

СПЕКТРОСКОПИЯ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

УДК 551.51

К.Г. Грибанов, В.И. Захаров, Н. Кобаяши,* А. Шимота*

Определение HDO/H₂O в атмосфере из данных наземного сенсора TIS

Свердловский филиал НИКИЭТ, г.Заречный, Свердловская обл., Россия
*Центральный исследовательский институт электроиндустрии, г. Токио, Япония

Поступила в редакцию 20.07.2000 г.

Идентифицированы сигналы изотопа воды HDO в эмиссионных спектрах атмосферы, наблюдаемых в зенит сенсором TIS в районе г. Токио в декабре 1997 г. в безоблачных условиях. На основе готовых алгоритмов программного обеспечения FIRE-ARMS разработан метод определения отношения концентраций HDO/H₂O в тропосфере из спектров TIS в диапазоне 700–1500 см⁻¹ с разрешением около 0,15 см⁻¹. Наблюдаемые в спектральном интервале 1160–1210 см⁻¹ линии H₂O и HDO были использованы для определения отношения HDO/H₂O в атмосфере. Полученная величина HDO/H₂O согласуется с его характерными наблюдаемыми значениями на данных широтах при аналогичных метеоусловиях.

Появление инфракрасных Фурье-спектрометров наземного базирования, с помощью которых можно наблюдать собственное излучение атмосферы в зенит и под различными углами в диапазоне 600–3000 см⁻¹ с достаточным спектральным разрешением [1–4], инициировало разработку методов определения параметров атмосферы по данным спектрам. Кроме того, появились методы определения профилей температуры и концентрации парниковых газов [5]. В [6] изложен метод определения отношения HDO/H₂O в атмосфере по данным наблюдения уходящего теплового излучения атмосферы Земли сенсором IMG со спутника ADEOS. В данной статье предлагается метод определения HDO/H₂O по результатам пассивного зондирования атмосферы в зенит в спектральном диапазоне 700–1500 см⁻¹ Фурье-спектрометром TIS [4]. Основные характеристики TIS приведены ниже.

Спектральный диапазон, мкм	3,3 – 16
Спектральное разрешение, см ⁻¹	0,06 (без аподизации)
Точность привязки волнового числа, см ⁻¹	0,005
Диапазон измеряемой яркостной температуры, К	255 – 320
Радиометрическая точность, К	< 1
Радиометрическая стабильность, К	< 0,5

Радиометрическая калибровка спектрометра осуществлялась по измерению спектров источников излучения черного тела при температурах 300 и 77 К. Процедура калибровки TIS изложена в [4].

Спектр излучения безоблачной атмосферы при наблюдении в зенит определяется следующим выражением:

$$W(\nu) = \int_0^H (K_{gas} + K_{abs}) B(\nu, T) \exp\left(-\int_0^h (K_{gas} + K_{abs} + K_{sca}) dh'\right) dh, \tag{1}$$

где $W(\nu)$ – спектральная яркость излучения атмосферы, Вт/(м²·см⁻¹·ср), на частоте ν ; $B(\nu, T)$ – планковское излучение при температуре T ; h – текущая высота; H – высота учитываемой верхней атмосферы; K_{gas} , K_{abs} , K_{sca} – коэффициенты поглощения газовыми компонентами атмосферы, поглощения и рассеяния аэрозоля соответственно. K_{gas} может быть выражен следующим образом:

где $K_{cont}(\nu, h)$ – коэффициент континуального поглощения водяным паром; $N_0(h)$ – концентрация молекул воздуха на высоте h ; $T(h)$ – высотный профиль температуры; $n_i(h)$ – относительная концентрация всех изотопических модификаций i -го газа; α_{ij} – естественная распространенность j -й изотопической модификации i -го газа; σ_{ij} – сечение поглощения, рассчитываемое посредством line-by-line суммирования с использованием параметров из HITRAN-96 [7]; N_g – число учитываемых газов, N_i – число изотопических модификаций i -го учитываемого газа.

$$K_{gas}(\nu, h) = K_{cont}(\nu, h) + N_0(h) \sum_{i=1}^{N_g} n_i(h) \sum_{j=1}^{N_i} \alpha_{ij} \sigma_{ij} [\nu, T(h)], \tag{2}$$

