

УДК 551.510.41

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ CO₂ В ТРОПОСФЕРЕ И СТРАТОСФЕРЕ НАЗЕМНЫМ ИК МЕТОДОМ

© 2021 г. Ю. М. Тимофеев^а, *, Г. М. Неробелов^а, А. В. Поберовский^а, Н. Н. Филиппов^а

^аСанкт-Петербургский государственный университет,
Университетская наб., 7/9, Санкт-Петербург, 199034 Россия

*e-mail: y.timofeev@spbu.ru

Поступила в редакцию 18.08.2020 г.

После доработки 18.11.2020 г.

Принята к публикации 09.12.2020 г.

В работе анализируются наземные измерения спектров поглощения солнечного ИК излучения высокого спектрального разрешения в Петергофе в различных спектральных областях для определения общего содержания CO₂, а также его содержания в двух слоях атмосферы – тропосфере и стратосфере. На основе анализа расчетов погрешностей для различных спектральных схем, а также сравнений с независимыми измерениями и моделированием выбраны две спектральные схемы, состоящие из измерений солнечных спектров в области 2600 и 3100–3300 см⁻¹. Исследован временной ход содержания CO₂ в тропосфере и стратосфере в 2018–2019 гг. В большую часть рассматриваемого периода тропосферные XCO₂ превышают стратосферные значения, причем это превышение достигает 5–10 ppm. В летние периоды и начале осени наблюдается обратная картина – стратосферные значения XCO₂ превышают тропосферные, что связано с процессами фотосинтеза – поглощения CO₂ в тропосфере растительностью. Сравнения результатов наземных измерений с данными моделирования SAMS и спутниковыми измерениями (приборы OCO-2 и ACE) показали хорошее согласие общего содержания CO₂ и его тропосферного и стратосферного содержаний, как правило в пределах 1% при исключении систематических расхождений.

Ключевые слова: климат, парниковые газы, углекислый газ, ИК наземный спектроскопический метод, спутниковые измерения, валидация

DOI: 10.31857/S0002351521020115

1. ВВЕДЕНИЕ

Изменения климата Земли, обусловленные, в значительной степени, ростом содержания парниковых газов и, прежде всего, углекислого газа, стимулировали создание и эксплуатацию глобальной системы мониторинга содержания CO₂ [1]. Эта система состоит из наземных локальных и дистанционных измерений различного типа, самолетных и спутниковых систем наблюдений, наблюдений на высотных мачтах, кораблях и т.д. Значительную роль в получении такой информации играют наземные спектроскопические международные системы наблюдений TCCON и NDACC [2, 3].

Большая часть информации от этих систем получается, прежде всего, в виде общих содержаний (OC) газов, часто в виде средних отношений смеси для сухой атмосферы, например XCO₂. С другой стороны, измерения спектров солнечного ИК излучения высокого спектрального разрешения несут в себе определенную информацию о вертикальной структуре содержания ряда газов. В работах [4–15] были рассмотрены возможности получения информации о профилях содержаний

O₃, H₂O, CO₂, CH₄, CO, C₂H₄, HCl, HF и N₂O. Оценки информативности осуществляются, как правило, с помощью определения числа независимых параметров вертикальных профилей (dofs – degree of freedom for signal), содержащихся в измерениях спектров солнечного излучения, и для упомянутых выше газов они составляют 2–4 параметра [16].

Положительный опыт использования этой информации был неоднократно продемонстрирован для озона (см., например, [5, 6]). Подобные исследования проводились неоднократно и для CO₂. Так, в работе [12] рассмотрены возможности решения обратной задачи по восстановлению профиля CO₂ при использовании измерений в линиях полосы поглощений 1.62 мкм (6220 см⁻¹). Численный анализ информативности показал, что наземные измерения позволяют получить ~3 независимых параметра о профиле CO₂. Эксперименты по замкнутой схеме показали перспективность предлагаемой спектральной области измерений, но анализ реальных спектров обнаружил существенные погрешности решения обратной задачи и не-

Таблица 1. Используемые спектральные окна и фильтры, учитываемые и определяемые газы

N	Каналы, см ⁻¹	Фильтр	Учитываемые МГС	Определяемые МГС
1	950.5–953.8	F1	H ₂ O, O ₃ , N ₂ O	H ₂ O
2	2620.55–2621.1, 2626.4–2626.85 2627.1–2627.6, 2629.275–2629.95	F3	H ₂ O, N ₂ O, CH ₄	H ₂ O, CH ₄
3	3160.14–3160.3, 3161.6–3161.8 3315.5–3316.05, 3316.87–3318.0 3344.68–3344.94	F5	H ₂ O, O ₃ , N ₂ O, CH ₄ , C ₂ H ₂	H ₂ O, O ₃ , C ₂ H ₂
4	4864.55–4865.15, 4882.84–4883.44 4885.14–4885.74	F5	H ₂ O, N ₂ O, CH ₄	H ₂ O
5	3315.50–3316.10, 3344.64–3344.94 4864.55–4865.15, 4882.84–4883.44 4885.14–4885.74	F5	H ₂ O, O ₃ , N ₂ O, CH ₄ , C ₂ H ₂	H ₂ O, O ₃ , C ₂ H ₂
6	4780–4800	F5	H ₂ O, N ₂ O, CH ₄	H ₂ O, CH ₄

обходимость совершенствования как прямой, так и обратной задачи. Анализ возможностей использования измерений в сети TCCON для получения информации о вертикальном профиле содержания CO₂ проведен также в работе [10]. В работе [13] рассмотрены возможности мобильного спектрометра CHRIS (Compact High spectral Resolution Infrared Spectrometer) относительно невысокого спектрального разрешения (0.135 см⁻¹) для получения информации о вертикальной структуре содержания CO₂. При этом использовались измерения спектра солнечного излучения в широкой спектральной области в различных полосах поглощения CO₂. Предполагая априорную изменчивость содержания CO₂ на различных высотах в тропосфере равной 1.3–8% (~5–32 ppm), авторы работы получили число независимых параметров о профиле CO₂ в диапазоне 2.6–3.5 для зенитного угла Солнца 10 градусов и 2.6–3.8 при угле 80 градусов для разных областей ИК излучения. При этом численные эксперименты по замкнутой схеме позволили получить погрешности измерений профиля CO₂ ~ 2.6% (~11 ppm). Анализ информативности наземных измерений спектров солнечного излучения в различных спектральных интервалах, а также поведение усредняющих ядер в обратной задаче восстановления вертикальных профилей содержания CO₂ приведен в работе [15]. В ней показано, что потенциальная информативность может достигать 3–4 независимых параметра профиля, а потенциальное вертикальное разрешение меняется от ~5 км в нижней тропосфере до 20–25 км в стратосфере.

Проблемы выбора оптимальных спектральных областей для определения ОС CO₂ и его профилей обсуждались также в докладах международных конференций [17, 18]

В настоящей работе анализируются измерения спектров поглощения солнечного ИК излучения в Петергофе [19] в различных спектральных областях для определения общего содержания CO₂ в двух слоях атмосферы – тропосфере и стратосфере. Для выбора наиболее качественных данных измерений и оптимальных спектральных областей на первом этапе определяются и анализируются общие содержания CO₂ во всей толще атмосферы. В работе приводятся примеры реального восстановления тропосферного и стратосферного содержания CO₂ вблизи Санкт-Петербурга с помощью измерений спектров в 2018–2019 гг. Для анализа точности нового ИК метода осуществлены сопоставления с независимыми измерениями (спутниковые приборы ACE и OSCO-2) и результатами моделирования.

