим методом оцениваются от  $\sim 0.3$  до 3–4%.

### 2.1. Наземные спектры прямого солнечного излучения

Основные характеристики Фурье-спектрометра Брюкера IFS-125 подробно рассмотрены в работах [15–17]. В описываемых измерениях использовался фильтр F3, выделявший спектральную область 650–1400  $\text{см}^{-1}$ . За 52 солнечных дня в период с 9 марта по 5 ноября 2009 г. было зарегистрировано 267 спектров высокого качества. Отметим, что во всех измерениях использовался приемник излучения МСТ, угловая апертура прибора составляла  $2.5^\circ$ . Спектральное разрешение измерений в отобранном ансамбле спектров составляло  $0.005$ – $0.008 \text{ см}^{-1}$ . В большинстве спектров интерферограммы усреднялись по 10 сканам, но в некоторых спектрах их число меньше. В отдельные дни измерений число спектров составляло до 10–15, в другие – 1–2. Зенитный угол Солнца при измерениях менялся от  $36.5^\circ$  до  $88.9^\circ$  градусов. При некоторых измерениях наблюдались полупрозрачные облака или дымка, которые незначительно влияли на качество спектров. 113 спектров измерены в марте–мае, 115 – в июне–августе и 39 – в сентябре–ноябре 2009 г. Для аподизации рассчитанных спектров мы использовали аппаратную функцию вида  $\varphi(x) = D \frac{\sin^2(\pi Dx)}{(\pi Dx)^2}$ , где  $D = 100$  см (разность хода), которая позволяет достаточно хорошо согласовать измеренные и расчетные спектры. Типичные отношения сигнал/шум в анализируемых спектрах составляли 100–150.

### 2.2. Выбор оптимальных спектральных “окон” солнечных спектров

Выражение для прошедшей через атмосферу солнечной радиации  $I_{\Delta\nu} \downarrow$ , измеренной на высотном уровне с давлением  $p_0$  в конечном спектральном интервале  $\Delta\nu$  с учетом аппаратной функции прибора  $\varphi(\nu)$ , можно записать следующим образом (1):

$$I_{\Delta\nu} \downarrow = \int_{\Delta\nu} \varphi(\nu) S_\nu \exp \left\{ -\frac{\sec \theta}{g} \int_0^{p_0} \sum_j k_{\nu,p,j} q_{p,j} dp \right\} d\nu. \quad (1)$$

Здесь  $S_\nu$  – спектр солнечного излучения на верхней границе атмосферы [18],  $k_{\nu,p,j}$  и  $q_{p,j}$  – коэффициенты поглощения во всех линиях и континуумах и отношения смеси различных атмосферных поглощающих газов соответственно ( $j$  – индекс газа) на уровне с давлением  $p$ ,  $\theta$  – зенитный угол Солнца,  $g$  – ускорение свободного падения.

**Таблица 1.** Спектральные интервалы (в см<sup>-1</sup>) и число спектральных “точек”, использованные для определения ОСО

Интервал	773.1–773.4	987.4–987.6	989.8–990.0	993.6–993.8	1002.6–1002.8	1044.0–1044.2
Число “точек”	159	106	107	106	106	106

Для расчета спектров солнечного излучения в качестве параметров тонкой структуры полос поглощения использована база данных HITRAN-2004 [19] и вертикальные профили температуры и содержания газовых компонент для лета (средние широты) из различных баз данных (AFGL-86 [20] и [21]). Хотя измерения солнечного излучения проводятся в линиях поглощения озона, в расчетах учитывалось поглощение и других газов, в частности, водяного пара (континуальное и селективное) и углекислого газа.

Для выбора оптимальных спектральных областей спектров солнечного излучения при определении ОСО были использованы следующие критерии:

1. Максимальная чувствительность измерений солнечных спектров к вариациям ОСО.
2. Минимизация “мешающих факторов” – неопределенностей в задании вертикальных профилей температуры и содержания водяного пара.
3. Качество априорной спектроскопической информации.

Поскольку не всегда есть возможность пользоваться данными радиозондирования о вертикальных профилях температуры и влажности, при выборе спектральных областей для их использования с целью определения ОСО были выбраны спектральные области (“окна”) с минимальным влиянием неопределенностей этих параметров.

Используя в качестве первого приближения каналы, рекомендуемые для определения содержания озона в работе [22], были отобраны около 20 спектральных интервалов шириной 0.2–0.4 см<sup>-1</sup> в длинноволновой области и центре полосы поглощения озона 9.6 мкм и коротковолновом крыле полосы поглощения углекислого газа. После этого нами были рассчитаны и проанализированы вариационные производные по вертикальному профилю содержания озона, демонстрирующие чувствительность излучения к изменениям содержания озона в различных слоях атмосферы, а также вариации излучения в зависимости от вариаций ОСО, температуры и влагосодержания. Из дальнейшего рассмотрения были исключены спектральные интервалы, в которых излучение значительно более чувствительно к изменениям других параметров, кроме ОСО, а

также те интервалы, в которых модель (на основе параметров HITRAN-2004) недостаточно точно описывает экспериментальные данные.

В табл. 1 представлены отобранные спектральные интервалы и указано количество спектральных “точек”, используемых в нашей методике определения ОСО по измерениям спектров солнечного излучения с помощью спектрометра Брюкера. В общей сложности в схеме решения обратной задачи использовалось 690 спектральных отсчетов в спектрах солнечного излучения. Использование большого числа измерений позволяет минимизировать влияние случайных погрешностей измерений.