В данной работе используются готовые алгоритмы решения обратной задачи в постановке (1), встроенные в ПО FIRE-ARMS [8, 9], которые выполняют минимизацию следующей целевой функции:

$$F = \sum_{i=1}^M \left[\frac{W_i^{obs}}{W_i^{calc}} - \frac{W_i^{calc}}{W_i^{obs}} \right]^2, \tag{3}$$

где W_i^{obs} и W_i^{calc} – наблюдаемые и вычисленные спектральные плотности энергетической яркости атмосферы на i -й частоте; M – количество точек по частоте. Алгоритм, встроенный в ПО FIRE-ARMS, осуществляет минимизацию (3), используя метод Флетчера – Ривза, который может быть представлен в виде следующей последовательности шагов [10]:

а) Этап 0: X_0 – начальное состояние и направление первого перемещения определяется как

$$D_0 = -\nabla F(X_0). \quad (4)$$

б) Этап k : выбрать число λ_k , минимизирующее функцию

$$g(\lambda) = F(X_k + \lambda d_k), \quad (5)$$

положить

$$X_{k+1} = X_k + \lambda D_k, \quad (6)$$

$$D_{k+1} = -\nabla F(X_{k+1}) + \beta_k D_k, \quad (7)$$

$$\beta_k = \frac{\|\nabla F(X_{k+1})\|^2}{\|\nabla F(X_k)\|^2}. \quad (8)$$

в) Тест на остановку: если выполнено, то конец. Иначе: положить $k \leftarrow k + 1$ и вернуться к «б».

В вышеприведенной схеме $X_k = \{t_i, \dots, t_N, n_{i1}, \dots, n_{iN}\}_k$ – вектор, содержащий в нашем случае высотные профили температуры и концентрации водяного пара.

Две причины обусловили выбор метода Флетчера–Ривза: первая – данный метод требует хранения в памяти малого количества информации (3 n -мерных вектора, где n – размерность вектора X_k); вторая – данный метод оказался наиболее оптимальным среди градиентных методов, применяемых к задаче восстановления профилей. Кроме того, предназначенный для оптимизации без ограничений метод был модифицирован в связи с необходимостью учета физических ограничений, накладываемых на атмосферные параметры. В данной статье использовались ограничения следующего вида:

$$ax_i^{\text{ref}} \leq x_i \leq bx_i^{\text{ref}}, \quad (9)$$

где x_i и x_i^{ref} – варьируемый и опорный атмосферные параметры (температура или концентрация поглощающих газов) на i -й высоте, а параметры a и b удовлетворяют условиям $0 < a < 1$ и $b > 1$, причем эти параметры одинаковы для всех узлов высотной сетки, но могут быть различны для разных атмосферных параметров. Модификация метода Флетчера–Ривза заключается в следующем:

1) перед минимизацией (5) определяется максимально возможный параметр $\lambda = \lambda_{\text{max}}$, приводящий к насыщению хотя бы одного из ограничений (9);

2) поиск одномерного минимума (5) производится на интервале $\lambda \in [0, \lambda_{\text{max}}]$;

3) если минимум (5) соответствует $\lambda = \lambda_{\text{max}}$, то в качестве очередного направления D_k принимается проекция вектора $-\nabla F(X_k)$ на границу области, определенной неравенствами (9), на этой итерации полагается $\beta_k = 0$.

Кроме того, программная реализация данного метода содержит возможность на этапе «а» в качестве начального направления взять вектор начального состояния или ему противоположный, т.е. $D_0 = X_0$ или $D_0 = -X_0$. Это эквивалентно варьированию множителя, на который умножается начальное состояние на первой итерации. Во многих случаях благодаря этому уже на первой итерации достигается хорошее согласование измеренного и вычисленного спектров. Следующие итерации градиентного метода только уточняют решение и улучшают согласование этих спектров.

В отличие от статистических методов решения обратной задачи, основанных на линеаризации уравнения (1)

[11–13], описанная выше схема не требует априорной информации о статистических свойствах решения.