2. ВОССТАНОВЛЕНИЯ ОБЩЕГО СОДЕРЖАНИЯ CO₂

Для оценки погрешностей определения общего содержания углекислого газа использовалось программное обеспечение PROFFIT при обработке реальных спектральных измерений. Был выбран период измерений в течение года – с сентября 2018 г. по сентябрь 2019 г. Для массовой обработки мы отобрали 6 спектральных схем, представленных в табл. 1. Схемы были отобраны на основе анализа предварительных результатов [15, 20]. Кроме первых 5 рассмотренных ранее схем, была также добавлена схема, предложенная в сети TCCON для обработки и синхронизации измерений CO₂ с данными сети NDACC [19]. Эта схема включает широкий интервал 4780–4800 см⁻¹. Отметим, что ширина всех остальных микроокон в других схемах близка к ~0.6 см⁻¹. В табл. 1 приведены также учитываемые при решении обратной

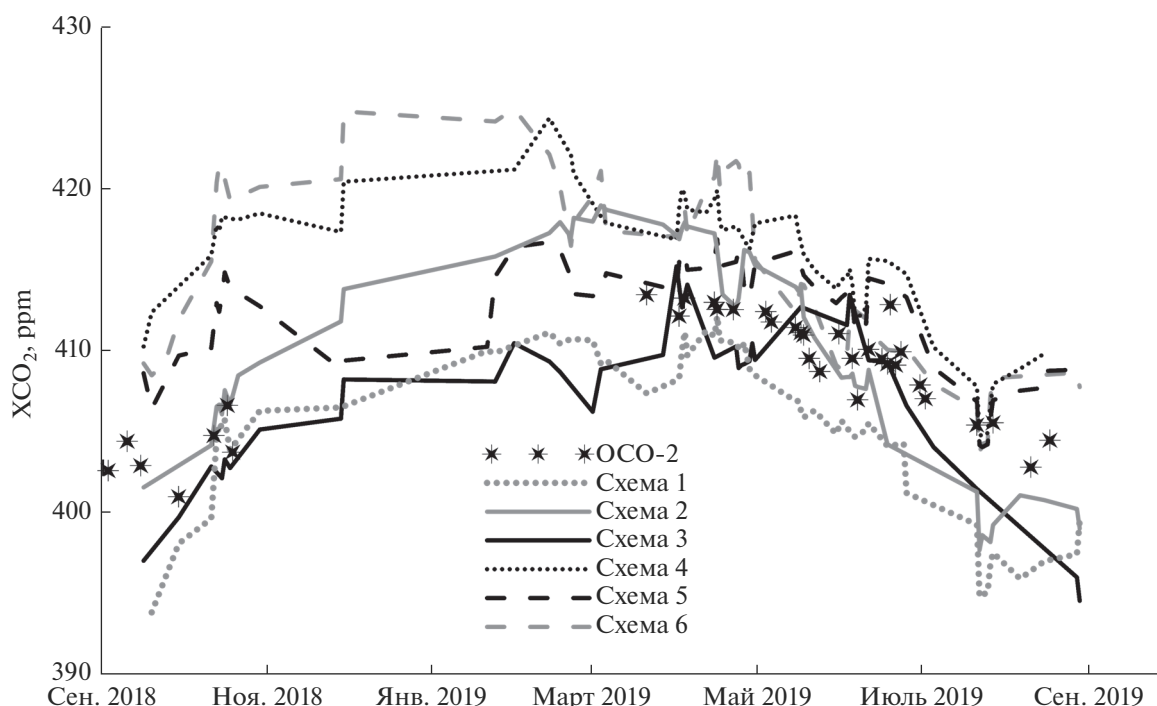


Рис. 1. Годовой ход средневзвешенных величин XCO_2 (бегущее среднее по 3 точкам), полученный по наземным (разные схемы решения обратной задачи) и спутниковым (OCO-2 в радиусе 300 км от станции) данным.

задачи малые газовые составляющие (МГС), а также те МГС, которые уточняются при анализе измеренных спектров в процессе решения обратной задачи. В качестве априорной информации для всех учитываемых газов использовалась модель WACCM v.6, средние профили за период 1980–2020 гг. В качестве начального приближения для водяного пара, углекислого газа и озона использовались средневзвешенные значения профилей, полученных при анализе спектров поглощения соответствующих газов. Для решения обратной задачи использовалась регуляризация Тихонова–Филиппа с предварительно определенным оптимальным параметром регуляризации, для водяного пара и других газов – масштабирование профиля.

Систематическая и случайная погрешности определения XCO_2 рассчитывались с помощью матриц ошибок дистанционного метода. При этом в качестве основных источников погрешности учитывались погрешности задания нулевой линии спектра (0.1% для сдвига и 0.02% для синусоидальной помехи), температурного профиля (2–5 К), спектроскопии (2% для интенсивностей и полуширин линий поглощения всех учитываемых газов), а также шум измерения из остаточной невязки спектров (подробнее см. [20]). Случайная погрешность измерения XCO_2 в равной степени определяется погрешностями задания нулевой линии спектра, температурного профиля, а так-

же шумом измерений. В систематическую погрешность, которая, в основном, и влияет на величину полной погрешности, наиболее значительный вклад вносит погрешность задания спектроскопической информации. Как показали численные оценки, случайные погрешности измерений составляют 0.5–1%, а систематическая погрешность (~3–4%) обусловлена погрешностями задания интенсивностей и полуширин спектральных линий. Приведенные цифры являются типичными для всех использованных спектральных окон.

На рис. 1 приведены восстановленные значения CO_2 при использовании указанных выше спектральных окон.

Из рис. 1 видна значительная систематика между результатами восстановления по разным спектральным схемам, достигающая ~20 ppm. Так, например, наибольшие величины XCO_2 дают схемы 4 и 6, основанные на измерениях в полосе 4800 см^{-1} , наименьшие – схемы 1 (область 950 см^{-1}) и 3 (область 3300 см^{-1}). Схемы 2 (область 2600 см^{-1}) и 5 ($3300 + 4800\text{ см}^{-1}$) дают средние по сравнению с остальными значения XCO_2 . Эти систематические отличия могут быть вызваны систематическими отличиями в используемых параметрах тонкой структуры полос поглощения в различных спектральных областях, а также разным характером атмосферного поглощения CO_2 (сла-

бое, среднее и сильное поглощение, см. подробнее работу [15]) и как следствие отличиями в усредняющих ядрах (УЯ) в разных спектральных интервалах. Заметные систематические отличия в содержаниях CO₂ при использовании разных спектральных интервалах обсуждались ранее в работах [17–20].

Отметим, что все спектральные схемы четко показывают сезонные вариации общего содержания CO₂. Для разных схем амплитуды этих вариаций составляют ~10–15 ppm. Отметим также, что наибольшая сезонная изменчивость характерна для схемы 2, наименьшая – для схемы 5.

