

Показатель преломления вещества сернокислотного стратосферного аэрозоля в диапазоне длин волн 300–550 нм и его вариации

В.А. Коршунов, Д.И. Бусыгина*

Федеральное государственное бюджетное учреждение
«Научно-производственное объединение «Тайфун»
249038, г. Обнинск Калужской обл., ул. Победы, 4

Поступила в редакцию 23.11.2011 г.

Проведены расчеты высотных профилей показателя преломления сернокислотного стратосферного аэрозоля на длинах волн 308, 355 и 532 нм с использованием климатологической информации по среднемесячным значениям температуры и концентрации водяного пара в широтном поясе 40–70° с.ш. и диапазоне высот 12–32 км. Приводятся аппроксимационные соотношения, связывающие изменения показателей преломления на указанных длинах волн. Показано, что при расчете высотных профилей показателей преломления влияние вариаций концентрации водяного пара относительно среднемесячных профилей невелико и его можно не учитывать.

Ключевые слова: показатель преломления, стратосферный аэрозоль, концентрация водяного пара; refractive index, stratospheric aerosol, water vapor concentration.

Глобальный стратосферный аэрозоль на 97–99% образован водным раствором серной кислоты [1–3]. Показатель преломления раствора серной кислоты в видимой и ближней ультрафиолетовой областях спектра зависит от концентрации раствора и его температуры. Знание показателя преломления и его вариаций в стратосфере необходимо для проведения расчетов оптических характеристик аэрозоля при интерпретации данных дистанционного зондирования стратосферы. В работе [4] предложены методика расчета показателя преломления сернокислотного стратосферного аэрозоля и проанализированы его вариации в диапазоне длин волн 690–1060 нм. В данной статье расчетная схема [4] распространена на более коротковолновую область длин волн, начинающуюся от 300 нм. Проведено исследование вариаций показателя преломления стратосферного аэрозоля для длин волн $\lambda = 308, 355$ и 532 нм, часто используемых при лидарном зондировании стратосферного аэрозоля и озона. Рассмотрение ограничено диапазоном температур $T \geq 205$ К.

Согласно существующим представлениям раствор серной кислоты в аэрозольных частицах находится в равновесии с парами воды в окружающей атмосфере. Поэтому концентрация серной кислоты ϵ в растворе определяется парциальным давлением паров воды W (мбар) в окружающей атмосфере и температурой. Для задания концентрации ϵ в зависимости от W и T использовались табличные

данные [4]. Концентрация ϵ возрастает с уменьшением относительной влажности, т.е. с увеличением T при $W = \text{const}$, или с уменьшением W при $T = \text{const}$. В основу расчета показателя преломления раствора серной кислоты брались табличные данные [5], содержащие величины показателя преломления $n(T_0)$ для $T_0 = 300$ К в зависимости от ϵ и λ . Диапазон длин волн в этой таблице ограничен снизу $\lambda = 360$ нм. Поэтому путем экстраполяции таблица дополнялась до $\lambda = 300$ нм. С использованием экстраполированных данных таблицы строился двумерный сплайн $n(\lambda, \epsilon)$ в области $\lambda = 300\text{--}1110$ нм и $\epsilon = 0,25\text{--}0,956$. Для проверки качества экстраполяции результаты сравнивались с данными [6], где приводятся результаты измерений для частного случая 75%-раствора серной кислоты до 200 нм. Сравнение показало хорошее совпадение (с точностью 0,0005) с этими данными. Далее с помощью известной формулы Лорентц–Лоренца проводился пересчет показателя преломления от $n(T_0)$ к $n(T)$ с использованием значений плотностей раствора серной кислоты $\rho(T)$ и $\rho(T_0)$ [4]. Для вычисления плотности раствора $\rho(T)$ для данного ϵ и T использовался аппроксимационный полином с коэффициентами, взятыми из работы [7].

Для оценки диапазона вариаций показателей преломления на длинах волн 308, 355 и 532 нм использовалась климатологическая информация по среднемесячным значениям температуры (модель CIRA-86 [8]) и концентрации водяного пара (данные спутниковых измерений, выполненных по программе HALOE [9]) в диапазоне широт 40–70° с.ш. и высот от 12 до 32 км. По этим данным температура

* Владимир Алексеевич Коршунов (kitekot@eridan.mega.ru); Дора Ивановна Бусыгина (busygina@typhoon.obninsk.ru).

