

УДК: 551.510.42

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ОЗОНА В РАЗЛИЧНЫХ СЛОЯХ АТМОСФЕРЫ С ПОМОЩЬЮ НАЗЕМНОЙ ФУРЬЕ-СПЕКТРОМЕТРИИ

© 2015 г. Я. А. Виролайнен*, Ю. М. Тимофеев*, А. В. Поберовский*,
М. Еременко**, Г. Дюфор**

*Санкт-Петербургский государственный университет,
198504 Санкт-Петербург, Петергоф, ул. Ульяновская, 1
E-mail: yana.virolainen@spbu.ru

**Межвузовская лаборатория атмосферных систем (Университет Париж-Дидро, Университет Париж-Восток-Кретей, Французский Национальный Центр Научных Исследований),
94010 Франция Кретей, авеню Генерала де Голля, 61

Поступила в редакцию 18.12.2013 г., после доработки 28.05.2014 г.

Впервые в России с помощью наземных измерений прямого солнечного инфракрасного излучения получена информация о содержании озона в различных слоях атмосферы. Измерения проводились Фурье-спектрометром Bruker IFS-125HR в Петергофе, расположенном в 30 км к западу от центра Санкт-Петербурга, в 2009–2012 гг. Погрешность определения тропосферного (0–12 км) озона рассматриваемым методом составила ~4%, стратосферного озона в тропосфере в слое 12–50 км – ~3%, в слоях 10–20 и 20–50 км – 3–5%, в слоях 12–18, 18–25 и 25–50 км – 4–7% (при учете приборных и методических ошибок, а также ошибок задания температурного профиля). Сезонный ход содержания озона в тропосфере и в слое 12–18 км отличается ярко выраженным максимумом в марте и минимумом в ноябре, с амплитудой в 30 и 40% соответственно. Для слоя 18–25 км максимум приходится на зимне-весенний период, минимум – на конец лета, амплитуда сезонного хода ~20%. Амплитуда изменений годового хода содержания озона в слое 25–50 км составляет около 30%, с максимумом вблизи летнего солнцестояния и минимумом вблизи зимнего. За три года наблюдений прирост содержания озона в этом слое составил ~10% в год от его среднего значения за период. Сравнения результатов наземных и спутниковых измерений (прибором IASI) тропосферного озона показали, что рассогласование обоих ансамблей составляет $(3.4 \pm 17)\%$. Коэффициент корреляции между двумя ансамблями в зависимости от сезона составляет 0.76–0.84. Сравнения данных наземных и спутниковых измерений (прибором MLS) стратосферного озона продемонстрировали отсутствие систематических рассогласований двух ансамблей. Среднеквадратичные рассогласования составляют 13, 6 и 5% для слоев 10–20, 20–50 и 10–50 км соответственно, коэффициенты корреляций между двумя типами измерений – 0.82–0.94.

Ключевые слова: озон, вертикальная структура, сезонный ход, Фурье-спектрометрия.

DOI: 10.7868/S0002351515020121

1. ВВЕДЕНИЕ

Озон является основным поглотителем ультрафиолетового (УФ) солнечного излучения, определяя в значительной степени УФ-освещенность земной поверхности, важным парниковым газом, а также газом, влияющим на фотохимию тропосферы. При определенных концентрациях озон является серьезным загрязнителем в тропосфере и существенно влияет на экологическую обстановку и здоровье людей. Долговременные вариации содержания озона, обусловленные антропогенными факторами, стимулировали в последние десятилетия проведение постоянного мониторинга его содержания с помощью различных наземных и спутниковых методов измерений.

Среди этих методов в последние годы активно используется наземный метод, основанный на интерпретации измерений спектров прямого солнечного инфракрасного (ИК) излучения с высоким спектральным разрешением. Физической основой измерений вертикальной структуры озона являются существенные отличия в высотном поведении коэффициентов поглощения в центрах и крыльях лоренцевских (или фойгтовских) спектральных линиях озона [1, 2]. Если в центрах линий с ростом высоты (падением давления) коэффициенты поглощения растут, то в крыльях наблюдается противоположный эффект. Эта особенность позволяет получать определенную информацию о содержании озона на разных высотах в атмосфере.

Первые исследования этого метода были осуществлены в работах [1, 2]. Позднее, различные методические аспекты наземного ИК-метода были подробно проанализированы в многочисленных работах [3–10]. В этих работах были исследованы аппаратные аспекты дистанционного метода измерений, его информативность при различных используемых спектральных “окнах”, изучено число определяемых независимых параметров вертикальной структуры, усредняющие особенности дистанционного метода, погрешности определения содержания озона при различном вертикальном разрешении, приведены примеры сопоставлений с независимыми, в том числе спутниковыми и озонзондовыми, измерениями, изучены долговременные тренды его содержания в различных слоях атмосферы, проведены сопоставления с результатами численного моделирования и т.д. В настоящее время, рассматриваемый метод регулярно используется на ряде станций международной сети NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change).

В представленной работе приведены первые в России результаты измерений содержания озона в различных слоях атмосферы (до 4 слоев) с помощью спектроскопических измерений прямого солнечного ИК-излучения высокого спектрального разрешения Фурье-спектрометром (ФС) Bruker IFS-125HR высокого спектрального разрешения ($\sim 0.005 \text{ см}^{-1}$) вблизи Санкт-Петербурга в 2009–2012 гг. Соответствующий наземный спектральный комплекс описан в работе [11]. Примеры определения общего содержания различных газов с помощью этого комплекса приведены, например, в работах [12–14]. В предлагаемой работе проанализировано влияние различных источников ошибок на погрешность определения содержания озона, изучены сезонные вариации содержания озона в различных слоях атмосферы, проведено сопоставление результатов наземных и спутниковых (приборами IASI (15) и MLS (16)) измерений содержания озона в различных слоях атмосферы.

2. НАЗЕМНЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ОЗОНА

ФС Bruker IFS-125HR, функционирующий на измерительной станции в Петергофе (59.88° N , 29.82° E), осуществляет регулярные наземные измерения спектров прямого солнечного ИК-излучения с апреля 2009 г. Для интерпретации ИК-измерений в настоящей работе использовался программный комплекс PROFFIT [17], разработанный в Технологическом институте университета Карлсруэ (Германия) и использующийся на ряде станций международной измерительной сети NDACC. Для расчетов вертикальных профилей озона для каждого дня спектрометрических измерений задавались профили давления и температуры NCEP (National Center for Environmental Prediction), ос-

нованные на спутниковых и радиозондовых измерениях [18]. Априорная информация о профилях содержания озона и других газов (начальные приближения), влияющих на перенос излучения в рассматриваемых спектральных интервалах (использовались 5 “микроокон” в интервале $991\text{--}1014 \text{ см}^{-1}$, см. подробнее [19]), задавалась по данным численной модели WACCM (The Whole Atmosphere Community Climate Model) [20]. Для решения обратной задачи использовался алгоритм, основанный на методе регуляризации Тихонова–Филлипса [21, 22]. Влагосодержание в атмосфере уточнялось предварительно из тех же спектральных данных в полосе поглощения водяного пара, что позволило уменьшить погрешность за счет неопределенности задания профилей водяного пара. Кроме того, выбранные для определения содержания озона микроокна наиболее чувствительны именно к изменениям содержания озона в атмосфере, т.е. вклад водяного пара в излучение в этих микроокнах минимизирован.

При интерпретации спектрометрических измерений первоначально восстанавливался вертикальный профиль содержания озона, который потом интегрировался для получения содержания газа в различных слоях атмосферы. В течение дня число измерений составляло от 1 до 18 спектров (типичные значения 5–6 спектров). Для получения отдельного спектра накапливались интерферограммы (до 10 штук) за период в 12 минут, которые затем осреднялись и преобразовывались в спектр [11]. В данной работе анализируются результаты измерения среднедневных значений содержания озона в слоях атмосферы, т.е. полученные индивидуальные измерения из каждого отдельного спектра осреднялись за день. Измерения солнечного излучения выполнялись с разностью хода 180 см^{-1} , для обращения использовались спектры, полученные с функцией аподизации Norton-Beer medium, спектральное разрешение при этом ухудшалось до 0.008 см^{-1} . За все время измерений для определения содержания озона в атмосфере были отобраны 1190 спектров за 189 дней измерения.

Подробный анализ результатов по определению общего содержания озона (ОСО) из спектрометрических измерений ФС Bruker в Санкт-Петербурге представлен в работах [19, 24]. В работе [24] проведено сопоставление данных по ОСО, полученных для того же, что и в этой работе, ансамбля измерений, с результатами независимых измерений фильтровым озонметром M-124 и спектрофотометром Добсона (станция ГГО в п. Воейково), а также спектрометром OMI (Ozone Monitoring Instrument).

Переходя к анализу возможностей определения вертикальной структуры содержания озона, отметим, что наземные измерения спектров солнечного излучения ФС Bruker позволяют определять до четырех независимых параметров для ос-

Таблица 1. Вклад различных источников ошибок в погрешность измерения содержания озона в двух слоях атмосферы (0–12 км и 12–50 км)

Источник ошибки	Величина ошибки	Тропосфера		Стратосфера	
		$\sigma_{\text{случ}}$	$\sigma_{\text{сист}}$	$\sigma_{\text{случ}}$	$\sigma_{\text{сист}}$
Сдвиг нулевой линии спектра	0.5%	0.6%	0.6%	0.2%	0.2%
Температурный профиль	1 К (<11 км)	0.2%	0.1%	2.2%	1.0%
	2 К (11–35 км)				
	5 К (>35 км)				
Интенсивность линий	2%	–	3.8%	–	1.9%
Полуширина линий	5%				
Шум измерений	Из невязки	0.7%	–	0.1%	–
Суммарная погрешность		4.0%		3.0%	

Примечание. ($\sigma_{\text{сист}}$ и $\sigma_{\text{случ}}$ – величины систематической и случайной погрешности).

нового изотопа озона (число степеней свободы составляет от 3.5 до 4.5, в зависимости от дня и условий измерений) (см., например, [3, 5, 8]). Таким образом, за весь период измерений (2009–2012 гг.) нами было сосчитано содержание озона в двух, трех и четырех слоях атмосферы, а также проведены оценки точности определения озона, в зависимости от количества рассматриваемых слоев. При расчете погрешностей определения содержания озона нами были учтены следующие источники ошибок:

- приборные (случайный шум измерений, погрешности задания аппаратной функции, положения нулевого уровня сигнала, точности наведения следящей системы);

- методические (качество спектроскопической информации различных газов, точность задания амплитуды и спектральной привязки солнечных линий);

- неопределенность задания условий измерений (вертикальных профилей температуры).

В табл. 1 на примере двух слоев – тропосферы и стратосферы перечислены основные из учитываемых ошибок, влияющих на погрешность определения содержания озона. Вклад других источников ошибок в суммарную погрешность измерения содержания озона в рассматриваемых слоях составляет менее 0.1%. При расчете погрешностей определения содержания озона принимались во внимание различные веса для вкладов систематической и случайной компоненты. Так, для ошибок, связанных со сдвигом нулевой линии – этот вклад составляет по 50%, для погрешностей задания температурного профиля – 30% для систематической и 70% для случайной компоненты. Суммарная погрешность измерения содержания тропосферного озона составляет около 4% и определяется в основном систематической погрешностью, связанной с ошибками задания спектроскопической информации (интенсивностями и полу-

ширинами линий). Стратосферный озон может измеряться с точностью около 3%, при этом в суммарную погрешность его определения примерно равный вклад вносит случайная компонента погрешности за счет неопределенности задания температурного профиля и систематическая компонента за счет погрешностей спектроскопической информации. Случайную погрешность можно уменьшить, используя независимые измерения температурного профиля (или одновременно определяя температуру из спектрометрических измерений [25]), систематические погрешности уменьшаются при уточнении параметров спектроскопических данных.