На рис. 1 приведены также величины XCO₂, полученные из спутниковых измерений ОСО-2 на расстояниях не более 300 км вокруг станции St. Petersburg. Измерения ОСО-2 за указанный период в этом радиусе проводились только в течение 35 безоблачных дней, а дней, совпадающих с наземными измерениями, еще меньше. Можно только отметить, что сезонный ход спутниковых измерений совпадает с сезонным ходом наземных. По абсолютным значениям спутниковые измерения ближе всего к наземным, полученным по схемам 2 и 3.

В табл. 2 представлены статистические характеристики полученных ансамблей XCO₂: средние величины и их изменчивость, средняя случайная и систематические погрешности. Наибольшие средние величины XCO₂ дают схемы 4–6, использующие микроокна в коротковолновой области спектра в районе 4800 см⁻¹ (см. табл. 1), наименьшие величины – схемы 1 и 3. Большая изменчивость XCO₂ характерна для схем 2 и 3 (7%), меньшая – для схемы 5 (4.4%). Случайные погрешности измерений XCO₂ менее 1% для всех окон, кроме схемы 1. Систематические погрешности близки к 2%, за исключением схемы 1.

Мы также сравнили результаты наземных измерений ОС XCO₂ с результатами базы данных концентрации CO₂ в атмосфере CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service) [22]. Для сравнения мы использовали данные CAMS версии 18r3 для 2018 г. и FT19r1 для 2019 г. из ячейки, наиболее соответствующей территории проведения измерений (59.68° с.ш., 30.0° в.д., г. Санкт-Петербург и окрестности). Данные, представленные в виде концентрации CO₂ на 39 вертикальных уровнях, были преобразованы в XCO₂ для всего атмосферного столба.

На рис. 2 представлены сопоставления средне-суточных наземных измерений двух схем измерений (2 и 3) и данных CAMS.

Приведенные рисунки показывают, что измерения ОС XCO₂ и данные моделирования в среднем очень хорошо согласуются, но данные CAMS более сглаженные по сравнению с данными на-

Таблица 2. Статистические характеристики ансамблей измерений ОС XCO₂ во всей толще атмосферы: x – среднее, σ – изменчивость, $\epsilon_{\text{случ}}$ – средняя случайная погрешность, $\epsilon_{\text{сист}}$ – средняя систематическая погрешность

Схема	$x \pm \sigma$, ppm	$\epsilon_{\text{случ}}$, %	$\epsilon_{\text{сист}}$, %
1	405.9 ± 5.6	2.16 ± 0.09	3.24 ± 0.17
2	411.3 ± 7.0	0.65 ± 0.09	2.11 ± 0.04
3	407.5 ± 7.0	0.71 ± 0.17	2.12 ± 0.04
4	415.7 ± 5.2	0.74 ± 0.07	2.15 ± 0.03
5	412.9 ± 4.4	0.66 ± 0.05	2.13 ± 0.03
6	414.9 ± 6.4	0.83 ± 0.08	2.23 ± 0.05

блюдений, что объясняется различным пространственным разрешением и влиянием локальных источников на наземные измерения. Анализ статистических характеристик отклонений показывает, что для 2 и 3 схем средние значения XCO₂ для CAMS превышают измерения не более чем на 1%, а стандартные отклонения (естественная изменчивость ансамблей) больше у наземных измерений почти в 2 раза. Это также объясняется различием в горизонтальном разрешении данных и влиянием локальных источников CO₂ в наземных измерениях.

3. ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ CO₂ В ТРОПОСФЕРЕ И СТРАТОСФЕРЕ

На следующем этапе исследований были осуществлены восстановления XCO₂ в двух слоях, разделенных на тропосферу (0–12 км) и стратосферу (выше 12 км). Методическое рассмотрение решения обратной задачи в части анализа УЯ метода показало, что возможно определять CO₂ в 3–4 слоях толщиной от 5–10 (тропосфера) до 25–30 км (стратосфера) практически для любой спектральной схемы. Однако массовая интерпретация спектров выявила различные сложности в получаемых результатах и существенные отличия для разных схем. Это обусловлено тем, что в методических исследованиях не учитывался ряд факторов и источников разнообразных ошибок, присутствующих в конкретных реальных измерениях спектров солнечного излучения. Эти факторы и источники часто известны не в полной мере для реальных измерений.

Кроме того, в процессе интерпретации наземных измерений спектров солнечного излучения с помощью программного обеспечения PROFFIT определяются (уточняются) некоторые параметры аппаратуры и измеренного спектра. На это практически затрачивается определенный объем информации, содержащейся в измеренных спектрах.