меняется в интервале 205–240 К, а концентрация водяного пара в пределах 3–6 ppm. С использованием высотных профилей температуры и концентрации водяного пара по указанным данным были проведены расчеты высотных профилей показателей преломления. Некоторые из полученных результатов для длины волны 355 нм приведены в табл. 1.

Таблица 1

Показатель преломления для сернокислотного стратосферного аэрозоля на длине волны 355 нм

Высота, км	Северная широта, град					
	40		55		70	
	Июль	Декабрь	Июль	Декабрь	Июль	Декабрь
12	1,468	1,466	1,471	1,466	1,473	1,466
15	1,467	1,469	1,475	1,471	1,477	1,470
20	1,476	1,475	1,479	1,475	1,480	1,472
25	1,482	1,480	1,483	1,478	1,483	1,471
30	1,485	1,485	1,484	1,482	1,483	1,474
32	1,485	1,486	1,483	1,484	1,481	1,478

Получено, что показатели преломления, за редкими исключениями, монотонно возрастают с высотой. Диапазон их изменения в интервале высот от 12 до 32 км составляет 0,015–0,02, что находится в соответствии с расчетами [4] для более длинноволнового диапазона. В широтном поясе 50–70° с.ш. максимальные показатели преломления наблюдаются в летние месяцы, а минимальные – в ноябре–декабре. Для полосы широт 60–70° с.ш. характерен скачок показателя преломления в сторону возрастания на 0,003–0,007 на высотах 27–32 км при переходе от декабря к январю, что связано, по видимому, со стратосферными потеплениями, происходящими в это время года.

При обработке данных зондирования высотный профиль показателя преломления $n(z)$ на той или иной длине волны можно рассчитать с использованием температурного профиля $T(z)$, полученного по результатам аэрологического зондирования, и профиля влажности $W(z)$, для задания которого необходимо использовать климатологические данные. При этом возникает неопределенность в задании показателя преломления, связанная с естественными вариациями концентрации водяного пара относительно средних профилей, определяемых климатологическими данными. С использованием результатов HALOE были проведены оценки величин среднеквадратического отклонения показателя преломления δn_{H_2O} для разных длин волн и условий наблюдения. Получено, что характерные величины δn_{H_2O} примерно одинаковы для всех длин волн и убывают с увеличением высоты. На высотах более 18 км значение δn_{H_2O} не превосходит $0,5 \cdot 10^{-3}$. Характерные значения δn_{H_2O} на высотах 12 и 15 км для разных широт представлены в табл. 2.

Видно, что вариации δn_{H_2O} невелики по сравнению с диапазоном изменения показателя преломления по высоте. При этом они возрастают при

приближении к тропопаузе, что связано с явлением переноса водяного пара из тропосферы в стратосферу. На заданной высоте наибольшие вариации имеют место для 40° с.ш., поскольку здесь высота тропопаузы меняется от 10 до 15 км [10]. Для широтного пояса 55–70° с.ш. среднегодовая высота тропопаузы составляет около 10 км, при этом в слое порядка 2,5 км над тропопаузой имеет место достаточно интенсивное перемешивание стратосферного и тропосферного воздуха [11]. В результате средняя концентрация водяного пара и ее вариации значительно возрастают [12]. Поэтому для высот ниже 12 км оценка показателя преломления с использованием климатологических данных затруднительна.

Таблица 2

Разброс показателей преломления, вызванный вариациями концентрации водяного пара, в единицах 10^{-3}

Северная широта, град	Высота, км	
	15	12
40	1,5 (зима, весна, осень) 3,0 (лето)	3,0 (зима, весна) 2,5 (лето, осень)
55	0,7–1,0	1,5–2,0
70	0,5–1,0	1,0–1,7

При проведении расчетов было замечено, что показатели преломления на разных длинах волн меняются коррелированным образом (рис. 1).