Отметим, что при расчете суммарной погрешности не принимались во внимание погрешности сглаживания профилей за счет ограниченного вертикального разрешения метода, которые по разным оценкам составляют от 4 до 9% для аналогичных спектральных приборов [3–6, 9, 10]. Погрешности сглаживания относятся к систематическим погрешностям для каждого конкретного места измерения и могут быть учтены при сопоставлении данных различных приборов. Для оценки же качества измерений конкретного прибора используются в основном случайные погрешности измерений. В стабильных атмосферных условиях случайная погрешность измерения TO в Петергофе ФС Bruker составляет 1.0–1.3%, что совпадает с данными других работ [3–5, 9, 10].

В табл. 2 приведены погрешности определения озона при разбиении стратосферы на два и три слоя, содержание озона в которых будет анализироваться в дальнейшем. Здесь, как и ранее, не учитывалась погрешность сглаживания. Из табл. 2 видно, что до высот около 20 км суммарная погрешность определяется в основном систематической составляющей, выше – вклад систематической и случайной компоненты в суммарную погрешность примерно равнозначен. В целом можно сказать, что в двух слоях стратосферы по-

Таблица 2. Погрешности измерения содержания озона в различных слоях стратосферы

Слой	Случайная	Систематическая	Суммарная
12–18 км	0.9%	3.4%	3.5%
18–25 км	2.5%	2.4%	3.5%
25–50 км	4.2%	5.7%	7.1%
10–20 км	0.5%	3.1%	3.1%
20–50 км	3.4%	3.8%	5.1%

грешность определения содержания озона составляет 3–5%, в трех слоях стратосферы – 4–7%. Приведенные оценки погрешности определения стратосферного озона в нескольких слоях также хорошо согласуются с численными оценками, полученными другими исследователями для ФС Bruker (см., например, [4–6]).

3. ИЗМЕРЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ОЗОНА В ТРОПОСФЕРЕ

Полученные в ходе интерпретации измерений солнечного ИК-излучения Фурье-спектрометром Bruker данные по содержанию озона в тропосфере (0–12 км) сопоставлялись с данными спутниковых измерений прибором IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) [15]. Прибор IASI, находящийся на борту полярного спутника MetOP, был разработан для измерения собственного излучения системы Земля–атмосфера в тепловом ИК-диапазоне спектра, используя надирную геометрию измерений. Спутник синхронизирован по Солнцу, таким образом, в каждой точке измерения проводятся около 9:30 и 21:30 по местному времени. Для интерпретации измеренных спектров использовался алгоритм LISA [26], основанный на том же радиационном коде и алгоритмах решения обратных задач, что и PROFIT, используемый для интерпретации наземных измерений. Для сопоставления с наземными измерениями брались все измеренные профили в радиусе 2° от Петергофа, которые затем осреднялись и интегрировались по высоте. Число осред-

няемых профилей в зависимости от дня варьировалось от 10 до 70.

Сопоставления двух ансамблей проводились на основе расчетов коэффициента корреляции r и следующих характеристик рассогласования ансамблей:

$$\text{– среднее рассогласование: } M = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - y_i)$$

$$\text{– стандартное отклонение от среднего: } \sigma = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (x_i - y_i - M)^2}.$$

В табл. 3 приведена статистическая информация по результатам сопоставления двух ансамблей – средние, изменчивость, характеристики согласованности ансамблей. Кроме общих оценок за весь период наблюдений, также приведены данные отдельно для зимнего (октябрь–март) и летнего (апрель–сентябрь) полугодий. В холодное время года при низких температурах поверхности погрешности спутниковых измерений ТО возрастают [26], для наземных измерений из-за низкого солнца также погрешности выше в зимний период.

Из табл. 3, во-первых, видно, что изменчивость спутниковых измерений выше изменчивости наземных данных; во-вторых, что в зимнее полугодие, при более высоких значениях содержания тропосферного озона, спутниковые измерения превышают наземные, а в летнее полугодие, при более низких значениях, наоборот, наземные измерения превышают спутниковые. В работе [27], где сопоставлялись данные IASI с данными наземных измерений ИК ФС OASIS (Observations of Atmosphere by Solar Infrared Spectroscopy) в Париже в теплое время года, также отмечено превышение наземных данных по тропосферному озону над спутниковыми. Корреляции между ансамблями выше в теплое время года, что вызвано как меньшей изменчивостью измерений, так и более высокой точностью обоих методов. За весь период измерений ансамбли согласованы в пределах (3.4 ± 17)%, при этом погрешность определения ТО прибором IASI составляет ~11–15% [26, 27], ФС Bruker ~4–5%. Учитывая

Таблица 3. Сопоставление данных по тропосферному озону Bruker–IASI за период 2009–2012 гг.

Период (число дней)	Прибор	Среднее (СКО), е. Д.	$M \pm \sigma$, е. Д.	r
Зимнее полугодие (41)	Bruker	50.0 (9.3)	–6.7 ± 9.6	0.78 ± 0.06
	IASI	56.7 (15)		
Летнее полугодие (116)	Bruker	46.1 (7.3)	4.5 ± 4.2	0.84 ± 0.03
	IASI	41.6 (7.6)		
Весь год (157)	Bruker	47.1 (8.0)	1.6 ± 7.8	0.76 ± 0.03
	IASI	45.6 (12)		

