

На правах рукописи



Касьяник Никита Иванович

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ФИЗИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ АТМОСФЕРНОГО
АЭРОЗОЛЯ НА ОСНОВЕ ИЗМЕРЕНИЙ МНОГОВОЛНОВОГО
РАМАНОВСКОГО И ФЛУОРЕСЦЕНТНОГО ЛИДАРОВ

1.3.19. Лазерная физика

Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата
физико-математических наук

Москва – 2025

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки
Федеральном исследовательском центре «Институт общей физики им. А.М. Прохорова
Российской академии наук»

Научный руководитель

Коренский Михаил Юрьевич
кандидат технических наук,
директор Центра физического
приборостроения Федерального
государственного бюджетного учреждения
науки Федерального исследовательского
центра «Институт общей физики им. А.М.
Прохорова Российской академии наук»

Официальные оппоненты:

Юшков Владимир Александрович
кандидат физико-математических наук,
заведующий отделом физики высоких
слоев атмосферы Федерального
государственного бюджетного учреждения
«Центральная аэрологическая
обсерватория»

Павлов Андрей Николаевич
доктор физико-математических наук
главный научный сотрудник лаборатории
лазерных методов исследования вещества
Федерального государственного
бюджетного учреждения науки «Институт
автоматики и процессов управления
Дальневосточного отделения Российской
академии наук»

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики атмосферы
им. А.М. Обухова Российской академии наук

Защита диссертации состоится «06» октября 2025 года в 16 ч 30 мин на заседании
диссертационного совета 24.1.223.03 при ИОФ РАН по адресу: 119991 ГСП-1, г. Москва,
ул. Вавилова, д. 38, корп. 1, конференц-зал.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ИОФ РАН
<https://diss.gpi.ru/all/>

Автореферат разослан «___» _____ 2025 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета 24.1.223.03
кандидат физико-математических наук
тел. +7 (499) 503-8780

Осадчий Александр Валентинович

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Аэрозолями называют взвешенные в атмосфере частицы в жидкой или твердой фазе, размеры которых варьируются от десятков нанометров до десятков микрон. Аэрозоль воздействует на радиационный баланс планеты посредством поглощения и рассеяния излучения (прямое воздействие) а также через модификацию радиационных свойств облаков (косвенное воздействие) [1]. Воздействие аэрозоля на радиационный поток зависит, в том числе, от высотного распределения параметров частиц, и соответствующая информация может быть получена из лидарных измерений. [2–4]. Интерес к использованию лидаров в аэрозольных исследованиях обусловлен, в значительной степени, прогрессом в разработке лидаров рамановского (комбинационного) рассеяния и лидаров высокого спектрального разрешения, позволяющих проводить независимые измерения коэффициентов обратного рассеяния (β) и экстинкции (α) аэрозоля на одной или нескольких длинах волн. Наибольшее распространение получили лидары на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники, позволяющие измерять три коэффициента обратного рассеяния (β_{355} , β_{532} , β_{1064}), два коэффициента экстинкции (α_{355} , α_{532}) и три коэффициента деполяризации (δ_{355} , δ_{532} , δ_{1064}). На основе измеренных величин можно оценивать микрофизические параметры, такие как объемная, поверхностная и числовая концентрация частиц, а также комплексный показатель преломления [5, 6].

Физические свойства аэрозоля могут варьироваться в широком диапазоне, и для упрощения анализа результатов измерений, как правило, рассматриваются их базовые типы. Эти типы обычно классифицируются по источникам происхождения: пустынный, морской аэрозоль, продукты горения биомассы (дым), городской аэрозоль [7]. В существующих схемах классификации, тип аэрозоля определяется исходя из физических параметров частиц, не зависящих от концентрации [8–10]. К этим параметрам относятся коэффициент деполяризации, лидарное отношение, параметр Ангстрема.

Подобный подход к классификации, однако, сталкивается с фундаментальными ограничениями, поскольку эти параметры, даже для одного типа аэрозоля, демонстрируют сильные вариации, что усложняет определение типа частиц. В частности, проблематичной оказывается идентификация частиц дыма и городского аэрозоля, поскольку их параметры близки.