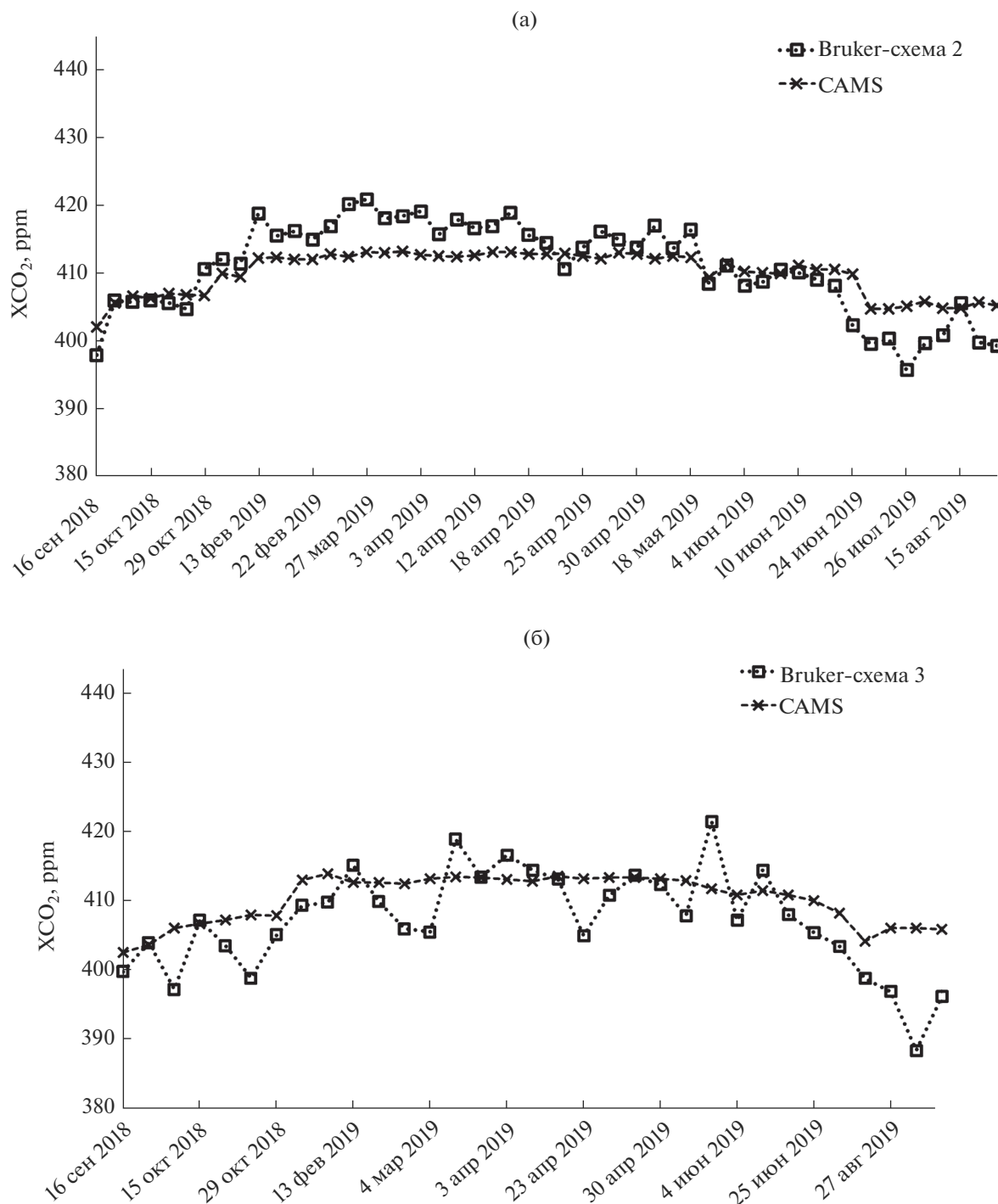


Рис. 2 Временное распределение XCO_2 для всего атмосферного столба по результатам CAMS и данным наблюдений Bruker (схема 2) (а) и (схема 3) (б) для г. Санкт-Петербурга.

Поэтому мы ограничились определением содержания CO_2 только в двух слоях — тропосфере (0–12 км) и стратосфере, а также отбором наиболее качественных данных с помощью использования различных критериев. Для этого мы воспользовались информацией о числе степеней свободы $dofs$, а также стабильности получаемых данных по отно-

шению смеси XCO_2 в течение дня, полученной при определении общих содержаний. Низкие величины $dofs$ косвенно свидетельствуют о качестве измеренных спектров, в частности об уровне шума измерений. Следующим критерием стал отбор только дней измерений, в которых изменчивость определяемой величины XCO_2 не превышает 1%.

Таблица 3. Статистические характеристики ансамблей измерений XCO₂ в двух слоях атмосферы: \bar{x} – среднее, σ – изменчивость, $\epsilon_{\text{случ}}$ – средняя случайная погрешность, $\epsilon_{\text{сист}}$ – средняя систематическая погрешность

Схема	Слой	$\bar{x} \pm \sigma$, ppm	$\epsilon_{\text{случ}}$, %	$\epsilon_{\text{сист}}$, %
1	<12 км	404.5 ± 6.6	2.06 ± 0.12	3.35 ± 0.17
	>12 км	411.9 ± 7.8	4.98 ± 0.28	3.39 ± 0.22
2	<12 км	409.2 ± 9.7	0.85 ± 0.17	2.13 ± 0.68
	>12 км	419.0 ± 4.7	0.55 ± 0.06	2.84 ± 0.06
3	<12 км	408.7 ± 9.4	0.94 ± 0.29	2.08 ± 0.04
	>12 км	402.7 ± 5.7	0.90 ± 0.14	2.89 ± 0.05
4	<12 км	407.7 ± 6.1	0.62 ± 0.20	2.08 ± 0.05
	>12 км	447.8 ± 12.2	1.85 ± 0.48	3.04 ± 0.62
5	<12 км	409.0 ± 6.2	0.64 ± 0.18	2.08 ± 0.04
	>12 км	428.2 ± 13.1	1.40 ± 0.49	2.82 ± 0.59
6	<12 км	413.1 ± 9.0	0.82 ± 0.11	2.19 ± 0.07
	>12 км	421.3 ± 24.7	2.15 ± 0.88	2.87 ± 0.65

В табл. 3 показаны статистические характеристики полученных ансамблей определения XCO₂ в двух атмосферных слоях: средние, изменчивость и случайные и систематические погрешности. Так же как и для ОС CO₂, погрешности определения XCO₂ в двух слоях максимальны для схемы 1, что обусловлено низким отношением сигнал/шум для используемого приемника. Систематическая погрешность определения XCO₂ в стратосфере для этой схемы составляет около 5%, что не позволяет использовать эту схему для получения высококачественных оценок этой величины. Схема 6 дает случайную погрешность определения стратосферного XCO₂ чуть более 2%, однако при этом изменчивость самих получаемых величин XCO₂ максимальна, составляя около 25%, что также исключает эту схему из рассмотрения определения стратосферного CO₂, поскольку его естественные вариации заметно ниже. В схемах 4 и 5 средняя случайная погрешность определения XCO₂ в стратосфере составляет менее 2%, однако его изменчивость (12–13%) и значительное отличие от общего и тропосферного XCO₂ (на 20–40 ppm) говорят о том, что полученные оценки погрешности являются заниженными для этих схем. Отметим при этом, что в схеме 3, единственной из всех схем, среднее содержание стратосферного CO₂ меньше, чем тропосферного (на 6 ppm). В схеме 2 среднее значение XCO₂ в стратосфере больше, чем в тропосфере на 10 ppm, однако это отличие укладывается в оцененную систематическую погрешность метода.

Анализ полных погрешностей определения XCO₂ в двух слоях в рассматриваемый период показал, что погрешности для тропосферы и страто-

сферы минимальны и примерно одной величины только для схемы 3. Схемы 4, 5 и 6 отличаются наименьшими погрешностями определения тропосферного XCO₂, но значительными погрешностями для стратосферы в определенные периоды рассматриваемого года. Схема 2 наряду со схемой 3 дает наименьшие погрешности определения стратосферных величин XCO₂, но значительные погрешности для тропосферы.

Таким образом, наиболее перспективными для подробного анализа величин XCO₂ в двух слоях являются схемы 2 и 3. Случайные погрешности определения XCO₂ для этих схем составляют менее единицы, систематические, обусловленные задаваемой неопределенностью параметров тонкой структуры полос поглощения атмосферных газов, – менее 3%. Отметим, что систематические погрешности можно существенно минимизировать при наличии возможностей использования дополнительных калиброванных измерений.

Следует отметить, что погрешности спектроскопических измерений характеристик газового состава атмосферы при использовании измерений спектров прямого солнечного излучения высокого спектрального разрешения (например, с помощью Фурье-спектрометров Bruker) зависят от многих факторов.

Основные факторы, определяющие точность ИК наземного спектроскопического метода восстановления характеристик газового состава атмосферы, следующие:

1. Аппаратурные характеристики – отношение сигнал/шум, точность задания аппаратной функции прибора, спектральной привязки, точность подгонки базовой линии спектра, исключения ме-

шающих аппаратных искажений, учета угловой апертуры прибора, наведения на диск Солнца.

2. Точность задания параметров тонкой структуры молекулярного поглощения — интенсивности, полуширины, контура спектральной линии и их зависимости от параметров состояния атмосферы, учета континуального поглощения атмосферы, влияния аэрозоля, невидимой облачности и т.д.

3. Используемое спектральное окно при интерпретации измерений.