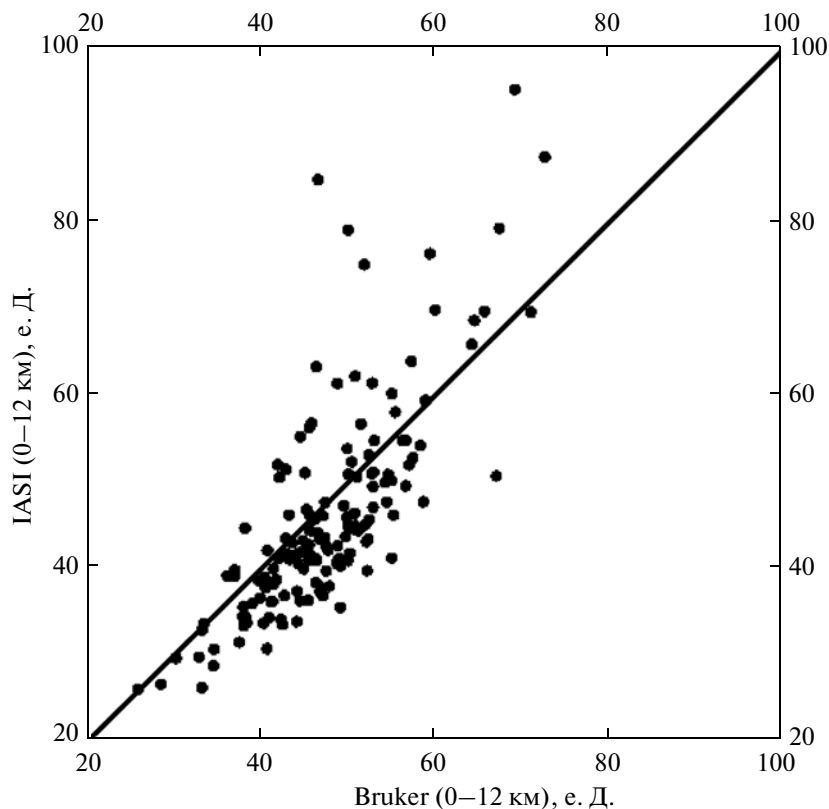


Рис. 1. Результаты измерений тропосферного озона (0–12 км) наземным Фурье-спектрометром Bruker и спутниковым прибором IASI в районе Санкт-Петербурга в 2009–2012 гг.

дневные вариации тропосферного озона (мы рассматривали осредненные за день измерения), а также пространственное рассогласование, проведенное сопоставление продемонстрировало хорошее согласие двух ансамблей измерений.

На рис. 1 показаны данные измерений тропосферного озона двумя приборами для всего рассматриваемого периода (157 реализаций). Хорошо видна отмеченная выше тенденция – при средних и низких значениях содержания тропосферного озона наземные измерения превышают спутниковые, при высоких значениях – спутниковые выше наземных. Отметим, однако, что наибольшее различие между двумя ансамблями наблюдается в январе–феврале, что может быть вызвано как ростом погрешностей в зимнее время, так и различиями в сравниваемых воздушных массах.

4. ИЗМЕРЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ОЗОНА В СТРАТОСФЕРЕ

Стратосферный озон измеряется целым рядом спутниковых приборов. Для сопоставления с наземными измерениями нами были использованы измерения спутникового прибора MLS (Microwave Limb Sounder) [16]. Прибор MLS определяет

вертикальные профили содержания озона на основе интерпретации измерений МКВ собственного излучения горизонта Земли и выполняет десятки измерений в течение суток вблизи Санкт-Петербурга. В частности, анализ данных прибора MLS показал, что за рассматриваемый период в круге радиусом 500 км вокруг Петергофа было выполнено более 7000 измерений. В каждый из совпадающих дней измерения вертикальных профилей озона, попадающие в этот круг, осреднялись для получения одного дневного профиля, который затем интегрировался в рассматриваемом слое атмосферы. Сопоставления двух ансамблей проводились с использованием тех же характеристик, что и для тропосферного озона (см. формулы из раздела 3).

В табл. 4 представлены статистические характеристики двух ансамблей измерений в течение 2009–2012 гг. для слоев 10–50, 10–20 и 20–50 км. Анализируя данные таблицы, можно видеть, что по всем рассматриваемым слоям практически не наблюдается систематического рассогласования между результатами наземных и спутниковых измерений. Для слоя 10–50 км изменчивость ансамблей одинакова, в то же время при разбиении на два слоя изменчивость результатов наземных измерений несколько выше.

Таблица 4. Статистические характеристики серий измерений содержания озона в стратосфере приборами ФС Bruker и MLS

Слой	Прибор	Среднее	Изменчивость	$M \pm \sigma$	r
10–50 км	Bruker	310 е. Д.	14%	$0.1 \pm 5\%$	0.94 ± 0.01
	MLS	310 е. Д.	14%		
10–20 км	Bruker	122 е. Д.	30%	$-0.3 \pm 13\%$	0.90 ± 0.01
	MLS	122 е. Д.	27%		
20–50 км	Bruker	188 е. Д.	11%	$0.3 \pm 6\%$	0.82 ± 0.02
	MLS	187 е. Д.	9%		

В целом стандартное отклонение от среднего рассогласования для всей стратосферы не превышает 5%, для слоя 20–50 км, включающего максимум озонного содержания, – 6%, для нижней стратосферы (10–20 км) – 13%. Учитывая изменчивость содержания озона в нижней стратосфере за счет изменения высоты тропопаузы (порядка 30%) и высокие корреляции между сериями измерений ($r = 0.90$), можно утверждать, что оба ансамбля хорошо согласуются и в этой высотной области.