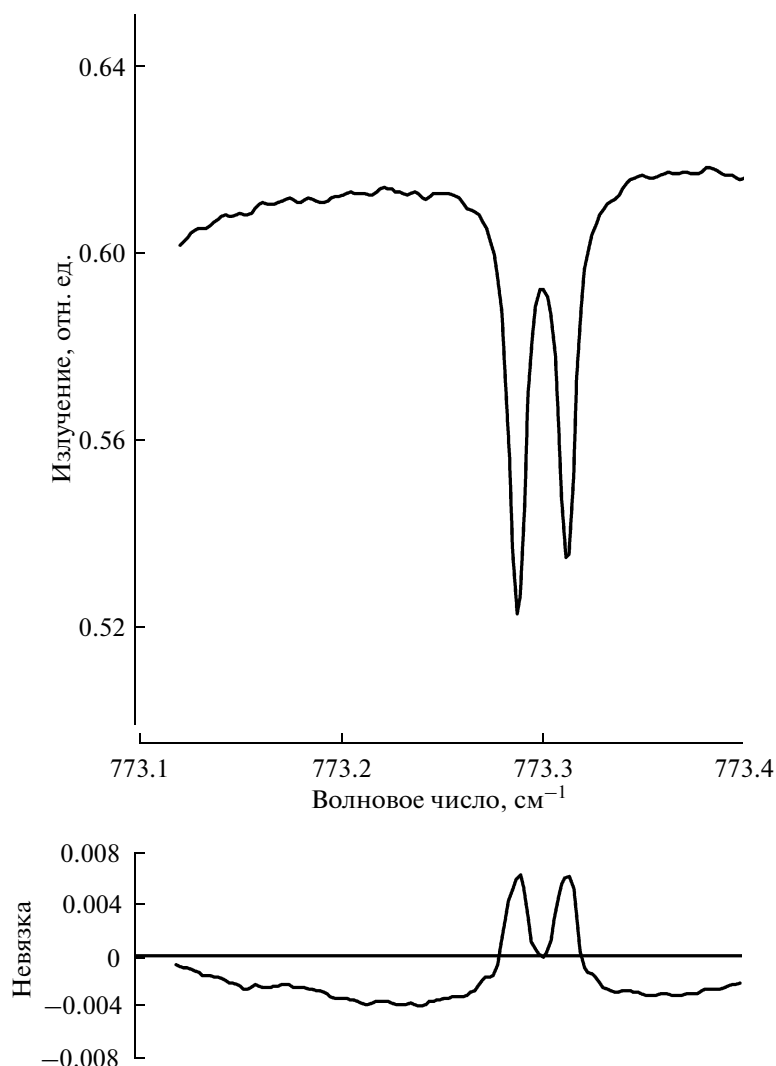
### 2.3. Методика интерпретации наземных измерений

Обратную задачу по определению ОСО можно сформулировать как решение уравнения, учитывающего зависимость вектора измеренного излучения  $y$  от вектора искомым атмосферных параметров  $x$ .

$$y = F(x_i) + \varepsilon. \tag{2}$$

Здесь  $F(x)$  – в общем случае нелинейный оператор прямой задачи,  $\varepsilon$  – вектор ошибок измерений, обусловленных шумами различного происхождения и систематическими ошибками. Для упрощения решения обратной задачи определялся множитель, корректирующий начальный профиль содержания озона для получения информации об ОСО. Отметим, что использованные нами начальные профили содержания озона были различны для разных сезонов и выбирались по данным многолетних наблюдений в Потсдаме (Германия) [21], что соответствует средним широтам, на которых находится и Санкт-Петербург. По причине присутствия в результатах измерений систематических ошибок, а также для компенсации неопределенности учета континуального ослабления солнечного излучения, вызванного, например, аэрозолем, при решении обратной задачи определялись коэффициенты корректирующей функции в виде линейного слагаемого:

$$I_{\text{корр}} = c_1 \frac{v_2 - v}{v_2 - v_1} + c_2 \frac{v - v_1}{v_2 - v_1}. \tag{3}$$



**Рис. 1.** Спектр в интервале  $773.1\text{--}773.4\text{ см}^{-1}$  (вверху), измеренный в 12 ч 08 мин 25.05.2009 г., и невязка в излучении как результат решения обратной задачи.

Здесь  $c_1$  и  $c_2$  — коэффициенты коррекции, постоянные в некоторой области спектра, ограниченной волновыми числами  $\nu_1$  и  $\nu_2$ , представляющие собой смещения значений интенсивности излучения от его истинного положения на границах рассматриваемой области. Следует отметить, что коэффициенты  $c_1$  и  $c_2$  определяются по отдельности для двух областей: коротковолнового крыла полосы поглощения углекислого газа 15 мкм и области полосы поглощения озона 9.6 мкм.

Решение нелинейного уравнения (2) может быть интерпретировано как предел последовательности линейных задач, каждая из которых решается методом статистической регуляризации, при этом априорная информация о решении и погрешностях измерений остается неизменной, в то время как линейное приближение к оператору  $F(x)$  по-

следовательно уточняется в окрестности решения. Итерационный процесс нахождения наиболее вероятной оценки  $\bar{x}$  описывается выражением:

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_i + \left( \mathbf{S}_a^{-1} + \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \mathbf{K}_i \right)^{-1} \times \left( \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x}_i)] - \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a) \right), \quad (4)$$

где  $\mathbf{x}_a$  — априорно задаваемый средний вектор. Отметим, что в качестве задаваемых профилей температуры и влажности мы используем их среднемесячные значения, полученные по многолетним данным на различных станциях, расположенных в средних широтах.

При решении обратной задачи по формуле (4) минимизируется спектральная невязка в измеренном и рассчитанном излучении. Она же является критерием останова итерационного процесса реше-

Таблица 2. Потенциальные погрешности измерений ОСО

Схема	I С/Ш = 150 ЗУС = 55° ΔT = 1.5° Δq <sub>H<sub>2</sub>O</sub> = 5%	II С/Ш = 100 ЗУС = 55° ΔT = 1.5° Δq <sub>H<sub>2</sub>O</sub> = 5%	III С/Ш = 200 ЗУС = 55° ΔT = 1.5° Δq <sub>H<sub>2</sub>O</sub> = 5%	IV С/Ш = 150 ЗУС = 35° ΔT = 1.5° Δq <sub>H<sub>2</sub>O</sub> = 5 %	V С/Ш = 150 ЗУС = 75° ΔT = 1.5° Δq <sub>H<sub>2</sub>O</sub> = 5%	VI С/Ш = 150 ЗУС = 55° ΔT = 5° Δq <sub>H<sub>2</sub>O</sub> = 5%	VII С/Ш = 150 ЗУС = 55° ΔT = 1.5° Δq <sub>H<sub>2</sub>O</sub> = 20%
ОСО	0.6%	0.8%	0.4%	0.8%	0.2%	0.6%	0.6%

ния нелинейной обратной задачи, когда невязка становится сопоставима с шумом прибора. На рис. 1 в качестве примера, иллюстрирующего качество решения обратной задачи, приведены измеренный и расчетный спектр (22.05.2009 г., измерения 12:08), а также невязка в излучении после решения обратной задачи. Отношение сигнал/шум для этого измеренного спектра составляет около 150. Из рис. 1 видно, что невязка не превышает указанный шум измерения, максимум невязки приходится на линии поглощения озона. Характерная форма расхождения между измеренным и полученным в ходе решения обратной задачи спектрами может свидетельствовать о наличии некоторого сдвига по волновому числу между рассчитанными и измеренными спектрами.