Лазерно-индуцированная флуоресценция широко используется для локального мониторинга органических частиц в атмосфере [11, 12]. Объединение флуоресцентной и лидарной технологий дает возможность осуществлять такой мониторинг удаленно [13, 14]. Спектр флуоресценции варьируется в зависимости от типа аэрозолей, что открывает дополнительные возможности для их классификации. Более того, оказывается возможным получать информацию об аэрозольных частицах внутри облачного слоя, что позволяет исследовать процессы взаимодействия аэрозоля и облаков.

Наиболее простым типом флуоресцентного лидара является его одноканальный вариант [15, 16]. При анализе флуоресцентных измерений рассчитываются два параметра:

- Коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния β_F , определяемый из отношения лидарных сигналов флуоресценции аэрозоля и рамановского рассеяния азота.

- Эффективность флуоресценции (в англоязычной литературе – fluorescence capacity) G_F , определяемая из отношения β_F к коэффициенту обратного рассеяния аэрозоля на одной из длин волн лазера [15].

Как было продемонстрировано в цикле совместных работ ЦФП ИОФ РАН и университета Лилля [14, 15], использование G_F совместно с коэффициентом деполяризации аэрозоля позволяет определять основные типы аэрозоля. Однако, атмосферный аэрозоль зачастую представлен смесью частиц разных типов. В существующих схемах классификации обычно вводятся дополнительные категории для обозначения смешанных типов (загрязненная пыль, загрязненный морской аэрозоль и т. д.). Вместе с тем, для

понимания вклада различных типов аэрозоля в модификацию радиационного потока, необходимо количественно оценивать содержание каждого типа в смеси. Одной из целей диссертационной работы является разработка дистанционных лазерных методов количественного анализа состава аэрозольной смеси на основе флуоресцентных и поляризационных лидарных наблюдений.

Измерение полного спектра флуоресценции позволяет получить больший объем информации о свойствах аэрозоля по сравнению с одноканальными измерениями. Соответствующие лидарные измерения проводились с использованием 32х-канального ФЭУ, сопряженного со спектрографом [17–18]. Однако, волоконное соединение приемного телескопа со спектрографом, используемое в таких системах, приводит к большим потерям оптического сигнала. Альтернативой может быть создание флуоресцентного лидара с несколькими дискретными каналами на основе интерференционных фильтров (ИФ). Коэффициент пропускания современных ИФ превосходит 90%, что позволяет детектировать флуоресцентный сигнал с высокой эффективностью. Создание подобного флуоресцентного лидара входит в число задач, решаемых в данной диссертационной работе.

Дым от сезонных лесных пожаров является одним из основных типов аэрозоля атмосфере. Интенсивные пожары в Северной Америке и Сибири, наблюдаемые в период с мая по сентябрь, приводят к появлению дымовых шлейфов над Европой (и в том числе над Москвой) в широком диапазоне высот, от пограничного слоя до тропопаузы. Присутствие в дыме значительного количества органических соединений углерода обуславливает его высокое сечение флуоресценции. Состав дыма, а, следовательно, и его флуоресцентные свойства, зависят от характеристик пожара и от условий переноса продуктов горения. Использование лидарной системы с несколькими дискретными флуоресцентными каналами позволит получать информацию о высотных вариациях состава дыма.

Во всех существующих исследованиях по флуоресцентным лидарам анализируется только полная мощность флуоресценции, в то время как ее поляризационные свойства игнорируются. В то же время, в лабораторных исследованиях измерение деполяризации флуоресценции широко используются для анализа свойств частиц [19]. Коэффициент деполяризации лидарного сигнала флуоресценции является дополнительным параметром, содержащим информацию о свойствах аэрозоля. Выполнение поляризационных измерений запланировано при выполнении диссертационной работы.