5. ВРЕМЕННАЯ ИЗМЕНЧИВОСТЬ СОДЕРЖАНИЯ ОЗОНА В СЛОЯХ АТМОСФЕРЫ

Проанализируем временной ход ОСО, а также содержания озона в четырех слоях атмосферы (0–12, 12–18, 18–25, 25–50 км). Эти слои были отобраны по собственным оценкам вертикального разрешения метода [7] из погрешностей, полученных в этой работе, а также из данных, представленных другими исследователями [3, 5, 6]. На рис. 2 показан годовой ход среднемесячных значений содержания озона в четырех рассматриваемых слоях атмосферы. Из рисунка хорошо видно, что сезонный ход для слоев нижней атмосферы (0–12 и 12–18 км) отличается ярко выраженным максимумом в марте и минимумом в ноябре, с амплитудой в 30 и 40% соответственно. Отметим, что такой же ход характерен для ОСО. Этот сезонный ход обусловлен в основном динамикой атмосферы, синоптическими и мезомасштабными процессами, а также вертикальным обменом – стратосфера–тропосфера. Для слоя 18–25 км, на который приходится наибольшее количество озона в атмосфере, отличается более плавным сезонным ходом с амплитудой около 20%. Минимум содержания озона в этом слое приходится на конец лета, когда ослабляется циркуляция Брюера–Добсона и уменьшается приток воздушных масс, богатых озоном, из тропиков. Максимум содержания озона в этом слое приходится на зимне-весенний период. На сезонный ход содержания озона на больших высотах (25–50 км) большее влияние оказывают фотохимические процессы

образования озона, поэтому здесь мы наблюдаем обратную картину: максимальные значения вокруг летнего солнцестояния и минимальные – вокруг зимнего. Амплитуда изменений годового хода содержания озона в этом слое составляет около 30%.

Перейдем от анализа среднегодового хода содержания озона в слоях атмосферы к анализу изменений озона за все время наблюдений, начиная с 2009 г. В работах [6, 28] проанализированы тренды содержания озона в четырех слоях атмосферы на нескольких станциях NDACC, расположенных в Северном полушарии. Тренды оценивались за период в 10–15 лет. Наиболее важным из полученных результатов стала оценка положительных трендов содержания озона в верхней стратосфере для целого ряда высоко- и среднеширотных станций. Это объясняется как уменьшением влияния активного хлора на разрушение озона после подписания Монреальского протокола об ограничении выбросов галогенированных углеводородов в атмосферу, так и изменениями в переносе воздушных масс, вызванными, например, циркуляцией Брюера–Добсона, изменениями температурного режима в полярных областях и т.д.

Поскольку данные измерений ФС Bruker в Петергофе позволяют определять содержание озона в четырех слоях, мы попытались оценить возможные изменения в этих слоях в 2009–2012 гг. Отметим, что речь не идет о трендах из-за малости временной выборки, а только об оценке возможных линейных изменений. Для исключения сезонного хода содержания озона из среднедневных значений вычитались среднемесячные значения за весь период измерений. Таким образом, полученная разность позволяет судить о годовых изменениях содержания озона, вне зависимости от его сезонного цикла. Для анализа полученных результатов к рассчитанным разностям содержания озона было применено приближение линейной регрессии. Оценка адекватности регрессионной модели была выполнена с помощью коэффициента детерминации R^2 , указывающего на то, какая часть изменчивости параметра обусловлена именно уравнением линейной регрессии. Значи-

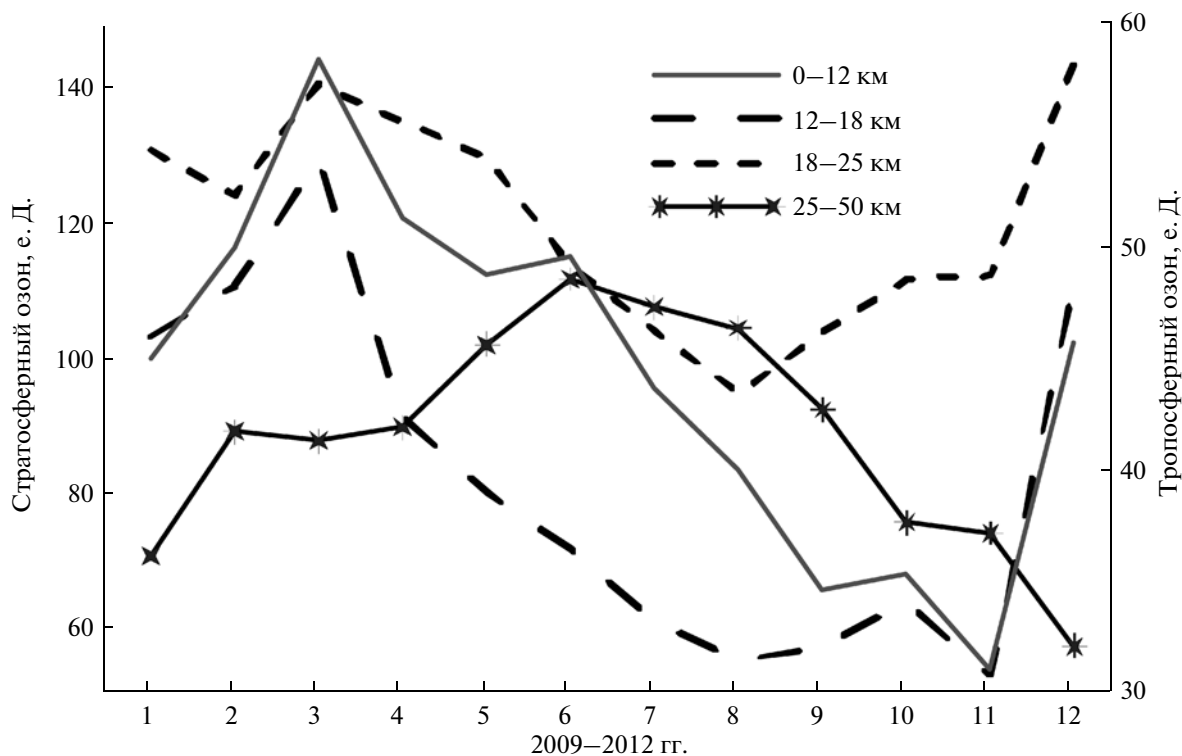


Рис. 2. Годовой ход среднемесячных значений содержания озона в различных слоях атмосферы в 2009–2012 гг. в Петергофе.