2.4. Оценки погрешностей наземных измерений ОСО

Погрешности измерений ОСО с помощью рассматриваемого ИК-метода зависят от многих факторов: характеристик прибора, выбора и числа спектральных интервалов, точности задания вертикальных профилей температуры и содержания “мешающих газов” и т.д. В работе [14] было проанализировано влияние на точность определения ОСО в атмосфере таких факторов, как спектральное разрешение прибора, отношение сигнал/шум, спектральная схема измерений, наличие данных о приземной концентрации озона, точность задания профилей температуры и влажности. Поскольку в то время сами измерения на спектрометре Брюкера еще не осуществлялись, все оценки получены нами для некоторого идеализированного прибора с предполагаемыми характеристиками и для положения Солнца в зените. В настоящее время накоплен значительный банк измеренных спектров с уже вполне определенными параметрами, такими как спектральное разрешение, отношение сигнал/шум при определенных зенитных углах Солнца и т.д. Поэтому исследование потенциальных возможностей ИК-метода определения ОСО было продолжено при конкретных характеристиках прибора, функ-

ционирующего в СПБГУ, и выбранных оптимальных областей солнечного спектра.

После отбора спектральных каналов мы провели ряд расчетов, чтобы определить, насколько стабильна выбранная спектральная схема и какие факторы могут влиять на потенциальную точность метода. Отношение сигнал/шум в измеренных спектрах в интересующей нас спектральной области составляло 100–150. Его можно несколько улучшить, например, за счет усреднения нескольких измеренных подряд спектров в пределах близких значений воздушной массы (схемы II и III табл. 2). Поскольку измерения проводятся в течение всего безоблачного дня и в различные сезоны, то были исследованы зависимости точности определения ОСО от зенитного угла Солнца (схемы IV и V) и от погрешностей задания профилей температуры и влагосодержания (схемы VI и VII).

Для оценок потенциальной погрешности ИК-метода изменчивость профиля озона задавалась равной 40%. При этом априорная изменчивость ОСО составляла 20%. В численных исследованиях потенциальной погрешности ИК-метода использовались расчеты матрицы ошибок дистанционного метода измерений S:

$$S = (S_a^{-1} + K^T S_\varepsilon^{-1} K)^{-1} \tag{5}$$

Здесь S<sub>a</sub> – априорная матрица изменчивости совокупного искомого вектора состояния атмосферы (в нашем случае – содержания озона, температуры, влагосодержания, и т.д.), K – матрица вариационных производных излучения по атмосферным параметрам, S<sub>ε</sub> – матрица некоррелированных ошибок измерения солнечного излучения, индекс T – признак транспонирования. Подчеркнем, что при анализе потенциальной точности ИК-метода учитывались не только погрешности измерений, но и возможные погрешности задания профилей температуры и влажности атмосферы.

В табл. 2 приведены основные результаты оценки потенциальных погрешностей ИК-метода, реа-

лизованного в СПбГУ. Во втором столбце табл. 2 (схема I) приведены типичные значения потенциальной погрешности измерений ОСО при некоторых средних и/или наиболее вероятных параметрах, таких как отношение сигнал/шум 150, зенитный угол солнца (ЗУС)  $55^\circ$ , неопределенность температурного профиля 1.5 К и неопределенность задания профиля влагосодержания 5%, которые могут быть получены из данных радиозондирования. Из таблицы видно, что потенциальная точность определения ОСО при этом составляет 0.6%. В третьем и четвертом столбцах табл. 2 изменено отношение С/Ш на 100 (схема II) и 200 (схема III) соответственно. При этом видно, что при увеличении отношения С/Ш со 150 до 200 погрешность определения ОСО уменьшается на 50%, а при уменьшении до 100 — увеличивается на 50%.

Из 5 и 6 столбцов табл. 2 видно, что при малых зенитных углах Солнца ( $35^\circ$  — схема IV) потенциальная погрешность определения ОСО увеличивается в 2 раза, а при больших зенитных углах ( $75^\circ$  — схема V) наоборот, уменьшается в 2 раза. Можно сделать вывод о том, что при низком положении Солнца точность определения ОСО возрастает за счет увеличения оптической толщи атмосферы. Следует отметить, что этот вывод не учитывает такой важный источник погрешностей при больших зенитных углах Солнца, как изменение ЗУС в течение измерений интерферограмм.

Из 7 и 8 столбцов таблицы видно, что увеличение неопределенности задания профилей температуры и влагосодержания в несколько раз практически не оказывает влияния на оценки потенциальной точности определения ОСО, что говорит о том, что использованный нами набор каналов позволил минимизировать влияние этих “мешающих” атмосферных параметров. Таким образом, в привлечении дополнительных данных радиозондирования при интерпретации спектральных ИК-измерений нет необходимости.

Следует подчеркнуть, что приведенные в табл. 2 погрешности определения ОСО являются потенциально возможными, так как при получении численных оценок не учтен ряд важных факторов, влияющих на точность определения ОСО при интерпретации данных реальных измерений, а именно, погрешностей задания спектральной аппаратной функции прибора, влияния априорного профиля  $O_3$ , ошибок задания спектроскопических параметров спектральных линий и т.п.