Водяной пар является ключевым компонентом атмосферы, и лидары рамановского рассеяния (рамановские лидары) с длиной волны лазерного излучения 355 нм, в настоящее время широко используются для его мониторинга [20, 21]. Однако, при наличии в тропосфере слоев дыма, лазерное излучение индуцирует широкополосный сигнал флуоресценции, спектр которого включает область рамановских линий водяного пара. [22]. Уменьшение ширины полосы пропускания фильтра в канале водяного пара не решает проблему, и флуоресценция дыма вносит погрешности даже при ширине полосы пропускания на уровне 0,3 нм [21]. Одним из возможных методов контроля и коррекции этих погрешностей является измерение коэффициента деполяризации рамановского сигнала водяного пара. Колебательные линии рамановского рассеяния характеризуются малым коэффициентом деполяризации (менее 2%), тогда как коэффициент деполяризации флуоресценции составляет десятки процентов. Таким образом, наличие флуоресценции должно увеличивать коэффициент деполяризации в канале водяного пара. Исследование этого подхода входит в число задач диссертационной работы.

Степень разработанности. Лазерно-индуцированная флуоресценция атмосферного аэрозоля широко использовалась в совместных лидарных исследованиях, проводимых в ЦФП ИОФ РАН и университете г. Лилля (Франция). К моменту начала выполнения диссертационной работы измерения

в этих научных группах, проводились на лидарах с одним каналом флуоресценции. Вместе с тем, ожидается, что использование нескольких дискретных каналов позволит разделять различные типы аэрозолей и количественно оценивать их содержание в смеси. Данный подход был реализован в процессе выполнения диссертационной работы.

Цель диссертационной работы. Целью диссертационной работы является создание многоканального флуоресцентного лидара на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники, для исследования атмосферного аэрозоля и разработка методов анализа флуоресцентно-рамановских лидарных измерений. Для достижения поставленной цели в диссертационной работе решались следующие задачи:

1. Разработка методов анализа состава аэрозольной смеси в атмосфере на основе поляризационных и флуоресцентных лидарных измерений.
2. Исследование коэффициента деполяризации флуоресценции для различных типов атмосферного аэрозоля.
3. Разработка метода коррекции погрешностей, вносимых флуоресценцией аэрозоля в измерения водяного пара рамановским лидаром.
4. Разработка пятиканального флуоресцентного лидара и определение спектров флуоресценции основных типов атмосферного аэрозоля.
5. Исследование высотной зависимости спектров флуоресценции дыма в тропосфере в периоды сезонных лесных пожаров.

Научная новизна результатов состоит в следующем:

1. Разработана лидарная система, позволяющая исследовать флуоресценцию атмосферного аэрозоля в пяти спектральных каналах в диапазоне высот от 0,3 до 12 км.
2. Исследованы спектры флуоресценции дыма в высотном диапазоне от пограничного слоя до верхней тропосферы. Обнаружено, что максимум спектра флуоресценции сдвигается с высотой от 513 нм к 560 нм.
3. Измерены коэффициенты деполяризации флуоресценции для различных типов аэрозоля и различных диапазонов высот.

4. Предложен подход к определению погрешностей, вносимых флуоресценцией аэрозоля в измерения водяного пара рамановским лидаром, на основе использования коэффициентов деполяризации рамановского и флуоресцентного лидарных сигналов.

5. Показано, что совместное использование поляризационных и флуоресцентных лидарных измерений позволяет разделить вклады различных типов аэрозоля в полный коэффициент обратного рассеяния аэрозольной смеси.

Теоретическая и практическая значимость работы:

1. Созданная лидарная система и разработанные алгоритмы анализа данных позволяют оценивать массовую концентрацию различных типов аэрозоля внутри пограничного слоя атмосферы. Получаемая информация может быть использована при оценке воздействия аэрозоля на окружающую среду и здоровье людей.

2. Предложенные методы коррекции погрешностей, обусловленных флуоресценцией аэрозоля, позволят улучшить точность рамановского мониторинга содержания парниковых газов, таких как водяной пар, метан и углекислый газ в атмосфере.

3. Продемонстрирована высокая чувствительность флуоресцентной методики, позволяющая детектировать концентрацию дыма на уровне 1 мкг/м^3 на высотах до 12 км. Это делает возможным использование флуоресцентных лидаров для контроля аэрозольных загрязнений в промышленных районах.

Основные положения, выносимы на защиту:

1. Измерение коэффициента деполяризации и эффективности флуоресценции позволяет разделить вклады основных типов аэрозоля, таких как пустынная пыль, растительная пыльца, дым и городской аэрозоль, в полный коэффициент обратного рассеяния аэрозольной смеси.