мость коэффициентов регрессии оценивалась на основе анализа t -критерия Стьюдента с 95%-ным доверительным интервалом. Таким образом, было получено, что для ОСО и тропосферного озона не наблюдается каких-либо линейных изменений за рассмотренные три года. Изменения в остальных слоях представлены на рис. 3. В нижней (12–18 км) и средней (18–25 км) стратосфере наблюдается уменьшение содержания озона за период 2009–2012 гг. Однако коэффициент детерминации при этом невысок ($R^2 = 0.22$ и 0.16 , соответственно), т.е. эти линейные изменения не являются значимыми. В верхней стратосфере (слой 25–50 км) наблюдается значительный рост содержания озона на 33 ± 9 е. Д. за 3 года, что составляет около 10% в год от его среднего содержания за период (88.5 ± 16.5 е. Д.). При этом коэффициент детерминации $R^2 = 0.56$, т.е. большая часть изменений содержания озона за этот период вызвана именно его линейным ростом в слое. Для станций NDACC Kiruna (68° N) и Harestua (60° N), расположенных в том же поясе широт и в похожих климатических условиях, наблюдается рост содержания озона в слое 1.5 и 3% в год, соответственно [6]. На основании трехлетней серии мы не можем делать определенные общие выводы относительно трендов содержания озона в районе Санкт-Петербурга, тем более что мы не учитывали множество факторов, влияющих глобально на его изменчивость. Мы можем только утверждать, что

полученный линейный рост содержания озона в верхней стратосфере в районе Санкт-Петербурга за 2009–2012 гг. является значимым, и ФС Bruker в перспективе может быть использован для мониторинга изменений вертикальной структуры содержания озона.

6. ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

Впервые в России с помощью наземных спектроскопических измерений прямого солнечного ИК-излучения получена информация о содержании озона в различных слоях атмосферы вблизи Санкт-Петербурга в 2009–2012 гг. Проведенные численные оценки погрешности определения содержания озона в различных слоях атмосферы, обусловленные приборными, методическими факторами, а также погрешностями задания температурного профиля, показали, что озон в тропосфере можно определять с погрешностью $\sim 4\%$, в стратосфере – с погрешностями 4–7%, в зависимости от толщины рассматриваемого слоя.

Полученные с помощью наземного ФС Bruker данные по содержанию озона в разных слоях атмосферы были сопоставлены с независимыми спутниковыми данными. Сопоставления результатов наземных и спутниковых (прибор IASI) измерений тропосферного озона показали, что ансамбли согласуются в пределах ($3.4 \pm 17\%$) для слоя 0–12 км. При этом в зимнее время данные

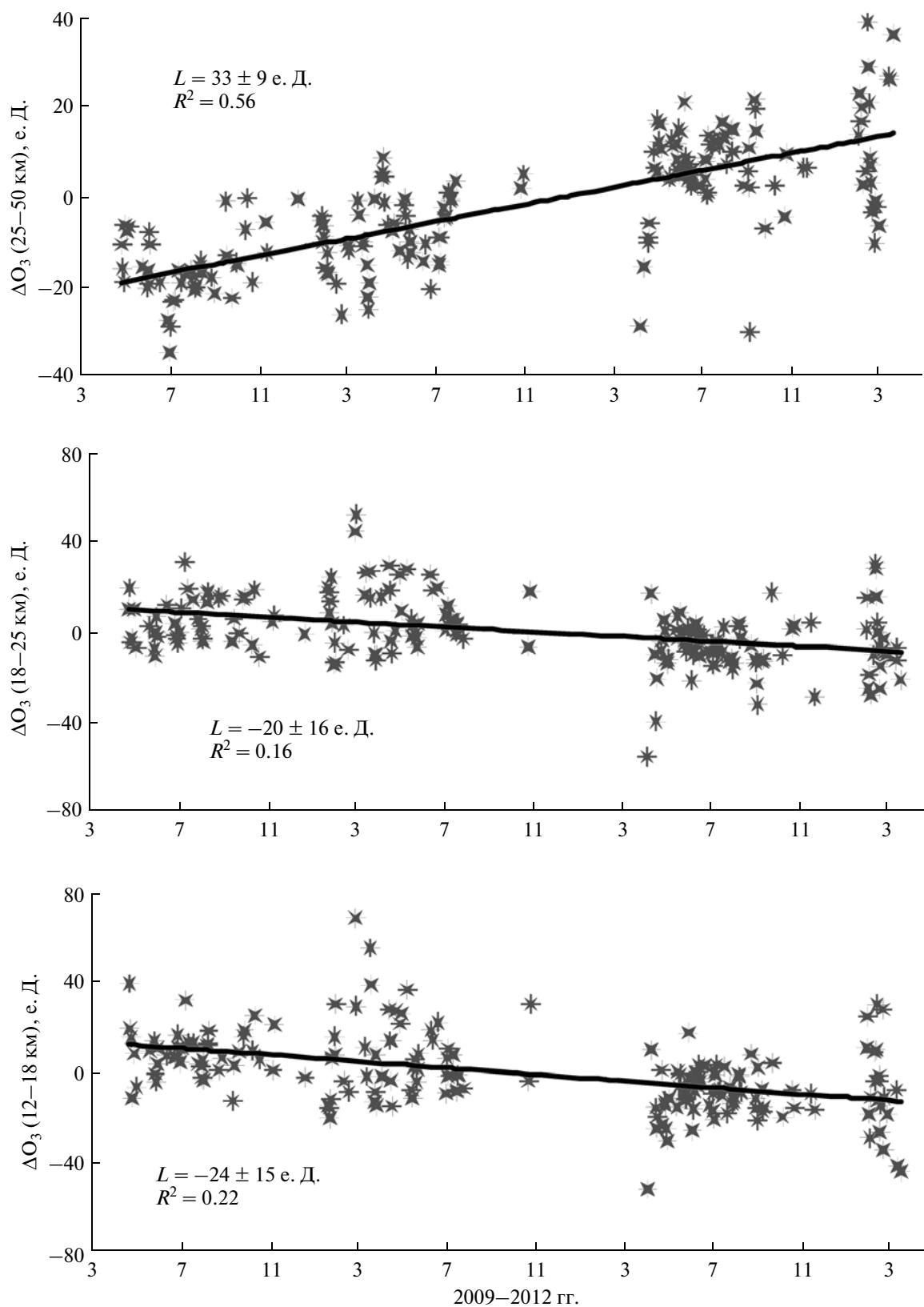


Рис. 3. Вариации содержания озона (среднедневные значения минус среднемесячные) в слоях атмосферы за период 2009–2012 гг. в Петергофе. L – изменение в содержании за 3 года, R^2 – коэффициент детерминации.