### 3. ИЗМЕРЕНИЯ ОСО С ПОМОЩЬЮ ДРУГИХ ПРИБОРОВ

#### 3.1. Наземные измерения ОСО с помощью спектрофотометра Добсона и озонметра М-124

Наземные измерения ОСО осуществлялись в филиале ГГО (пос. Воейково), расположенном на расстоянии около 50 км от Петергофа, с помощью спектрофотометра Добсона и фильтрового озонметра М-124. Для измерений ОСО на этих приборах используется дифференциальный метод, заключающийся в регистрации УФ радиации в диапазоне длин волн 290–350 нм в двух или более спектральных интервалах с дальнейшим определением содержания озона по логарифму отношения измеренных потоков. Спектрофотометр Добсона представляет собой двойной кварцевый монохроматор, который из спектра приходящей радиации выделяет попарно следующие участки спектра: пару 305.5/325.4 нм, пару 311.45/332.4 нм и пару 317.6/339.8 нм [2]. Наблюдения в основном выполняются по прямому Солнцу, погрешность единичного измерения ОСО при этом не превышает 2%.

Спектрофотометр Добсона № 108 (ГГО Воейково) служит эталонным прибором озонметрической сети Росгидромета и регулярно (один раз в 4 года) проверяется в международных сравнениях с эталонным прибором ВМО. За период с 1984 по 2009 г. расхождения с результатами измерений на эталонном приборе ВМО не превышали 1%. Последние сравнения проходили в Испании в сентябре 2009 г., и расхождение составило 0.2%.

В фильтровых озонметрах М-124 используются УФ светофильтры, выделяющие два спектральных диапазона шириной около 20 нм с максимумами на длинах волн 302 и 326 нм [23]. Многолетние измерения с помощью озонметра М-124 показали, что их погрешность единичного измерения ОСО по прямому Солнцу (при зенитных углах  $20-70^\circ$ ) не превышает 5%, а погрешность определения среднего за день значения ОСО составляет 3%.

Наблюдения ОСО с помощью озонметра М-124 № 403 (результаты измерений на этом приборе использованы для сравнения с результатами измерений на Фурье-спектрометре Брюкера), который является рабочим прибором на озонметрической станции Воейково, проводятся ежедневно (8 сеансов в день). В ясные дни проводятся параллельные наблюдения на спектрофотометре Добсона и максимальные расхождения с этим прибором не превышают 10 е.Д.

#### 3.2. Спутниковые измерения ОСО с помощью прибора OMI

Прибор OMI продолжает серию сканирующих в горизонтальном направлении спутниковых спек-

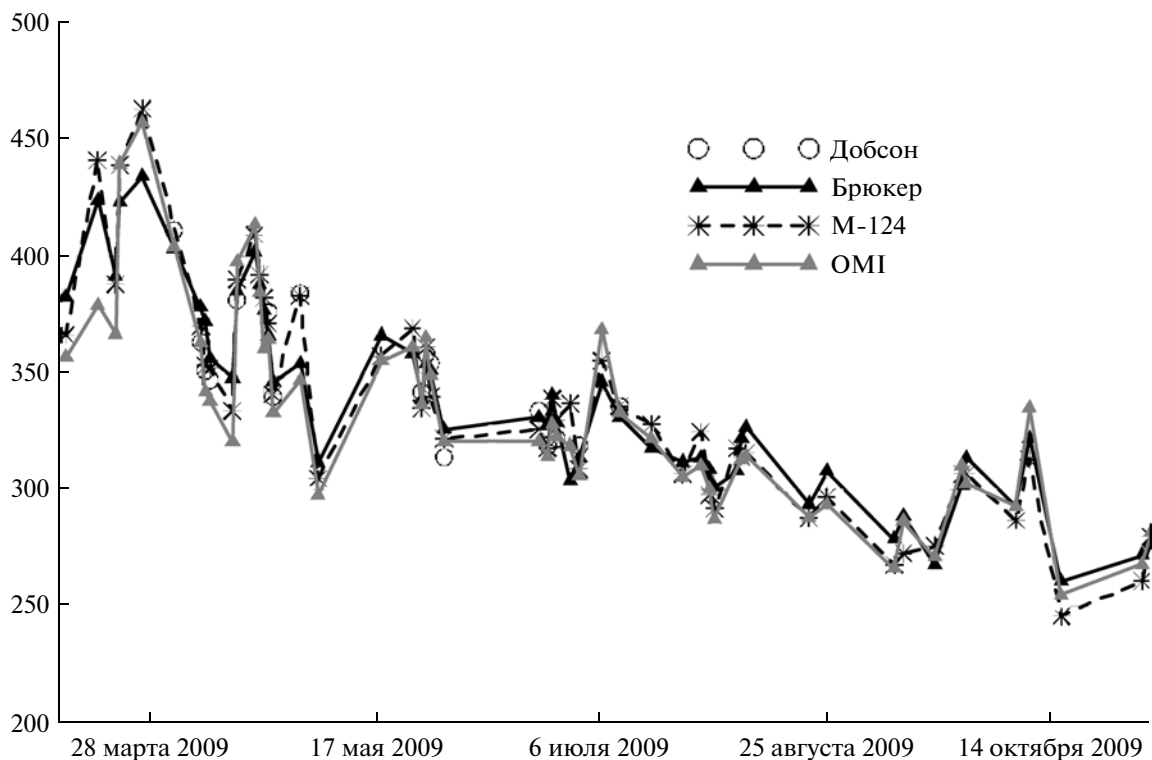


Рис. 2. Временной ход СОС в районе Санкт-Петербурга, полученный по данным измерений с помощью различных приборов.

трометров для надирных измерений уходящего (отраженного и рассеянного) излучения в различных диапазонах спектра, таких как TOMS, GOME и SCIAMACHY. Прибор OMI (Ozone Monitoring Experiment [24]) работает на борту американского спутника AURA, запущенного в 2004 г. на околополярную солнечно-синхронную орбиту. На приборе выполняются измерения спектров уходящего излучения в области 270–500 нм с разрешением ~0.4 нм. Схема сканирования прибора OMI позволяет выполнять ежедневное глобальное картирование поля СОС с пространственным разрешением в надире ~13 × 24 км<sup>2</sup>. Чтобы продлить ряд многолетних измерений с помощью спутниковой аппаратуры TOMS (начатых в 1978 г.), для интерпретации данных измерений OMI используется алгоритм TOMS версии 8. В этом алгоритме используются данные измерений уходящего излучения в нескольких спектральных каналах УФ области (~310–360 нм) с разрешением ~1 нм. Методика основана на регрессионном подходе: с помощью радиационной модели поле уходящего излучения рассчитывается заранее для различных значений содержания озона при разных условиях наблюдений и различных параметрах атмосферы и подстилающей поверхности. Затем по результатам измерений определяется соответствующая этому излучению величина СОС [25]. Кроме того, с целью использования преимуществ

многоволновых спектральных измерений OMI применяется и альтернативный алгоритм интерпретации результатов измерений, основанный на методике дифференциального поглощения DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy), заключающейся в минимизации рассогласования между поглощением по результатам измерений и поглощения, рассчитанного по линейной комбинации известных спектров молекулярного поглощения (O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, O<sub>4</sub>) [26]. В настоящей работе использовались данные OMI основной версии обработки (OMI-TOMS), заявленная погрешность которых составляет менее 2% [27].