Схема определения HDO/H₂O в атмосфере

Наблюдаемые сенсором TIS линии вблизи 1206 см^{-1} идентифицированы нами как сигнал HDO. Фрагмент спектра TIS с сигналом HDO показан на рис. 1. В условиях чистой атмосферы сигнал, наблюдаемый в области $1205\text{--}1207 \text{ см}^{-1}$, определяется тремя составляющими: молекулой HDO, континуальным поглощением водяного пара и фоновым аэрозолем. На рис. 2 приведены два рассчитанных спектра с учетом HDO и без него.

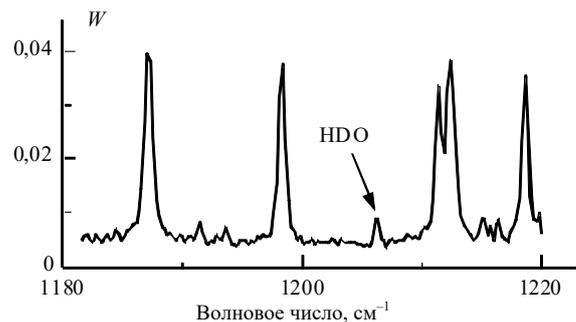


Рис. 1. Фрагмент спектра TIS с сигналом HDO, зарегистрированный при наблюдении в зенит безоблачной атмосферы в районе Токио 10 декабря 1997 г. в 13:55 местного времени в точке $35,6347^\circ$ с.ш. и $139,5869^\circ$ в.д.

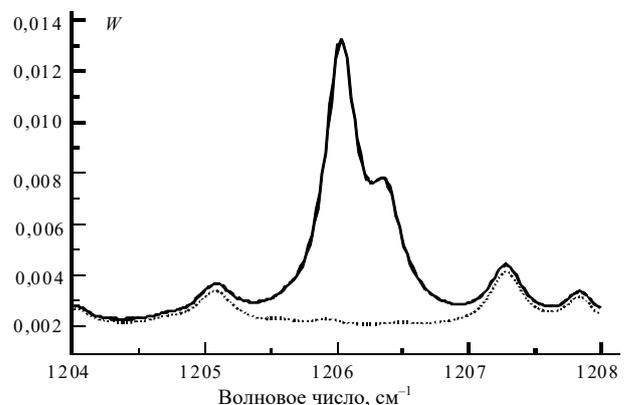


Рис. 2. Идентификация линии HDO. Сплошная линия – спектр, рассчитанный с учетом молекулы HDO, пунктирная – без учета HDO

Наша процедура определения отношения HDO/H₂O из спектров TIS при наблюдении атмосферы в зенит включает определенную последовательность шагов.

Первый шаг – определение профиля температуры. Вклад фоновое городского аэрозоля учитывался в рамках соответствующей модели, взятой из [14], континуальное поглощение водяного пара – по модели из FASCOD 3P.

Второй шаг – восстановление профиля паров воды и их общего содержания в атмосферном столбе площадью $1 \times 1 \text{ м}^2$ из спектрального интервала $1160\text{--}1200 \text{ см}^{-1}$. Результат подгонки наблюдаемого и модельного спектров после этого шага показан на рис. 3.

Третий шаг – аналогичный предыдущему с восстановлением HDO из интервала $1205\text{--}1207 \text{ см}^{-1}$. Подгонка спектров после этого шага приведена на рис. 4.

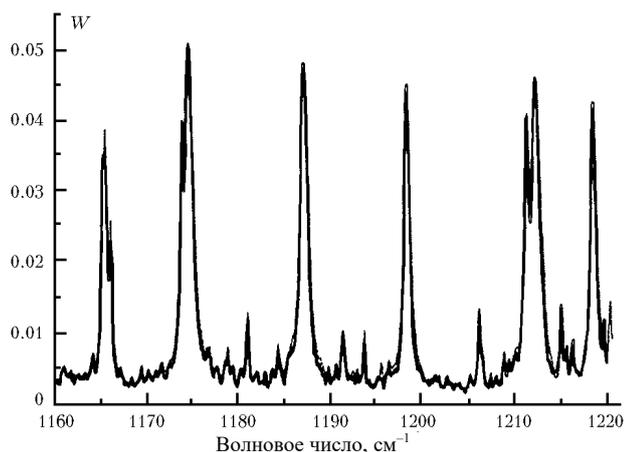


Рис. 3. Подгонка расчетного и измеренного спектров после восстановления профиля паров воды. Сплошная линия – измеренный, пунктирный – расчетный спектры