2. Для лазерного излучения с длиной волны 355 нм сечение флуоресценции городского аэрозоля уменьшается с увеличением длины

волны, в то время, как сечение флуоресценции дыма увеличивается и достигает максимума в диапазоне длин волн 513 – 560 нм.

3. Максимум спектра флуоресценции дыма сдвигается в красную область с высотой. В нижней и верхней тропосфере максимальная флуоресценция наблюдается в каналах с центральными длинами волн 513 нм и 560 нм соответственно.

4. Эффективность флуоресценции дыма увеличивается с высотой. Средние значения эффективности флуоресценции в нижней и верхней тропосфере на длине волны 513 нм составляют $3,5 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$ и $7,5 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$ соответственно.

5. Коэффициент деполяризации флуоресценции дыма в нижней и средней тропосфере варьируется в диапазоне 45% - 55%. Коэффициент деполяризации флуоресценции городского аэрозоля достигает 60%.

6. Измерение коэффициентов деполяризации сигнала рамановского рассеяния водяного пара и сигнала флуоресценции аэрозоля позволяет определять и корректировать погрешности, вносимые флуоресценцией аэрозоля в содержания водяного пара, измеренное рамановским лидаром.

Методология и методы исследования. Методология выполнения диссертационной работы основывалась на системном анализе, включающем моделирование, экспериментальные измерения и математическую обработку результатов. При решении задач диссертации использовались методы рамановской и флуоресцентной спектроскопии в комбинации с технологиями дистанционного лазерного зондирования атмосферы. При обработке результатов измерений использовались методы решения обратных задач и статистические методы анализа данных.

Достоверность результатов основана на корректном рассмотрении исследуемых физических процессов, корректном применении методов исследования, а также на взаимном соответствии результатов теоретических и экспериментальных исследований.

Апробация работы. Результаты, приводимые в данной диссертационной работе, докладывались на международных конференциях: XXX Международная конференция «ЛАЗЕРНО-ИНФОРМАЦИОННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ – 2022» 12 - 17 сентября 2022 г. – Новороссийск; GRASP Summer School, Lille, France, 23 May 2023; 4th European Lidar Conference, Cluj-Napoca, Romania, 13-15 September 2023; Шестая ежегодная Школа-конференция молодых учёных «Прохоровские недели», 24-26 октября 2023; Седьмая ежегодная Школа-конференция молодых учёных «Прохоровские недели», 22-24 октября 2024.

Список публикаций по теме диссертации.

1. Retrieval and analysis of the composition of an aerosol mixture through Mie–Raman–fluorescence lidar observations / I. Veselovskii, B. Barchunov, Q. Hu, P. Goloub, T. Podvin, M. Korenskii, G. Dubois, W. Boissiere, **N. Kasianik** // Atmos. Meas. Tech. – 2024. – Vol. 17. - № 13. – P. 4137–4152. (Q2 WoS)
2. Derivation of depolarization ratios of aerosol fluorescence and water vapor Raman backscatters from lidar measurements / I. Veselovskii, Q. Hu, P. Goloub, T. Podvin, W. Boissiere, M. Korenskiy, **N. Kasianik**, S. Khaykyn, R. Miri // Atmos. Meas. Tech. – 2024. – Vol. 17. - № 3. – P. 1023–1036. (Q2 WoS)
3. Multiwavelength fluorescence lidar observations of smoke plumes / I. Veselovskii, **N. Kasianik**, M. Korenskii, Q. Hu, P. Goloub, T. Podvin, D. Liu // Atmos. Meas. Tech. – 2023. – Vol. 16. - № 8. – P. 2055–2065. (Q2 WoS)
4. Fluorescence properties of long-range-transported smoke: insights from five-channel lidar observations over Moscow during the 2023 wildfire season / I. Veselovskii, M. Korenskiy, **N. Kasianik**, B. Barchunov, Q. Hu, P. Goloub, T. Podvin // Atmos. Chem. Phys. – 2025. – V. 25. - № 3. – P. 1603–1615. (Q1 WoS)

Личный вклад автора. Все результаты, приведенные в данной работе, были получены автором лично или при его непосредственном участии.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обосновывается важность и актуальность выбранной темы, определяются цель работы и задачами, решение которых необходимо для достижения цели. Поясняется новизна полученных результатов, формулируются защищаемые положения, приводятся данные о личном вкладе автора.