#### 4. СРАВНЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ РАЗЛИЧНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ СОС

При сравнении значений СОС, полученных с помощью различных методов и приборов, мы использовали данные измерений с помощью прибора Брюккера, осредненные за день, поскольку имеющиеся для сопоставления данные по СОС являются средненежными. На рис. 2 показан временной ход СОС, полученный по данным измерений на четырех приборах. Из рисунка видно, что временной ход СОС по данным различных приборов хорошо согласуется качественно и количественно. Можно отметить, что амплитуда изменений СОС по данным

**Таблица 3.** Сопоставление данных по ОСО, измеренных с помощью различных приборов

Сопоставляемые приборы	Число сопоставлений	Среднее расхождение	СКО	Коэффициент корреляции
Брюкер–Добсон	17	0.7 е.Д. (0.3%)	11.4 е.Д. (3.2%)	0.90
Брюкер–ОМІ	51	5.3 е.Д. (1.7%)	14.2 е.Д. (4.1%)	0.95
Брюкер–М-124	51	0.6 е.Д. (0.4%)	11.7 е.Д. (3.4%)	0.97
М-124–Добсон	16	–0.2 е.Д. (–0.06%)	6.8 е.Д. (2.0%)	0.96
М-124–ОМІ	50	4.6 е.Д. (1.3%)	13.5 е.Д. (3.8%)	0.96
ОМІ–Добсон	17	–5.5 е.Д. (–1.7%)	12.2 е.Д. (3.5%)	0.91

спектрометра Брюкера несколько меньше, чем по данным прибора ОМІ или М-124. Особенно хорошо это видно в ранний весенний период измерений, когда значения ОСО достаточно высоки (около 400 е.Д.). Кроме того, можно отметить несколько завышенные по сравнению с другими приборами значения ОСО по данным спектрометра Брюкера в конце августа 2009 г. при малых значениях ОСО (менее 300 е.Д.).

Для более детального сопоставления проанализируем средние и среднеквадратические отклонения, а также корреляции между данными различных приборов. Поскольку более представительные ансамбли данных имеются для приборов ОМІ и М-124 (52 дня), то основное внимание мы будем уделять анализу именно этих ансамблей. Данные измерений ОСО на спектрофотометре Добсона имеются только для 17 дней. Относительно малый ансамбль сравнения может давать статистически

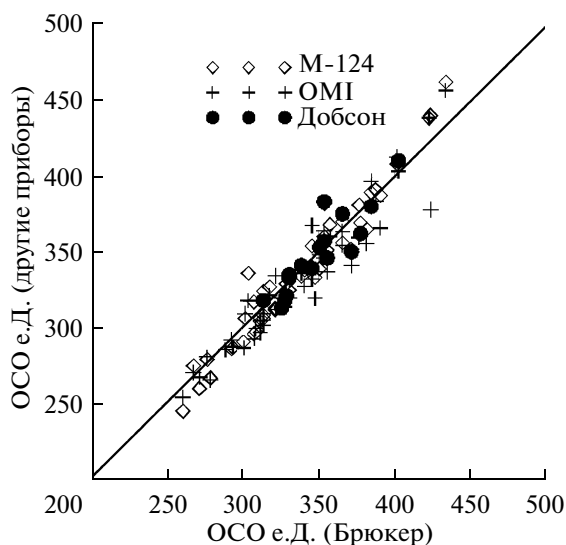
недостовверную информацию о рассогласовании сравниваемых данных.

В табл. 3 представлены статистические характеристики попарного сравнения результатов измерений ОСО на приборах Брюкера, Добсона, М-124 и ОМІ. Приведены средние и среднеквадратичные рассогласования, а также коэффициенты корреляции (КК) между измерениями на различных приборах. Коэффициенты корреляции близки к единице с максимальным значением 0.97 для пары Брюкера–М-124. Корреляция между данными измерений на спектрофотометре Добсона и результатами измерений с помощью других приборов несколько хуже, что может быть вызвано недостаточным количеством данных измерений на спектрофотометре Добсона.

Рассматривая рассогласования между результатами измерений с помощью различных приборов, можно заметить, что среднее расхождение (третий столбец в табл. 3) между измерениями в Петергофе (Брюкер) и Воейково (Добсон, М-124) составляет меньше процента. В то же время среднее расхождение данных наземных измерений со спутниковыми данными ОМІ составляет 1–2%, и ОМІ дает в среднем более низкие значения ОСО.

Анализируя среднеквадратичное рассогласование, можно увидеть, что наибольшее значение среднеквадратичное расхождение (4%) наблюдается между результатами наземных измерений на спектрометре Брюкера и результатами спутниковых измерений с помощью прибора ОМІ. СКО между данными измерений ОСО с помощью приборов ОМІ и М-124 также близко к 4%.

Среднеквадратичные рассогласования между результатам измерений в Петергофе и Воейково составляют 3–3.5%. Эти расхождения могут быть связаны как с погрешностями самих измерений, так и с пространственной и временной изменчивостью озона. Возвращаясь к рис. 2, на котором показан временной ход ОСО в районе Санкт-Петербурга, можно видеть, что в отдельные периоды (апрель–июль 2009 г.) результаты измерений в Воейково и в



**Рис. 3.** Результаты измерений ОСО на спектрометре Брюкера в сопоставлении с результатами измерений с помощью других приборов.



Петергофе хорошо согласуются, в то же время в другие дни (март и август 2009 г.) расхождения значительны. При этом при высоких значениях ОСО (март) – измерения на спектрометре Брюкера дают обычно более низкие значения ОСО, чем измерения на М-124. Это свидетельствует о том, что наш ИК-метод измерений ОСО может занижать вариации ОСО, наблюдающиеся в атмосфере.