спутниковых измерений превышают наземные, в летнее время — наоборот, наземные данные выше спутниковых.

Коэффициенты корреляции между двумя ансамблями, в зависимости от сезона, составляют 0.76–0.84. Сравнения содержания стратосферного озона, полученного с помощью ФС Bruker, с данными прибора MLS в слоях 10–20, 20–50 и 10–50 км показали, что между ансамблями отсутствуют систематические рассогласования. Среднеквадратичные рассогласования составляют 5–13%, коэффициенты корреляции между двумя типами измерений — 0.82–0.94, в зависимости от рассматриваемого слоя. На основании приведенных данных можно утверждать, что наблюдается хорошее согласие рассмотренных ансамблей независимых измерений тропосферного и стратосферного озона.

Анализ временных вариаций ОСО и содержания озона в 4 слоях атмосферы (0–12, 12–18, 18–25, 25–50 км) позволяет сделать следующие выводы.

– Сезонный ход для слоев нижней атмосферы (слои 0–12 и 12–18 км) отличается ярко выраженным максимумом в марте и минимумом в ноябре, с амплитудами в 30 и 40% соответственно.

– Для слоя 18–25 км, на который приходится наибольшее количество озона в атмосфере, наблюдается более плавный сезонный ход с амплитудой около 20%. Минимум содержания озона в этом слое приходится на конец лета, когда ослабляется циркуляция Брюера–Добсона и уменьшается приток воздушных масс, богатых озоном, из тропиков. Максимум содержания озона в этом слое приходится на зимне-весенний период.

– На сезонный ход содержания озона на больших высотах (25–50 км) значительное влияние оказывают фотохимические процессы образования озона, поэтому максимальные значения озона наблюдаются вблизи летнего солнцестояния, минимальные — вблизи зимнего. Амплитуда изменений годового хода содержания озона в этом слое составляет около 30%.

Анализ данных позволил обнаружить в верхней стратосфере (слой 25–50 км) значительный рост содержания озона — 33 ± 9 е. Д. за 3 года. При этом коэффициент детерминации составил $R^2 = 0.56$, т.е. можно предположить, что большая часть изменений содержания озона за этот период вызвана именно его линейным ростом в слое.

Экспериментальные исследования проведены на аппаратуре “Геомодель” СПбГУ при финансовой поддержке гранта РФФИ (проект № 12-05-00596) и проектов СПбГУ 11.0.44.2010 и 11.37.28.2011. Обработка и анализ данных выполнены за счет финансирования по гранту Российского научного фонда №14-17-00096.

Работа выполнена в Санкт-Петербургском государственном университете.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Pougatchev N.S., Connor B.J., Rinsland C.P.* Infrared measurements of the ozone vertical distribution above Kitt Peak. // *J. Geophys. Res.* 1995. V. 100. № D8. P. 16689–16697, doi: 10.1039/951D01296.
2. *Pougatchev 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.
3. *Barret B., De Mazière M., Demoulin P.* Retrieval and characterization of ozone profiles from solar infrared spectra at the Jungfraujoch. // *J. Geophys. Res.* 2002. V. 107. № D24. P. 4788. doi: 10.1029/2001JD001298.
4. *Kagawa A., Kasai Y., Jones N.B. et al.* Characteristics and error estimation of stratospheric ozone and ozone-related species over Poker Flat (65° N, 147° W), Alaska observed by ground-based FTIR from 2001 to 2003 // *Atmos. Chem. Phys.* 2007. № 7. P. 3791–3810.
5. *Schneider M., Hase F., Blumenstock T. et al.* Quality assessment of O₃ profiles measured by a state-of-the-art ground-based FTIR observing system // *Atmos. Chem. Phys.* 2008. № 8. P. 5579–5588.
6. *Vigouroux C., De Mazière M., Demoulin P. et al.* Evaluation of tropospheric and stratospheric ozone trends over Western Europe from ground-based FTIR network observations // *Atmos. Chem. Phys.* 2008. № 8. P. 6865–6886.
7. *Виралайнен 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. 1–8.
8. *Lindenmaier R., Batchelor R.L., Strong K. et al.* An evaluation of infrared microwindows for ozone retrievals using the Eureka Bruker 125HR Fourier transform spectrometer // *J. Q. S. R. T.* 2010. V. 111. № 4. P. 569–585.
9. *Senten C., De Mazière M., Vanhaelewyn G., Vigouroux C.* Information operator approach applied to the retrieval of the vertical distribution of atmospheric constituents from ground-based high-resolution FTIR measurements // *Atmos. Meas. Tech.* 2012. № 5. P. 161–180.
10. *Garcia O.E., Schneide M., Redondas A. et al.* Investigating the long-term evolution of subtropical ozone profiles applying ground-based FTIR spectrometry // *Atmos. Meas. Tech.* 2012. № 5. P. 2917–2931.
11. *Поберовский А.В.* Наземные измерения ИК-спектров солнечного излучения с высоким спектральным разрешением // *Оптика атмосферы и океана.* 2010. Т. 23. № 1. С. 56–58.
12. *Поберовский А.В., Макарова М.В., Ракитин А.В. и др.* Изменчивость общих содержаний климатически активных газов по наземным спектроскопическим измерениям с высоким разрешением // *ДАН,* 2010. Т. 432. № 2. С. 257–259.
13. *Timofeyev Yu., Ionov D., Makarova M. et al.* Measurements of Trace Gases at Saint-Petersburg State University (SPbSU) in the Vicinity of Saint-Petersburg, Russia // *Disposal of Dangerous Chemicals in Urban Areas and Mega Cities, NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security 2013, XV, Barnes, Ian; (Eds.) Rudzinski, Krzysztof J. Dordrecht: Springer, 2013. P. 173–184.*
14. *Timofeyev Y., Poberovsky A., Makarova M. et al.* Ground-based measurements of atmospheric trace gases near Saint-Petersburg, Russia // *AIP Conference Proceedings 2013. V. 1531. P. 528–531.*
15. *Clerbaux C., Boynard A., Clarisse L. et al.* Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared

- IASI/MetOp sounder // *Atmos. Chem. Phys.* 2009. № 9. P. 6041–6054.
16. Waters J.W., Froidevaux L., Harwood R.S. et al. The Earth Observing System Microwave Limb Sounder (EOS MLS) on the Aura satellite // *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* 2006. V. 44. № 5. P. 1075–1092.
 17. Hase F., Hannigan J.W., Coffey M.T. et al. Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution ground-based FTIR measurements // *J. Q. S. R. T.* 2004. V. 87. № 1. P. 25–52.
 18. Lait L., Newman P., Schoeberl R. Using the Goddard Automailer // 2005. URL <http://code916.gsfc.nasa.gov/DataServices>.
 19. Virolainen, Ya.A., Timofeyev Yu.M., Poberovsky A.V. Intercomparison of satellite and ground-based ozone total column measurements // *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics.* 2013. V. 49. № 9. P. 993–1001.
 20. Park M., Randel W.J., Kinnison D.E. et al. Hydrocarbons in the upper troposphere and lower stratosphere observed from ACE-FTS and comparisons with WACCM // *J. Geophys. Res.*: 2013. V. 118. № D4. P. 1964–1980, doi: 10.1029/2012JD018327.
 21. Phillips D.A. A technique for the numerical solution of certain integral equations of the first kind // *J. ACM.* 1962. V. 9. № 1. P. 84–97.
 22. Тихонов А.Н. О решении некорректно поставленных задач и методе регуляризации // *ДАН.* 1963. Т. 151. № 3. С. 501–504.
 23. Norton H., Beer R. New apodizing functions for Fourier spectrometry // *J. Opt.*
 24. Виролайнен Я.А., Тимофеев Ю.М., Ионов Д.В. и др. Наземные измерения общего содержания озона ИК-методом // *Изв. РАН. Физика атмосферы и океана.* 2011. Т. 47. № 4. С. 521–532.
 25. Schneider M., Hase F. Technical Note: Recipe for monitoring of total ozone with a precision of around 1DU applying mid-infrared solar absorption spectra // *Atmos. Chem. Phys.* 2008. № 8. P. 63–71.
 26. Dufour G., Eremenko M., Griesfeller A. et al. Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra using ozonesondes // *Atmos. Meas. Tech.* 2012. № 5. P. 611–630.
 27. Viatte C., Gaubert B., Eremenko M. et al. Tropospheric and total ozone columns over Paris (France) measured using medium-resolution ground-based solar-absorption Fourier-transform infrared spectroscopy // *Atmos. Meas. Tech.* 2011. № 4. P. 2323–2331.
 28. Vigouroux C., De Mazière M., Demoulin Ph. et al. Ozone tropospheric and stratospheric trends (1995–2012) at six ground-based FTIR stations (28N to 79N) // *Geophys. Res. Abstr.* 2013. V. 15. EGU2013-12119.

Evaluation of Ozone Content in Different Atmospheric Layers using Ground-Based Fourier Transform Spectrometry

Ya. A. Virolainen^a, Yu. M. Timofeev^a, A. V. Poberovskii^a, M. Eremenko^b, and G. Dufour^b

^a St. Petersburg State University, Ul'yanovskaya ul. 1, St. Petersburg, 198504 Russia

e-mail: yana.virolainen@spbu.ru

^b Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques

(CNRS UMR 7583, Université Paris-Est Créteil, Université Paris Diderot Faculté des Sciences et Technologie),
61 avenue du Général de Gaulle, Créteil, 94010 France

Received December 18, 2013; in final form, May 28, 2014

Abstract—For the first time in Russia, using ground-based measurements of direct solar infrared radiation, we derived data on ozone content in different layers of the atmosphere. The measurements were conducted with the help of a Bruker IFS-125HR Fourier spectrometer in 2009–2012 in Petergof, which is 30 km west of the center of St. Petersburg. The errors in determining the ozone content by this method in the troposphere (0–12 km), in the stratosphere (12–50 km), in the layers of 10–20 km and 20–50 km, and in the layers of 12–18 km, 18–25 km, and 25–50 km were ~4%, 3%, 3–5%, and 4–7% (taking into account the instrumental and methodological errors, as well as the errors in specifying the temperature profile), respectively. The seasonal variation of tropospheric ozone content in the layer of 12–18 km is characterized by a clearly expressed maximum in March and a minimum in November, with amplitudes of 30% and 40%, respectively. For the layer of 18–25 km, the maximum and minimum are reached in the winter–spring period and late summer, respectively; the amplitude of the seasonal variation is ~20%. The amplitude of the annual variation in ozone content in the layer of 25–50 km is around 30%, with a maximum close to the summer solstice and a minimum close to the winter solstice. Over the three years of observations, the growth in the ozone content in this layer was ~10% per year of its value averaged over the time period. Comparisons of ground-based measurements with satellite measurements (by the IASI instrument) of tropospheric ozone revealed a discrepancy of $(3.4 \pm 17)\%$ for both ensembles. The correlation between the two ensembles is 0.76–0.84 (depending on the season). Comparisons between ground-based and satellite measurements (by the MLS instrument) of stratospheric ozone revealed no systematic discrepancies of the two ensembles. The rms errors were 13%, 6%, and 5% for the layers of 10–20 km, 20–50 km, and 10–50 km, respectively; the coefficients of correlations between the two types of measurements were 0.82–0.94.

Keywords: ozone, vertical structure, seasonal variation, Fourier spectrometry.