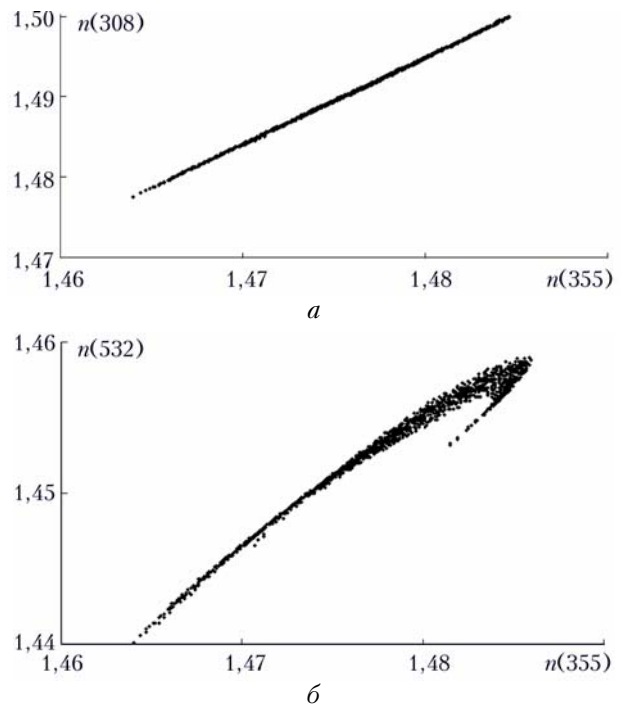


Рис. 1. Связь показателей преломления стратосферного аэрозоля на длинах волн: 308 и 355 нм (а), 532 и 355 нм (б)

Данные графики построены по совокупности рассчитанных среднемесячных профилей показателей преломления в высотном интервале 12–30 км для широт 40, 55 и 70° с.ш. (всего использовано 36 профилей). Как видно из рис. 1, связь показателей

преломления для длин волн 355 и 308 нм хорошо аппроксимируется линейной зависимостью $y = 1,0899x - 0,1181$, где $y = n(308)$, $x = n(355)$. Для длин волн 355 и 532 нм заметна небольшая нелинейность, а при больших показателях преломления выделяется вторая ветвь.

Причины появления второй ветви становятся ясными при рассмотрении зависимости показателей преломления от концентрации серной кислоты (рис. 2).

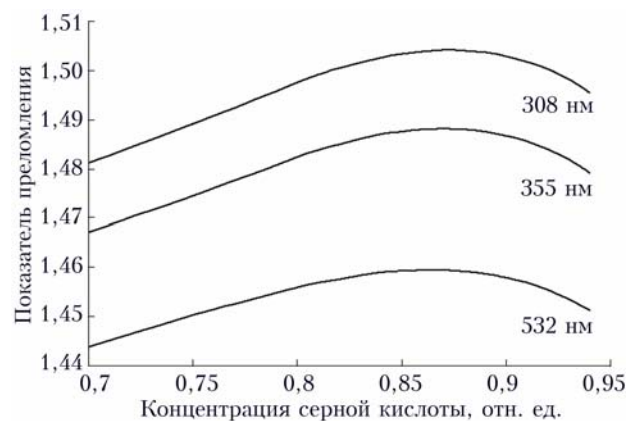


Рис. 2. Зависимость показателей преломления от концентрации серной кислоты ($T = 230$ К)

Как видно из рис. 2, зависимость $n(\epsilon)$ имеет экстремальный характер, при этом положение максимума на длине волны 532 нм имеет небольшое смещение относительно максимумов на 308 и 355 нм. Этого смещения, однако, достаточно для возникновения указанной дополнительной ветви. Анализ показывает, что при ограничении ϵ на уровне $\epsilon \leq 0,83$ дополнительная ветвь исчезает. При этом исключается достаточно ограниченное число ситуаций (около 6%), локализованных на высотах более 29 км. С учетом указанного ограничения корреляционная связь показателей преломления для 355 и 532 нм принимает следующий вид:

$$y = -282,23x^3 + 1234,7x^2 - 1799,6x + 875,15,$$

где $y = n(532)$; $x = n(355)$.