В дополнение к корреляциям, представленным в табл. 3, приведем рис. 3, который демонстрирует степень согласованности между результатами измерений в зависимости от величины ОСО. Отметим, что среднее значение ОСО по всем ансамблям составляет около 330 е.Д., СКО – порядка 45 е.Д. (около 15%). Глядя на рис. 3, можно отметить, что данные М-124 и спектрофотометра Добсона достаточно хорошо ложатся на прямую (что также следует из отсутствия сдвигов между этими данными); а в то же время при сравнении с данными ОМІ наблюдается некоторое завышение значений ОСО, полученных спектрометром Брюкера. Более явно это следует для значений ОСО порядка 340–400 е.Д. (т.е. выше средних).

### 5. АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ СРАВНЕНИЯ

Сравнение результатов измерения ОСО ИК-методом с результатами наземных (спектрофотометр Добсона, спектрометр Брюера) и спутниковых измерений проводилось в ряде работ. При этом результаты этих сопоставлений заметно отличаются. Это связано с использованием различных спектральных интервалов, разного числа спектральных точек, различных методик интерпретации, отличиями характеристик используемых Фурье-спектрометров. Так, например, на ряде европейских станций NDACC (сеть для обнаружения изменений состава атмосферы – Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) используется один спектральный интервал 1000–1005 см<sup>-1</sup>, но на других станциях используются дополнительные интервалы. Для обработки данных измерений используют программы PROFFIT9 [11] и SFIT2 [12].

В работе [28] для определения ОСО использовались два спектральных окна в окрестностях 782.5 и 789 см<sup>-1</sup>. Показано, что среднее расхождение между результатами измерений на сетевых приборах Брюера и на приборе Брюкера составляет 1.9%, что заметно превышает средние значения рассогласования результатов наших ИК-измерений и измерений на М-124. Стандартные отклонения при этом достигали ~2.2%, а СКО ~4%. В этой же работе отмечалось также, что ИК измерения занижают вариации ОСО, что приводило, в частности, к завышению низких значений ОСО летом по измерениям на приборе Брюкера. В подобных сопоставлениях в работе [29] получены величины систематических

отклонений в ~4–5% между результатами УФ- и ИК-измерений. Близкие к указанным значениям СКО приведены в [30] при сравнении данных ИК-измерений со средним спектральным разрешением с данными спутниковых измерений с помощью прибора ОМІ.

Анализ качества спутниковых измерений ОСО с помощью прибора ОМІ путем сопоставления с данными измерений на пяти озонометрических станциях Испании показал, что средние значения рассогласования результатов спутниковых и наземных измерений находятся в диапазоне (–1.5)–(–2.5)%, а стандартные отклонения составляют 1.5–2.3% [31]. Суммарные СКО в этих сопоставлениях составили 4–5%.

Обширное сопоставление данных различных спутниковых измерений с результатами наземных измерений ОСО на мировой озонометрической сети выполнено в работе [32]. Средние разности и стандартные отклонения между результатами спутниковых измерений и измерений на фильтровых озонометрах М-124 достигают 3–4% и 4.5–6% соответственно. Сравнение данных наземных ИК-измерений ОСО на шести европейских станциях с данными других наземных измерений (спектрометры Добсона, Брюера и УФ-видимого диапазона спектра) представлено в работе [33]. Анализ приведенных там результатов сопоставления данных ИК-измерений ОСО с данными измерений на спектрофотометрах Добсона и Брюера показал, что средние расхождения с данными ИК-измерений находятся в диапазоне 0.4–8.6% (все ИК-измерения дают завышенные значения ОСО), а среднеквадратичные отклонения расхождений находятся в диапазоне 3.1–6.9%.

В предположении, что дисперсии отклонений между результатами серий измерений с помощью различных приборов есть сумма дисперсий измерительных погрешностей отдельных приборов и дисперсий отклонений за счет пространственно-временного рассогласования измерений, можно составить систему уравнений для определения этих неизвестных параметров, состоящую из уравнений вида:  $\sigma_{ij}^2 = \sigma_i^2 + \sigma_j^2 + \sigma_r^2$ , где  $\sigma_r^2$  – дисперсия, связанная с пространственно-временными различиями измерений,  $\sigma_{ij}^2$  – суммарная дисперсия рассогласований между результатами серий измерений двух приборов,  $\sigma_i^2$  и  $\sigma_j^2$  – дисперсии измерительных погрешностей приборов. В связи с отсутствием в настоящее время объективных данных о величине рассогласований значений ОСО, обусловленных пространственно-временными вариациями ОСО, при анализе погрешностей отдельных приборов мы предположили, что пространственные рассогласования отсутствуют (временными мы пренебрегаем,

так как во всех случаях рассматриваем осредненные за день значения). При этом для трех приборов: ОМІ, М-124 и Брюкера получаем систему, состоящую из трех уравнений вида:  $\sigma_{ij}^2 = \sigma_i^2 + \sigma_j^2$ . Мы ограничились этими тремя приборами, так как для них есть достаточно большая единообразная выборка из 52 измерений. Подставляя в качестве суммарной погрешности данные из табл. 3, получаем оценки сверху измерительных погрешностей приборов, которые составляют 2–2.5% для М-124, 2.5–3% для спектрометра Брюкера и 3–3.5% – для спутникового прибора ОМІ (приведенные диапазоны погрешностей связаны с изменениями абсолютных значений ОСО).

Другая оценка случайных погрешностей единичных измерений ОСО на Фурье-спектрометре Брюкера может быть получена по данным последовательности измерений ОСО при стабильных атмосферных условиях. Так, 22 июня и 25 августа 2009 г. максимальные вариации измеренных значений ОСО в течение этих дней составили 8–9 е.Д. На основе этого можно оценить случайные погрешности ИК-метода определения ОС, реализованного в СПбГУ в ~3 е.Д.

## 6. ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

Для интерпретации наземных измерений спектров прямого солнечного ИК излучения с помощью Фурье-спектрометра Брюкера высокого спектрального разрешения разработана и реализована ИК-методика определения общего содержания озона.