Первая глава является обзором научной литературы по теме диссертации.

Во **второй главе** рассматриваются методические вопросы, связанные с анализом измерений многоволнового рамановского и флуоресцентного лидаров. Рассматриваются методы вычисления коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля, а также коэффициентов деполяризации из результатов лидарных измерений. Приводятся выражения для расчета коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния и эффективности флуоресценции. Рассматриваются особенности конструкции рамановского лидара, содержащего дополнительный флуоресцентный канал.

Третья глава посвящена разработке алгоритма расчета вкладов основных типов аэрозоля, таких как дым (s), пустынная пыль (d) и городской аэрозоль (u) в полный коэффициент обратного рассеяния смеси на основе измерения коэффициента деполяризации и эффективности флуоресценции.

Для определения вкладов компонентов в смеси решается система уравнений:

$$\eta_s + \eta_d + \eta_u = 1 \quad (1)$$

$$G_F = \eta_s G_F^s + \eta_d G_F^d + \eta_u G_F^u \quad (2)$$

$$\delta' = \eta_s \delta'_s + \eta_d \delta'_d + \eta_u \delta'_u \quad (3)$$

где $\eta_{s,d,u}$ - относительные вклады различных типов аэрозоля в полный коэффициент обратного рассеяния β_{532} ;

G_F – измеряемая эффективность флуоресценции;

$G_F^{s,d,u}$ – эффективности флуоресценции рассматриваемых типов аэрозоля;

δ' – модифицированный коэффициент деполяризации $\delta' = \frac{\delta_{532}}{1+\delta_{532}}$;

$\delta'_{s,d,u}$ – модифицированные коэффициенты деполяризации рассматриваемых типов аэрозолей.

Диапазоны вариаций G_F и δ_{532} , используемые в данной работе, приведены в таблице 1. Выбор диапазонов основан на измерениях, проводимых в период с 2019 по 2024 г. на одноволновом флуоресцентном лидаре и на результатах, опубликованных в работах по классификации аэрозолей [8 – 10, 23, 24]. При решении системы (1)-(3) проводится серия испытаний Монте-Карло, чтобы получить набор решений и вычислить среднее значение. Дисперсия решений принимается как мера неопределенности метода. Число испытаний при анализе результатов измерений составляло 100, и дальнейшее увеличение их числа не оказывало существенного влияния на результат.

Таблица 1. Диапазоны значений эффективности флуоресценции и коэффициента деполяризации частиц для различных типов частиц.

Тип частиц	$G_F, 10^{-4}$	$\delta_{532}, \%$
Дым	2,0 – 6,0	2 – 10
Растительная пыльца	0,8 – 3,0	15 – 35
Городской аэрозоль	0,1 – 1,0	1 – 10
Пустынная пыль	0,1 – 0,5	20 – 35

Разработанный алгоритм использовался для анализа измерений, проводимых на лидаре с одним флуоресцентным каналом. Источником излучения лидара является Nd:YAG-лазер с генератором второй и третьей гармоник. Энергия излучения на длине волны 355 нм составляла 70 мДж, при частоте повторения импульсов 20 Гц. Апертура приемного телескопа составляла 400 мм. Лидар предназначен для одновременного измерения сигналов упругого и рамановского рассеяния и позволяет рассчитывать три

коэффициента обратного рассеяния (β_{355} , β_{532} , β_{1064}), два коэффициента экстинкции (α_{355} , α_{532}) и три коэффициента деполяризации (δ_{355} , δ_{532} , δ_{1064}). Для проведения измерений флуоресценции используется канал с центром полосы пропускания на длине волны 466 нм и шириной полосы пропускания 44 нм.