Остаточные вариации показателей преломления относительно найденных корреляционных связей не превышают 0,001. Наличие указанных корреляционных связей в ряде случаев позволяет упростить учет вариаций показателя преломления при обработке данных лидарного зондирования для рассматриваемых длин волн.

V.A. Korshunov, D.I. Busygina. Refractive index of sulfuric acid stratospheric aerosol in range 300–550 nm and its variations.

Calculations of altitude profiles of refractive index of sulfuric acid stratospheric aerosol at 308, 355 and 532 nm based on monthly average climatology data on the temperature and water vapor concentration are fulfilled for 40–70 °N latitude zone and 12–32 km altitude range. Approximation relations connecting variations of refractive indices related at the wavelengths are presented. It is shown that at calculation of altitude profiles of refractive index the effect of water vapor variations relative to monthly average profiles may be neglected.

1. Sheridan P.J., Schnell R.C., Hofmann D.J., Deshler T. Electron microscope studies of Mt. Pinatubo aerosol layers over Laramie, Wyoming during summer 1991 // Geophys. Res. Lett. 1992. V. 19, N 2. P. 203–206. doi: 10.1029/91GL02789.
2. Sheridan P.J., Brock C.A., Wilson J.C. Aerosol particles in the upper troposphere and lower stratosphere: Elemental composition and morphology of individual particles in northern midlatitudes // Geophys. Res. Lett. 1994. V. 21, N 23. P. 2587–2590. doi: 10.1029/94GL01387.
3. Murphy D.M., Thomson D.S., Mahoney M.J. In Situ Measurements of Organics, Meteoritic Material, Mercury, and Other Elements in Aerosols at 5 to 19 Kilometers // Science. 1998. V. 282. P. 1664–1669. doi: 10.1126/science.282.5394.1664.
4. Russell P.B., Hamill P. Spatial variation of stratospheric aerosol acidity and model refractive index: Implications of recent results // J. Atmos. Sci. 1984. V. 41, N 11. P. 1781–1790.
5. Palmer K.F., Williams D. Optical constants of sulfuric acid; Application to the clouds of Venus? // Appl. Opt. 1975. V. 14, N 1. P. 208–219.
6. Shettle E.P., Volz F.E. Optical constants for meteoric dust aerosol models // Atmospheric Aerosols: Their Optical Properties and Effects, a Topical Meeting on Atmospheric Aerosols sponsored by the Optical Society of America and NASA Langley Research Center. Williamsburg, VA, 13–15 Dec. 1976. NASA Conference Publication CP 2004.
7. Myhre C.E., Christensen D.H., Nicolaisen F.M., Nielsen C.J. Spectroscopic Study of Aqueous H₂SO₄ at Different Temperatures and Compositions: Variations in Dissociation and Optical Properties // J. Phys. Chem. A. 2003. V. 107, N 12. P. 1979–1991.
8. CIRA-86. Committee on Space Research (COSPAR). The COSPAR International Reference Atmosphere (CIRA-86), [Internet]. British Atmospheric Data Centre, 2006. Available from <http://badc.nerc.ac.uk/data/cira/>
9. Grooß J.-U., Russell J.M. III. Technical note: A stratospheric climatology for O₃, HCl and HF derived from HALOE measurements // Atmos. Chem. Phys. 2005. V. 5, N 10. P. 2797–2807.
10. Атмосфера: Справочник. Л.: Гидрометеиздат, 1991. 511 с.
11. Лукьянов А.Н., Карпечко А.Ю., Юшков В.А., Коршунов Л.И., Хайкин С.М., Кюрё Э., Киви Р., Матурилли М., Фомель Х. Оценки переноса водяного пара, озона в верхней тропосфере – нижней стратосфере и потоков через тропопаузу в полевой кампании на ст. Соданкюла (Финляндия) // Изв. РАН. Физ. атмосф. и океана. 2009. Т. 45, № 3. С. 316–324.
12. Ипполитов И.И., Комаров В.С., Мицель А.А. Оптико-метеорологическая модель атмосферы для моделирования лидарных измерений и расчета распространения радиации // Спектроскопические методы зондирования атмосферы. Новосибирск: Наука, 1985. С. 4–44.