1. На основе анализа численных расчетов вариаций спектров солнечного излучения, обусловленных вариациями различных атмосферных параметров, выбраны шесть спектральных интервалов в длинноволновой области и центре полосы поглощения озона 9.6 мкм и в коротковолновом крыле полосы поглощения углекислого газа 15 мкм (всего около 700 спектральных отсчетов) оптимальных для определения ОСО, влияние в которых других атмосферных параметров на регистрируемое солнечное излучение сведено к минимуму.

2. Потенциальные погрешности ИК-метода определения ОСО для выбранной спектральной схемы при учете влияния погрешностей измерений и задания вертикальных профилей температуры и влажности, при различных отношениях сигнал/шум, зенитных углах Солнца, неопределенностей в задании "мешающих" атмосферных параметров, составляют менее 1%.

3. Разработана и реализована простая методика решения обратной задачи по определению ОСО, включающая масштабирование априорного (начального) профиля содержания озона и нахождение

двух коэффициентов линейной корректирующей функции, учитывающей неселективное ослабление солнечного излучения и неизвестную нормировку солнечных спектров. С помощью этой методики проведен анализ 269 спектров прямого солнечного ИК излучения высокого разрешения ( $0.005\text{--}0.008\text{ см}^{-1}$ ), измеренных в Петергофе в течение 52 дней в период с марта по ноябрь 2009 г.

4. Значения ОСО, полученные с помощью ИК-метода, сопоставлены с результатами независимых наземных измерений в Воейково (ГГО) с помощью спектрофотометра Добсона и озонметра М-124, а также с данными измерений с помощью спутникового прибора ОМІ. Показано, что средние отклонения между данными измерений ОСО с помощью трех наземных приборов очень малы и составляют не более 0.4%. Среднеквадратичные рассогласования между результатами измерений на спектрометре Брюкера, с одной стороны, и результатами измерений с помощью других приборов, с другой, составляют 3–4%.

5. Сопоставление результатов различных серий измерений показало, что оценка сверху погрешности измерений ОСО на спектрометре Брюкера составляет 2.5–3% (получено при игнорировании возможных пространственно-временных рассогласований измерений). Анализ дневных вариаций ОСО в условиях стабильной атмосферы дает оценку сверху случайной компоненты погрешности измерений ОСО на спектрометре Брюкера в ~3 е.Д. Сравнение полученных оценок с результатами более ранних сопоставлений указывает на высокое качество измерений спектров прямого солнечного ИК излучения и методики их интерпретации, применяемых в СПбГУ.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке грантов Минобрнауки России РНП.2.1.1.4166 и РНП.2.2.1.1.3836, гос. контракта № 16.740.11.0048 ФЦП "Научные и научно-педагогические кадры инновационной России на 2009–2013 годы", а также грантов РФФИ №№ 08-05-00857 и 08-05-00952.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Перов С.П., Хргиан А.Х. Современные проблемы атмосферного озона. Л.: Гидрометеиздат, 1989. 287 с.
2. Dobson G.M.V. Observers' handbook for the ozone spectrophotometer // Ann. IGY. 1957. Pt 1. P. 46–89.
3. Komthyr W.D. Operation handbook – Ozone observation with a Dobson Spectrophotometer // WMO. 1980. Rep. № 6. 125 p.
4. Гуцин Г.П., Виноградова Н.Н. Суммарный озон в атмосфере. Л.: Гидрометеиздат, 1983. 241 с.
5. Гуцин Г.П., Соколенко С.А. Новый малогабаритный озонметр М-124, предназначенный для измере-