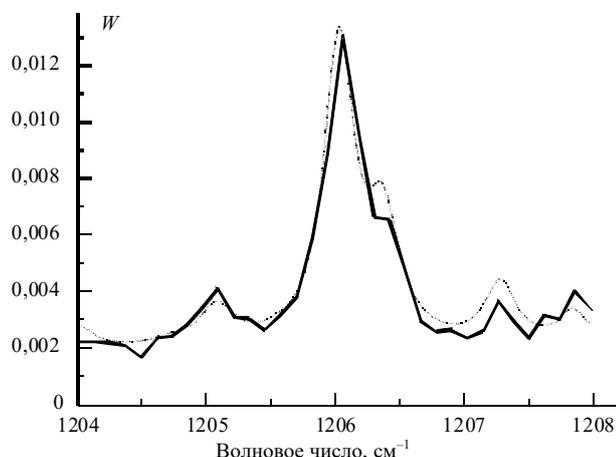


Рис. 4. Подгонка линий HDO в расчетном и измеренном спектрах после восстановления соотношения HDO/H₂O

Четвертый шаг – вычисляется отношение HDO/H₂O в атмосферном столбе в области наблюдения по формуле

$$\delta\text{HDO} = \left[\frac{(\text{HDO} / \text{H}_2\text{O})}{(\text{HDO} / \text{H}_2\text{O})_{\text{SMOW}}} - 1 \right] \times 1000,$$

где SMOW – стандартное отношение этих изотопов в океане.

Полученное значение отношения HDO/H₂O из спектра TIS для атмосферы в районе г. Токио 10 декабря 1997 г. в 13:55 местного времени согласуется с данными [15] и составляет $(0,0279 \pm 0,0006)\%$ ($\delta\text{HDO} = -103 \pm 20$).

При оценке доверительного интервала полученного значения отношения HDO/H₂O могут быть следующие источники ошибок:

- ошибки восстановления профиля температуры;
- ошибки восстановления профиля влажности, которые в свою очередь зависят от ошибок восстановления профиля температуры;
- неадекватный учет фонового аэрозоля;
- ошибки прямой модели (1), связанные с возможными ошибками параметров, взятых из спектроскопической базы данных.

Так как одновременно с наблюдением атмосферы с помощью TIS проводились прямые зондовые измерения профилей температуры и влажности до высоты 5,2 км, то это позволило оценить погрешности восстановления профилей температуры и влажности из спектров TIS, а также оценить связанные с ними ошибки при определении отношения HDO/H₂O. Оценка погрешности восстановления отношения HDO/H₂O проводилась путем подстановки зондовых профилей температуры и влажности на третьем этапе рассмотренной схемы вычислений.

Заключение

Так как в данной статье для оценки величины ошибки при восстановлении профилей температуры и влажности использовалось сравнение с прямыми зондовыми измерениями профилей температуры и влажности, то основным из всех вышеперечисленных источников неопределенности в рассматриваемой схеме вычисления HDO/H₂O может служить неадекватный учет фонового аэрозоля. Однако одновременное определение профиля коэффициента экстинкции атмосферного аэрозоля с помощью лидара и эмиссионного спектра атмосферы Фурье-спектрометром может устранить этот источник неопределенности. В результате предлагаемый метод определения отношения HDO/H₂O в атмосфере из данных ИК Фурье-спектрометров наземного базирования, таких как TIS [4], EISAR [5] и других, дополненных данными аэрозольного лидара, может быть применен для мониторинга дейтерия в атмосфере и верификации климатических моделей.