4. Качество используемой априорной информации об искомом решении — начальном приближении, изменчивости решения, параметрах состояния атмосферы.

5. Используемый метод регуляризации обратного оператора, выбор параметра регуляризации.

6. Точность задания, исключения или учета мешающих газов, прежде всего водяного пара.

Последний фактор в существенной степени обусловлен влиянием поглощения водяного пара как в отдельных линиях, так и в континуальном поглощении. Сравнительный анализ оптических плотностей CO_2 и H_2O и оптимизация используемых окон показали важность независимых оценок влагосодержания атмосферы в момент наземных измерений и использовались при выборе схем измерений 2 и 3.

4. АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ

На рис. 3 представлен временной ход содержания CO_2 в двух слоях при использовании спектральных схем 2 и 3, имеющих минимальные случайные погрешности в стратосфере — менее 1%. Рис. 3 показывает, что тропосферные и стратосферные средние отношения смеси XCO_2 в среднем достаточно близки к друг другу для рассматриваемых двух схем, но схема 2 дает в среднем несколько большие значения CO_2 как в тропосфере, так и в стратосфере. Эти систематические отличия близки к 5–10 ppm. Тропосферные значения больше стратосферных для схемы 2 с ноября по май, а для схемы 3 — с ноября по июль, эта разница больше для схемы 3 — 5–10 ppm, но заметно меньше для схемы 2 — порядка 5 ppm. Это превышение обусловлено антропогенными эмиссиями мегаполиса и достигает ~15 ppm и более в зимнее время. В летние периоды и в начале осени наблюдается обратная картина — стратосферные значения XCO_2 превышают тропосферные, что связано с процессами фотосинтеза — поглощения CO_2 растительностью. При этом превышение достигает ~10–20 ppm. Такой инверсионный вертикальный ход среднего отношения смеси неоднократно регистрировался в самолетных и спутниковых измерениях в летний период (см., например, работы [23–26]). Обе схемы демон-

стрируют четкий сезонный ход для тропосферного CO_2 — его минимум достигается в летнее время. Отметим также, что стратосферные значения CO_2 для схемы 2 демонстрируют сезонный ход с максимумом в осеннее время. Эта особенность характерна и для результатов спутниковых измерений [25, 26].

Восстановленные нами содержания CO_2 в слоях тропосферы и стратосферы были сопоставлены с результатами моделирования CO_2 программы CAMS (рис. 4). Сравнения показывают, что XCO_2 по данным CAMS во всем атмосферном столбе и в слое ниже 12 км хорошо согласуются с данными наземных измерений. Несмотря на сглаженность временного изменения данных CAMS, основные тренды в изменении XCO_2 повторяются. Худшее соответствие показали результаты для слоя выше 12 км при использовании схемы 2. Причем в этом случае наблюдаются достаточно значительные систематические отличия. Анализ статистических характеристик (табл. 4) подтверждает, что наиболее схожий тренд временного изменения XCO_2 наблюдается в тропосфере и во всем атмосферном столбе, где коэффициенты корреляции (R) около 0.9 для схемы 2 и 0.7–0.8 для схемы 3. Худшее соответствие, как и предполагалось, наблюдается для стратосферы (R в диапазоне 0.1–0.7). Наименьшее среднее отклонение (M) наблюдается для всего атмосферного столба (от 1 до –3 ppm), тогда как наибольшее достигает 15 ppm в слое стратосферы. В большинстве случаев значение XCO_2 по данным CAMS было больше, чем по данным измерений. В среднем, значения S и σ максимальны для слоя тропосферы (около 6–7 ppm для схемы 2 и около 7 ppm для схемы 3). Максимальное среднеквадратическое отклонение (S) наблюдается для схемы 3 в слое стратосферы (16 ppm). Временные вариации XCO_2 в стратосфере имеют менее выраженное сезонное изменение, но для схемы 3 максимум концентрации CO_2 наблюдается в осеннее время, что соответствует спутниковым измерениям. Вариации XCO_2 в стратосфере определяются вертикальным переносом CO_2 с нижних слоев. Соответственно, качество параметризации вертикального переноса в модели, используемой для базы данных CAMS, играет важную роль при сопоставлении результатов CAMS и данных наблюдений.

Регулярные измерения вертикальных профилей CO_2 уже более 15 лет осуществляются аппаратурой ACE с помощью солнечного затмленного метода [25, 26]. Эти измерения в основном дают информацию о стратосферных и мезосферных содержаниях CO_2 . На рис. 5 приведено сопоставление наземных (схема 3) и спутниковых измерений содержания CO_2 в стратосфере, показывающее достаточно хорошее согласие, учитывая по-