- ния суммарного озона // Атмосферный озон. Труды VI Всесоюзного симпозиума. Л.: Гидрометеоздат, 1987. С. 49–56.
6. Brewer A.W. A replacement for the Dobson spectrophotometer // Pure Appl. Geophys. 1973. V. 106. № 1. P. 919–927.
  7. Evans W.F.J., Forester A.J., Henderson G.S. et al. Stratospheric ozone science in Canada: A.N. agenda for research and monitoring // Atmos. Environ. Rep. ARD-87-3. 1987. 127 p.
  8. Data Requirements for WMO, [http://192.91.247.60/sat2/aspscripts/UserBT.asp?AFF\\_SHORT\\_NAME=WMO](http://192.91.247.60/sat2/aspscripts/UserBT.asp?AFF_SHORT_NAME=WMO)
  9. Rinsland C.P., Connor B.J., Jones N.D. et al. Comparison of infrared and Dobson total ozone columns measured from Lauder, New Zealand // Geophys. Res. Lett. 1996. V. 23. № 9. P. 1025–1028.
  10. Murata I., Kondo Y., Nakajima H. et al. Accuracy of total ozone column amounts observed with solar infrared spectroscopy // Geophys. Res. Lett. 1997. V. 24. № 1. P. 77–80.
  11. Schneider M., Hase F. Recipe for continuous monitoring of total ozone with a precision of around 1DU applying mid-infrared solar absorption spectra // Atmos. Chem. Phys. Discuss. 2007. V. 7. P. 9093–9113, SRefID: 1680-7375/acpd/2007-7-9093.
  12. Pougetchev N.S., Connor B.J., Rinsland C.P. Infrared measurements of ozone vertical distribution above Kitt Peak // J. Geophys. Res. 1995. V. 100. № D8. P. 16689–16697.
  13. Pougetchev N.S., Connor B.J., Jones N.B. et al. Validation of ozone profile retrievals from infrared ground-based solar spectra // Geophys. Res. Lett. 1996. V. 23. № 13. P. 1637–1640.
  14. Виролайнен Я.А., Тимофеев Ю.М. Определение элементов вертикальной структуры содержания озона из наземных измерений солнечного излучения с высоким спектральным разрешением // Исслед. Земли из космоса. 2008. № 3. С. 3–10.
  15. Поберовский А.В. Наземные измерения ИК спектров солнечного излучения с высоким спектральным разрешением // Оптика атмосферы и океана. 2010. Т. 23. № 1. С. 56–58.
  16. Поберовский А.В., Поляков А.В., Тимофеев Ю.М. Измерения общего содержания О<sub>3</sub> в районе Санкт-Петербурга // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2010. Т. 46. № 2. С. 286–288.
  17. Поберовский А.В., Макарова М.В., Ракитин А.В., и др. Наземные измерения общих содержаний климатически активных газов Фурье-спектрометром высокого разрешения // ДАН. 2010. Т. 432. № 2. С. 257–259.
  18. Fontenla J., White O.R., Fox P.A. et al. Calculation of solar irradiances. I. Synthesis of the solar spectrum // Astrophys. J. 1999. V. 518. P. 480–500.
  19. Rothman L.S., Jacquemart D., Barbe A. et al. The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database // J. Quant. Spectr. Radiat. Transf. 2005. V. 96. № 2. P. 139–204.
  20. Anderson G.P., Clough S.A., Kneizys F.X. et al. AFGL atmospheric constituent profiles (0–120 km). AFGL-TR-86-0110 // Environ. Res. Pap. 1986. № 954. 43 p.
  21. Spänkuch D., Döhler W. Statistische Charakteristik der Vertikalprofile von Temperature und Ozon und ihre Kreuzkorrelation über Berlin // Geod. Geophys. Veröff. 1975. R. II. H. 19. 132 s.
  22. Meier A., Toon G.C., Rinsland C.P. et al. Spectroscopic Atlas of Atmospheric Microwindows in the middle Infra-Red. Kiruna, Sweden, Printed in Sweden IRF Institutet for Rymdfysik (Swedish Institute of Space Physics). 2004. 2nd revised edition. 607 p.
  23. Шаламянский А.М. Озонометрическая сеть СНГ // Метеорология и гидрология. 1993. № 9. С. 100–104.
  24. Levelt P.F., Hilsenrath E., Leppelmeier G.W. et al. Science objectives of the Ozone Monitoring Instrument // IEEE Trans. Geosci. Remote Sens. 2006. V. 44. № 5. IGRSD2. P. 1199–1208.
  25. McPeters D.F., Bhartia P.K., Krueger A.J. et al. Earth Probe Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) data products user's guide // NASA Technical Publication. Goddard Space Flight Center, Greenbelt, Maryland, USA. Report № 1998–206895. 60 p.
  26. Platt U. Differential optical absorption spectroscopy (DOAS), Air monitoring by Spectroscopic Techniques / Ed. M. Sigrist. New York: John Wiley & Sons, Inc., 1994. V. 127. P. 27–84.
  27. Bhartia P.K. OMI Ozone Products. V. 2. OMI Algorithm Theoretical Basis Document // NASA Technical Publication. Goddard Space Flight Center, Greenbelt, Maryland, USA. Report № ATBD-OMI-02. 2002. 91 p.
  28. Schneider M., Blumenstock T., Hase F. et al. Ozone profiles and total column amounts derived at Izaña, Tenerife Island, from FTIR solar absorption spectra, and its validation by an intercomparison to ECC-sonde and Brewer spectrometer measurements // J. Quant. Spectr. Radiat. Transf. 2005. V. 91. № 3. P. 245–274.
  29. Schneider M., Redondas A., Hase F. et al. Comparison of ground-based Brewer and FTIR total column O<sub>3</sub> monitoring techniques // Atmos. Chem. Phys. 2008. V. 8. № 18. P. 5535–5550.
  30. Shavrina A.V., Pavlenko Y.V., Veles A. et al. Ozone columns obtained by ground-based remote sensing in Kiev for Aura Ozone Measuring Instrument validation // J. Geophys. Res. 2007. V. 112. D24S45, doi: 10.1029/2007JD008787.
  31. Antón M., López M. et al. Validation of OMI-TOMS and OMI-DOAS total ozone column using five Brewer spectroradiometers at the Iberian peninsula // J. Geophys. Res. 2009. V. 114. D14307. doi: 10.1029/2009JD012003.
  32. Fioletov V.E., Labow G., Evans R. et al. Performance of the ground-based total ozone network assessed using satellite data // J. Geophys. Res. 2008. V. 113. D14313. doi: 10.1029/2008JD009809.
  33. Vigouroux C., De C.M., Maziere M. et al. Evaluation of tropospheric and stratospheric ozone trends over Western Europe from ground-based FTIR network observations // Atmos. Chem. Phys. 2008. V. 8. Issue 23. P. 6865–6886.

## Ground-Based Measurements of Total Ozone Content by the Infrared Method

Ya. A. Virolainen, Yu. M. Timofeev, D. V. Ionov, A. V. Poberovskii, and A. M. Shalamyanskii

*St. Petersburg State University, ul. Ul'yanovskaya 1, Petrodvorets, St. Petersburg, 198504 Russia*

*e-mail: tim@troll.phys.spbu.ru*

Received June 2, 2010; in final form, November 16, 2010

**Abstract**—To interpret the ground-based measurements of the spectra of direct solar infrared radiation with the help of a Brucker Fourier-spectrometer, a technique for determining the total ozone content (TOC) was developed and implemented. The TOC was determined using six spectral intervals of an ozone-absorption band of 9.6  $\mu\text{m}$  and the shortwave panel of a carbon-dioxide-absorption band of 15  $\mu\text{m}$ , where the impact of other atmospheric parameters on the measured solar radiation was reduced to a minimum. The potential errors of the infrared method for determining the TOC for the chosen spectral scheme with the influence of measurement errors and vertical profiles of temperature are less than 1% for different signal-to-noise ratios and zenith angles of the sun. We analyzed 269 high-resolution ( $0.005\text{--}0.008\text{ cm}^{-1}$ ) spectra of solar infrared radiation measured in Peterhof over 52 days from March to November, 2009. The resulting values of TOC were compared with the results of independent ground-based TOC measurements in Voeikovo (Main Geophysical Observatory) using a Dobson spectrophotometer and an M-124 ozonometer, as well as with the Ozone Monitoring Instrument (OMI) satellite data. The mean errors between the results of TOC measurements with the help of the three ground-based probes constitute no more than 0.4%. The rms errors between data obtained by the Brucker spectrometer and the given satellite and ground-based probes constitute 3–4%. A comparison between different series of measurements indicated that the upper estimate for the error of TOC measurements by the Brucker spectrometer was 2.5–3% (when the possible spatial and temporal errors in measurements are disregarded). An analysis of the diurnal variations in the TOC measurements for stable atmospheric conditions yields an upper estimate of  $\sim 3$  DU (around 1%) for the random component of error in TOC measurements by the Brucker spectrometer.

**Keywords:** ozonometry, spectroscopic measurements, remote sensing, atmosphere.