1. Smith W.L., Revercomb H.E., Howell H.B., Woof H.M., Knuteson R.O., Decker R.G., Lynch M.J., Westwater E.R., Strauch R.G., Morgan K.P., Stankov P., Fells M.J., Jordan J., Jacobsen M., Dabbert W.G., McBeth R., Albright G., Paneitz C., Wright G., May P.T. and Decker M.T. GAPEX: A Ground-Based Atmospheric Profiling Experiment // Bull. Amer. Meteorol. Soc. 1990. V. 71. P. 310–318.
2. Lubin D., and Simpson A.S. The longwave emission signature of urban pollution, Radiometric FTIR measurement // Geophys. Res. Lett. 1994. V. 21. P. 37–40.
3. Revercomb H.E., Smith W.L., Knuteson R.O., Best F.A., Dedecker R.G., Dix T.P., Herbsleb R.A., Short J.F., Howell H.B., Murcray F. and Murcray F. High spectral resolution Fourier transform infrared instruments for the Atmospheric Radiation Measurement Program // Proc. Third Atmos. Radiation Measurement (ARM) Science Team Meeting, March 1–4, 1993, Norman, Oklahoma, US Department of Energy. Conf-9303112, UC-402. March 1994. P. 267–273.
4. Nishizawa S., Kobayashi H., Shimota A., and Kadokura S. Evaluation of Instrumental Performance for TIS (Tropospheric Infrared Interferometric Sounder) // Proc. of the 6th Int. Workshop on Atmospheric Science from Space Using Fourier Transform Spectrometry. 3–5 Oct. 1995, USA.
5. Spaenkuch D., Doehler W., Gueldner J., and Keens A. // Beitr. Phys. Atmosph. 1996. V. 69. P. 97.
6. Грибанов К.Г., Захаров В.И. // Оптика атмосферы и океана. 1999. Т. 12. № 9. С. 858–860.
7. Rothman L.S., Rinsland C.P., Goldman A., Massie S.T., Edwards D.P., Flaud J.-M., Perrin A., Camy-Peyret C., Dana V., Mandin J.Y., Schroeder J., McCann A., Gamache R.R., Watson R.B., Yoshino K., Chance K.V., Jucks K.W., Brown L.R., Nemtchinov V. and Varanasi P. // JQSRT. 1998. V. 60. P. 665–710.
8. Грибанов К.Г., Захаров В.И., Таикун С.А. // Оптика атмосферы и океана. 1999. Т. 12. № 4. С. 372–375.
9. Gribanov K.G. Algorithms and software development for the tasks of greenhouse gases monitoring from Space // SPIE Proceedings of the 13th Symposium and School on High Resolution Molecular Spectroscopy. Tomsk, Russia, July 4–6, 1999. V. 4063. P. 280–286.

10. Мину М. Математическое программирование. М: Наука, 1990. 488 с.
11. Покровский О.М., Тимофеев Ю.М. Общий статистический подход к решению обратных задач атмосферной оптики // Метеорология и гидрология. 1972. № 1. С. 52–59.
12. Smith W.L., Woolf H.M., and Revercomb H.E. Linear simultaneous solution for temperature and absorbing constituent profiles from radiance spectra // Appl. Opt. 1991. V. 30. N 9. P. 1117–1123.
13. Amato U., Cuomo V., De Feis I., Romano F., Serio C., and Kobayashi H. Inverting for geophysical Parameters from IMG radiances // IEEE Transactions of Geoscience and Remote Sensing. 1999. V. 37. N 3. P. 1620–1632.
14. Report of the Experts Meeting on Aerosols and their Climatic Effects / Ed. by A. Deepak and H.E. Gerber. Williamsburg, Virginia, 28–30 March 1983.
15. Dansgaard W. // Tellus. 1964. V. XVI. N 4. P. 443.

K.G. Gribanov, V.I. Zakharov, H. Kobayashi, A. Shimota. **Determination of HDO/H₂O ratio in the atmosphere using TIIS data.**

The signals of HDO isotopomer are identified in the atmospheric emission spectra observed by TIIS in the region of Tokyo in December of 1997 in clear sky condition. The method of HDO/H₂O ratio determination from TIIS spectra in the spectral region of 700–1500 cm⁻¹ with spectral resolution of 0.15 cm⁻¹ is developed. Observed in spectral region of 1160–1120 cm⁻¹, the H₂O and HDO spectral lines were used for HDO/H₂O ratio determination in the atmosphere. Obtained value of HDO/H₂O ratio is in a good agreement with reference value of HDO/H₂O ratio for given meteorological conditions and latitude.