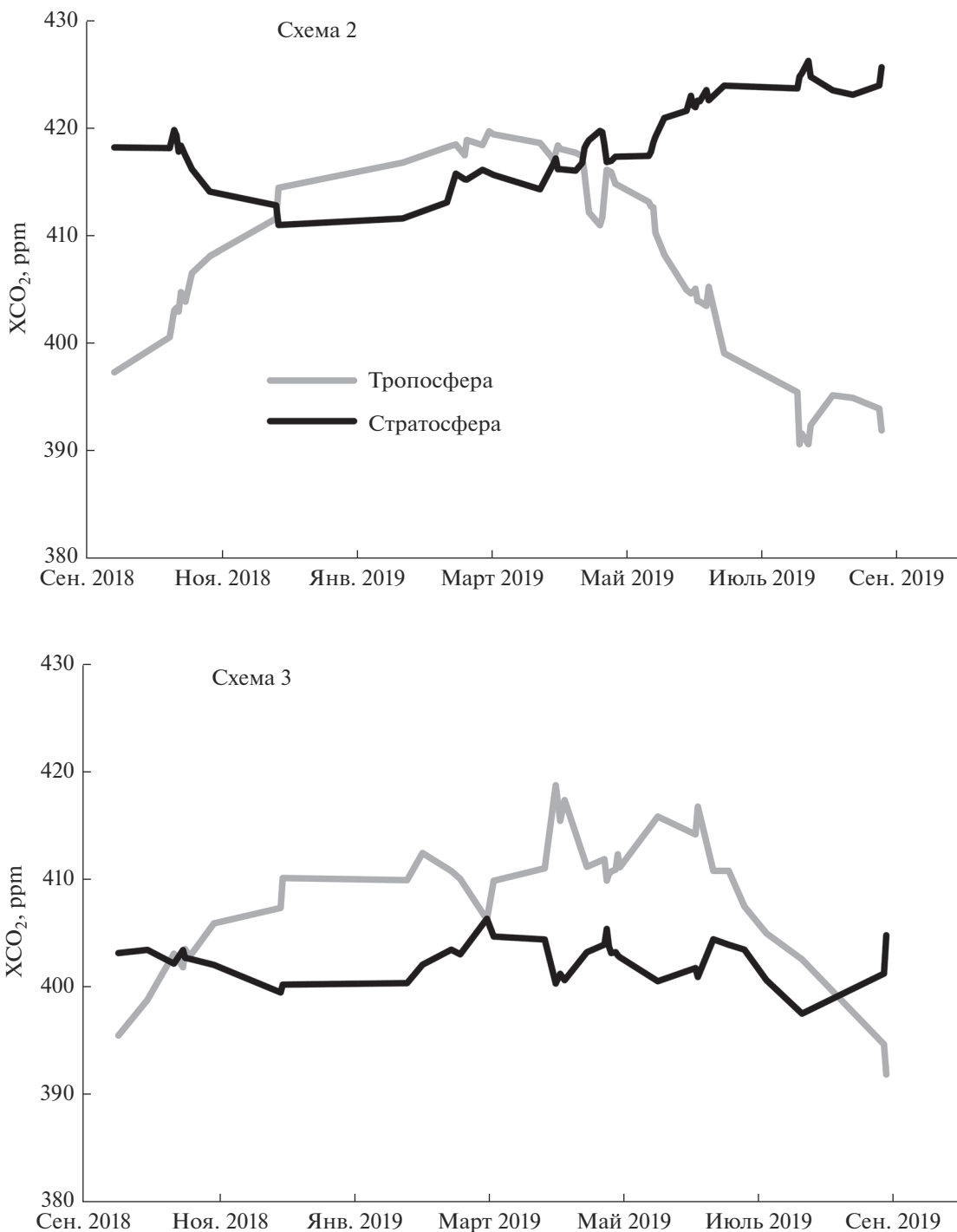


Рис. 3. Временной ход средненежных величин XCO₂ для тропосферы и стратосферы для двух спектральных схем, а также бегущее среднее по 3 точкам.

грешности обоих типов измерений и невысокую пространственную согласованность измерений.

5. ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

Определение вертикальной структуры содержания CO₂ имеет важное значение с точки зрения

исследований обмена парниковых газов между тропосферой, где антропогенный фактор определяет рост его содержания, и стратосферой. В связи с этим разработка наземной ИК спектроскопической методики измерений, например тропосферных и стратосферных содержаний CO₂ представляет значительный научный и практиче-

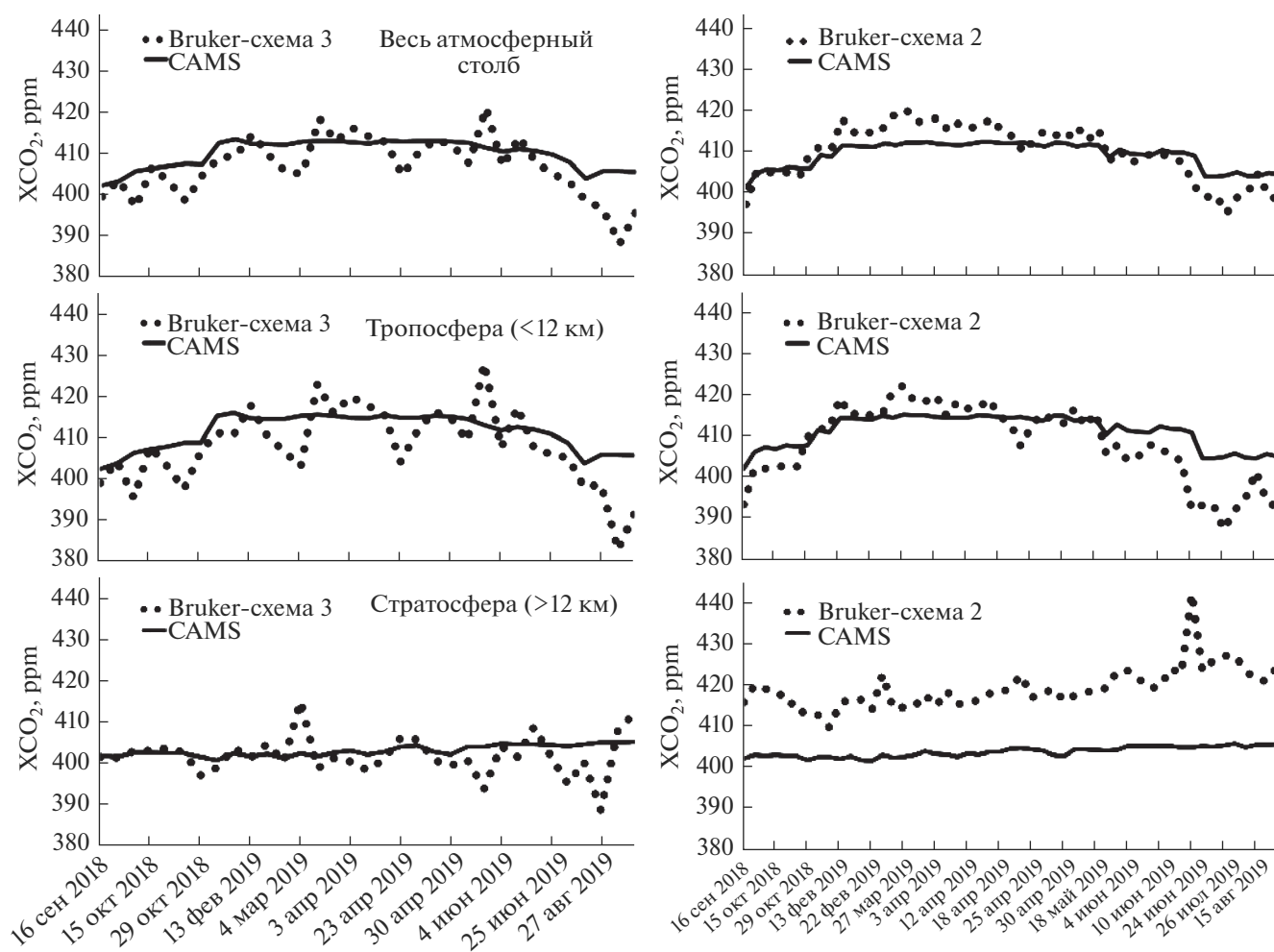


Рис. 4 Временное распределение XCO_2 для всего атмосферного столба, тропосферы и стратосферы по результатам CAMS и данным наблюдений Bruker по 2-й и 3-й схеме восстановления на территории г. Санкт-Петербурга и его окрестностей.

ский интерес. Тем более, что регулярные наземные измерения спектров высокого спектрального разрешения проводятся уже длительное время в рамках двух международных сетей NDACC и TCCON, имеющих в сумме более 50 станций наблюдения по всему миру. В данной работе на ос-

нове методических численных исследований и обработки реальных наземных измерений спектров солнечного излучения за годовой период получены следующие результаты:

1. Получены численные оценки погрешностей определения общего содержания CO_2 и его тро-

Таблица 4. Статистические характеристики сопоставления результатов Bruker и CAMS для трех атмосферных слоев (в ppm)

Вертикальный слой	Схема	M	S	σ	R
Весь атм. столб	2	0.7	4.1	4.1	0.91 ± 0.12
	3	-2.8	5.8	5.1	0.75 ± 0.24
0–12 км	2	-2.8	6.7	6.1	0.89 ± 0.13
	3	-3.0	7.4	6.9	0.72 ± 0.25
>12 км	2	15.4	16.0	4.4	0.68 ± 0.21
	3	-1.4	4.9	4.8	0.13