Результаты лидарных наблюдений 27-28 марта 2022 года представлены на рисунке 1. Основная доля аэрозоля находится ниже 2500 м. Увеличение коэффициента деполяризации частиц на высоте 2000 м до 30% в период 20:00-22:00 UTC указывает на наличие пыли, а высокие значения эффективности флуоресценции (до $2,5 \cdot 10^{-4}$) в период времени 00:00-05:00 UTC предполагает наличие дыма.

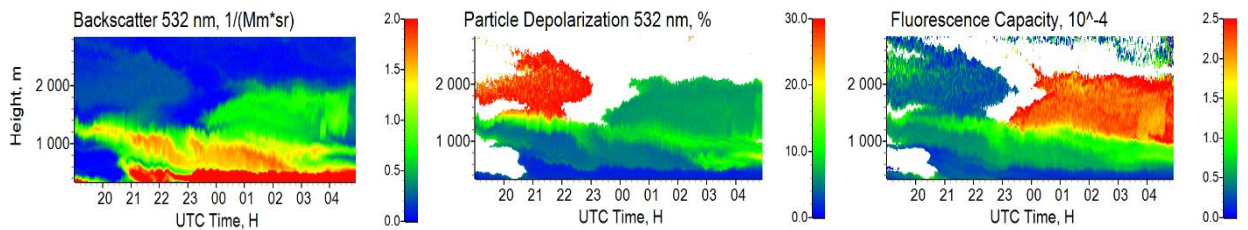


Рисунок 1 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного рассеяния β_{532} , коэффициента деполяризации частиц δ_{532} и эффективности флуоресценции G_F 27-28 марта 2022 г.

На рисунке 2 представлены пространственно-временные распределения относительных вкладов η_s , η_u и η_d полученные из решения системы уравнений (1)-(3). Из приведенных распределений, можно заключить, что дымовой шлейф содержит значительное количество городского аэрозоля, тогда как в области соответствующей пустынной пыли, не наблюдается присутствия других типов частиц.

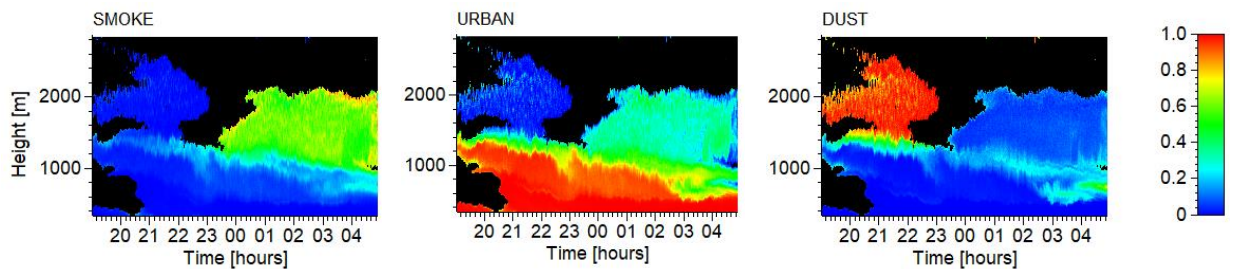


Рисунок 2 – Относительный вклад частиц дыма (η_s), городского аэрозоля (η_u) и пыли (η_d) в общий коэффициент обратного рассеяния β_{532} .

В четвертой главе исследуется деполаризация флуоресценции различных типов аэрозоля и анализируются погрешности определения содержания водяного пара, вносимые флуоресценцией в измерения рамановского лидара.

Для проведения поляризационных измерений, в приемный модуль лидара, описанного в третьей главе, были установлены два дополнительных поляризационные куба и два дополнительных детектора, позволяющие измерять коэффициент деполаризации флуоресценции на длине волны 466 нм и коэффициент деполаризации рамановского сигнала водяного пара на длине волны 408 нм.

Пространственно-временные распределения β_{532} и β_F в ночь с 26 на 27 июня 2023 г. показаны на рисунке 3. Слой дыма с β_F до $7,0 \cdot 10^{-4} \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$ наблюдается в диапазоне высот 4,0-10,0 км. Формирование льда в средней тропосфере приводит к увеличению δ_{532} с 3% на высоте 6 км до 20% на высоте 8 км (рисунок 3с). Сигналы флуоресценции сильно деполаризованы. Внутри пограничного слоя δ_F составляет около 60%, тогда как в слое дыма оно падает до 45%. Процессы гигроскопического роста и образования льда не оказывают заметного влияния на величину δ_F . В измерениях, проводимых в мае и июне 2023, δ_F дыма изменялся в диапазоне 45-55%.