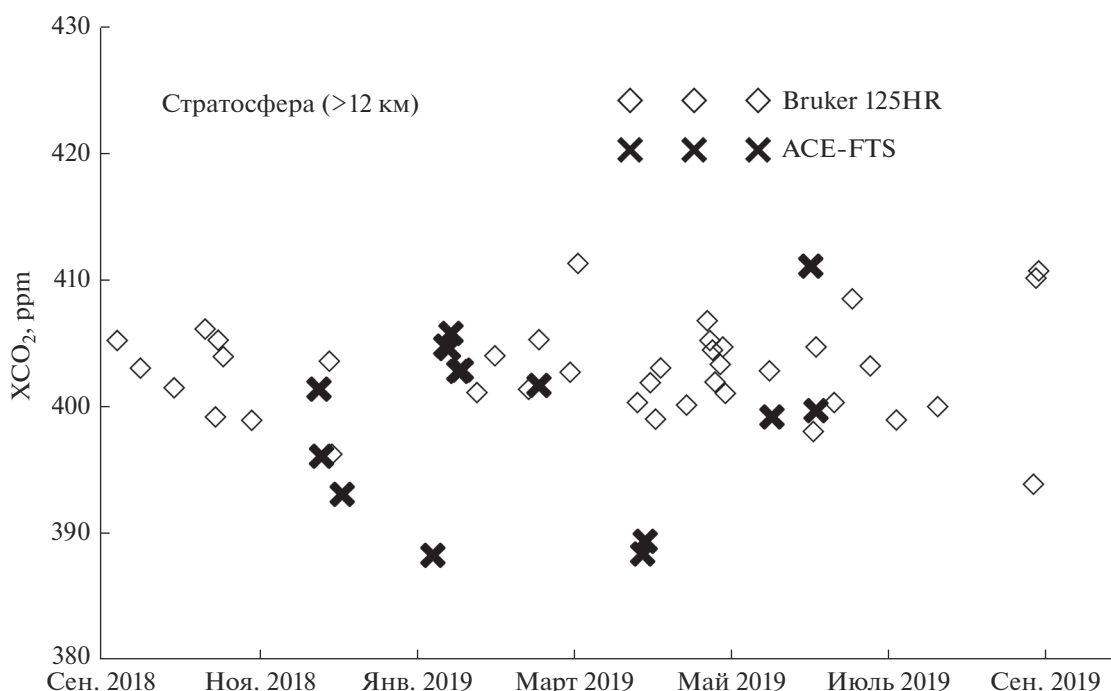


Рис. 5. Временной ход величин XCO₂ в стратосфере, полученный по данным наземных измерений (схема 3) и данным спутниковых измерений ACE-FTS в радиусе 400 км от наземных измерений.

посферного и стратосферного содержания для различных спектральных схем использования наземных измерений спектров солнечного излучения Фурье-спектрометра Bruker 125HR в окрестностях Санкт-Петербурга. Случайные погрешности измерений ОС CO₂ составляют 0.5–1%, а систематические погрешности, обусловленные в основном погрешностями задания спектроскопических параметров спектральных линий, составляют 3–4% для разных спектральных окон и разных периодов измерений.

2. Анализ погрешностей определения содержания CO₂ в тропосфере и стратосфере для различных спектральных схем измерений и различных временных периодов показывает, что они изменяются в широких пределах — от 1 до 8%. На основе анализа расчетов погрешностей для различных спектральных схем, а также сравнений с независимыми измерениями и моделированием выбраны две спектральные схемы, состоящие из измерений солнечных спектров в области 2600 и 3100–3300 см⁻¹ для определения содержания CO₂ в тропосфере и стратосфере.

3. Анализ измерений спектров солнечного ИК излучения программой PROFFIT с регуляризацией Тихонова—Филиппа для выбранных оптимальных спектральных схем позволил исследовать временной ход содержания CO₂ в тропосфере и стратосфере за рассмотренный годовой период. Показано, что тропосферные и страто-

сферные средние отношения смеси сухой атмосферы XCO₂ в среднем достаточно близки к друг другу. В большую часть рассматриваемого периода тропосферные XCO₂ превышают стратосферные значения, причем это превышение составляет 5–10 ppm. Это превышение обусловлено антропогенными эмиссиями мегаполиса Санкт-Петербурга. В летние периоды и начале осени наблюдается обратная картина — стратосферные значения XCO₂ превышают тропосферные, что связано с процессами фотосинтеза — поглощением CO₂ в тропосфере растительностью. При этом данное превышение достигает ~10–20 ppm. Сезонный ход стратосферного содержания CO₂ демонстрирует максимум в осеннее время, что согласуется с данными спутниковых измерений.

4. Сравнения результатов наземных измерений с данными моделирования CAMS показали хорошее согласие общего содержания CO₂ и его тропосферного и стратосферного содержания, как правило в пределах 1% при исключении систематических расхождений. Сравнения с данными спутниковых измерений (приборы OCO-2 и ACE) также демонстрируют хорошее согласие двух типов измерений и перспективность рассмотренной методики наземного дистанционно-го ИК метода.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 20-05-00627). Экспериментальные данные получены на оборудовании ресурсного цен-

тра СПбГУ “Геомодель”. Спутниковые измерения прибора АСЕ финансируются Космическим агентством Канады.

6. СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ciais P., Dolman A.J., Bombelli A., Duren R., Peregon A., Rayner P.J., Miller C., Gobron N., Kinderman G., Marland G., Gruber N., Chevallier F., Andres R.J., Balsamo G., Bopp L., Bréon F.-M., Broquet G., Dargaville R., Battin T.J., Borges A., Bovensmann H., Buchwitz M., Butler J., Canadell J.G., Cook R.B., DeFries R., Engelen R., Gurney K.R., Heinze C., Heimann M., Held A., Henry M., Law B., Luysaert S., Miller J., Moriyama T., Moulin C., Myneni R.B., Nussli C., Obersteiner M., Ojima D., Pan Y., Paris J.-D., Piao S.L., Poulter B., Plummer S., Quegan S., Raymond P., Reichstein M., Rivier L., Sabine C., Schimel D., Tarasova O., Valentini R., Wang R., van der Werf G., Wickland D., Williams M., Zehner C.* Current systematic carbon-cycle observations and the need for implementing a policy-relevant carbon observing system // *Biogeosciences*. 2014. V. 11. P. 3547–3602.
2. TCCON (Total Carbon Column Observing Network): <http://www.tccon.caltech.edu/>
3. NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change): <http://www.ndaccdemo.org/>
4. Тимофеев Ю.М. Исследования атмосферы Земли методом прозрачности. Санкт-Петербург: Наука, 2016. 367 с.
5. *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. 16.689–16.697.
6. *Виролайн 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.
7. *Schneider M., T. Blumenstock T., Chipperfield M.T., Hase F., Kouker W., Reddman T., Ruhnke R., Cuevas E., Fische H.* Subtropical trace gas profiles determined by ground-based FTIR spectroscopy at Izaña (28° N, 16° W): Five-year record, error analysis, and comparison with 3-D CTMs // *Atmos. Chem. Phys.* 2005. V. 5. P. 153–167.
8. *Velasco V., Notholt J., Warneke T., Lawrence M., Bremer H., Drummond J., Schulz A., Krieg J., Schrems O.* Latitude and altitude variability of carbon monoxide in the Atlantic detected from ship-borne Fourier transform spectrometry, model, and satellite data // *J. Geophys. Res.* 2005. V. 110. P. D09306.
9. *Duchatelet P., Mahieu E., Ruhnke R., Feng W., Chipperfield M., Demoulin P., Bernath P., Boone C.D., Walker K.A., Servais C., Flock O.* An approach to retrieve information on the carbonyl fluoride (COF₂) vertical distributions above Jungfraujoch by FTIR multi-spectrum multi-window fitting // *Atmos. Chem. Phys.* 2009. V. 9. P. 9027–9042.
10. *Kuai L., Wunch D., Shia R.-L., Connor B., Miller C., Yung Y.* Vertically constrained CO₂ retrievals from TCCON measurements // *J. Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. 2012. V. 113. № 14. P. 1753–1761.
11. *Senten C., De Mazière M., Vanhalewijn G., Vigourou 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. V. 5. P. 161–180.
12. *Connor B.J., Sherlock V., Toon G., Wunch D., Wennber P.O.* GFIT2: an experimental algorithm for vertical profile retrieval from near-IR spectra // *Atmos. Meas. Tech.* 2016. V. 9. P. 3513–3525.
13. *El Kattar M.-T., Auriol F., Herbin H.* Instrumental characteristics and potential greenhouse gas measurement capabilities of the Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer: CHRIS // *Atmos. Meas. Tech.* 2020. V. 13. P. 3769–3786.
14. *Zhou M., Langerock B., Sha M.K., Kumps N., Hermans C., Petri C., Warneke T., Chen H., Metzger J.-M., Kivi R., Heikkinen P., Ramonet M., De Mazière M.* Retrieval of atmospheric CH₄ vertical information from ground-based FTS near-infrared spectra // *Atmos. Meas. Tech.* 2019. V. 12. P. 6125–6141.
15. Тимофеев Ю.М., Филиппов Н.Н., Поберовский А.В. Анализ информативности и вертикального разрешения наземного спектроскопического ИК-метода определения вертикальной структуры CO₂ // *Оптика атмосфер. и океана*. 2020. Т. 33. № 11. С. 836–841.
16. NDACC Infrared Working Group: <https://www2.acom.ucar.edu/irwg/links>
17. *Timofeyev Yu.M., Makarova M.V., Virolainen Ya.A., Berezin I.A., Polyakov A.V., Poberovsky A.V., Foka S.Ch.* Analysis of satellite and ground-based measurements of CO₂ total content near Saint-Petersburg, Russia // *Geophys. Res. A*. 2018. V. 20, EGU2018-3875.
18. *Makarova M., Virolainen Ya., Polyakov A., Poberovskiy A., Timofeyev Yu., Imhasin H.* St. Petersburg site report (2018–2019) [Электронный ресурс]. URL: https://www.acom.ucar.edu/irwg/IRWG_2019_posters/ (дата обращения 25.01.2021).
19. *Timofeyev Yu., Virolainen Ya., Makarova M., Poberovsky A., Polyakov A., Ionov D., Osipov S., Imhasin H.* Ground-based spectroscopic measurements of atmospheric gas composition near Saint Petersburg (Russia) // *J. Mol. Spectr.* 2016. V. 323. P. 2–14.
20. *Виролайн Я.А.* Методические аспекты определения содержания углекислого газа в атмосфере с помощью ИК-фурье-спектрометрии // *Журн. прикладной спектроскопии*. 2018. Т. 85. № 3. С. 453–460.
21. Тимофеев Ю.М., Березин И.А., Виролайн Я.А., Макарова М.В., Поляков А.В., Поберовский А.В., Филиппов Н.Н., Фока С.Ч. Пространственно-временные вариации содержания CO₂ по данным спутниковых и наземных измерений вблизи Санкт-Петербурга // *Изв. РАН. Физика атмосферы и океана*. 2019. Т. 55. № 1. С. 65–72.
22. *Chevallier F.* Description of the CO₂ inversion production chain. Report / Copernicus Atmosphere Monitoring Service. 2016. № CAMS73_2015S1_D73.1.3_201603. P. 1–9.
23. *Аршинов М.Ю., Белан Б.Д., Давыдов Д.К., Креков Г.М., Фофонов А.В., Бабченко С.В., Inoue G., Machida T.*

- Максютов Ш., Sasakawa M., Ko S. Динамика вертикального распределения парниковых газов в атмосфере // Оптика атмосфер. и океана. 2012. Т. 25. № 12. С. 1051–1061.
24. Аршинов М.Ю., Афонин С.В., Белан Б.Д., Белов В.В., Гриднев Ю.В., Давыдов Д.К., Machida T., Nedelec Ph., Paris J.-D., Фофанов А.В. Сравнение спутниковых и самолетных измерений газового состава в тропосфере над Югом Западной Сибири // Оптика атмосфер. и океана. 2013. Т. 26. № 09. С. 773–782.
25. Foucher P.Y., Chedin A., Armante R., Boone C., Crevoisier C., Bernath P. Carbon dioxide atmospheric vertical profiles retrieved from space observation using ACE-FTS solar occultation instrument // Atmos. Chem. Phys. 2011. V. 11. P. 2455–2470.
26. Boone C.D., Bernath P.F., Cok D., Jones S.C., Steffen J. Version 4 retrievals for the atmospheric chemistry experiment Fourier transform spectrometer (ACE-FTS) and imagers // J. Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. 2020. V. 247. P. 106939.

Evaluation of CO₂ Content in Troposphere and Stratosphere by Ground-Based IR Method

Yu. M. Timofeyev¹*, G. M. Nerobelov¹, A. V. Poberovskii¹, and N. N. Filippov¹

¹Saint-Petersburg State University, Universitetskaya emb., 7/9, Saint-Petersburg, 199034 Russia

*e-mail: y.timofeev@spbu.ru

In this study the ground-based measurements of solar IR radiation absorption spectra with high spectral resolution in Peterhof which were carried out in different ranges of electromagnetic waves to evaluate the total atmospheric column of CO₂ and its content in troposphere and stratosphere were analyzed. Two spectral schemes consisting of solar spectra measurements in the ranges of 2600 and 3100–3300 cm⁻¹ were chosen according to the analysis of the errors of different spectral schemes and comparison with independent observations and modelling data. The temporal evolution of CO₂ content in the troposphere and stratosphere in 2018–2019 was studied. For most of the period the values of tropospheric XCO₂ were higher than stratospheric XCO₂ with the difference up to 5–10 ppm. However, the stratospheric XCO₂ appeared to be higher than the tropospheric XCO₂ in summer and in the beginning of autumn. It was related to photosynthesis processes (consuming of CO₂ by plants in the troposphere). The comparison of the ground-based observations with CAMS modelling data and satellite observations (OCO-2 and ACE instruments) demonstrated close agreement for the total column of CO₂ and its content in the troposphere and stratosphere. The errors are within 1% provided that systematic uncertainties are excluded.

Keywords: climate, greenhouse gases, carbon dioxide, ground-based IR spectroscopic method, satellite observations, validation