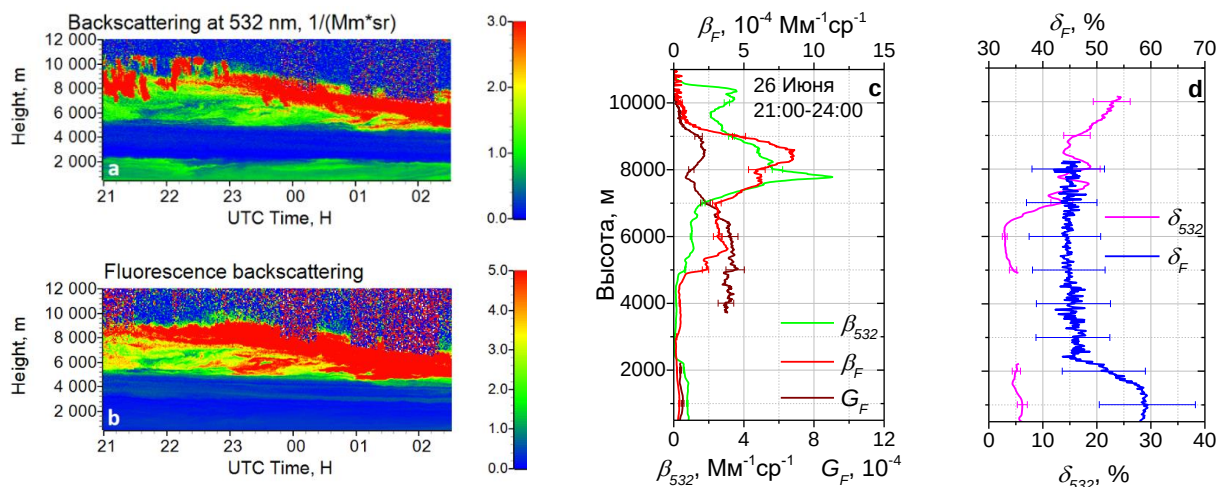


Рисунок 3 – Дымовой шлейф в ночь с 26 на 27 июня 2023 г. Пространственно-временные распределения коэффициента обратного рассеяния β_{532} (a) и флуоресценции β_F (в $10^{-4} \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$) (b). Вертикальные профили коэффициентов обратного рассеяния аэрозоля β_{532} и флуоресценции β_F и эффективность флуоресценции G_F (c). Коэффициенты деполаризации δ_{532} и δ_F (d).

Широкополосный сигнал флуоресценции аэрозоля попадает в рамановский канал измерения водяного пара, приводя к значительным погрешностям [21, 25]. Измерения показали, что в отсутствие флуоресценции, δ_W составляет менее 2%. Поскольку δ_F дыма составляет около 50%, то просачивание флуоресценции в канал водяного пара приводит к увеличению наблюдаемой деполяризации $\tilde{\delta}_W$ свыше 2%. Погрешность Δn_w вносимая флуоресценцией в измерение водяного пара:

$$\Delta n_W = \tilde{n}_W \frac{(1+\delta_F)(\tilde{\delta}_W-\delta_W)}{(1+\tilde{\delta}_W)(\delta_F-\delta_W)}, \quad (4)$$

где $\tilde{n}_W$ – измеренная концентрация водяного пара;

$\tilde{\delta}_W$ – измеренная деполяризация водяного пара.

Однако, выражение (4) можно использовать для коррекции только на малых высотах, где отношение сигнал/шум в кросс-поляризованном канале водяного пара достаточно велико. На больших высотах коррекция проводилась по сигналу флуоресценции в канале 466 нм.

$$\Delta n_W \sim \chi \beta_F \frac{1}{n_R}, \quad (5)$$

где β_F – коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния;

$n_R = \frac{N_R(z)}{N_R(z=0)}$ – относительное изменение концентрации молекул азота с

высотой, а параметр χ определяется из деполяризационных измерений на малых высотах.

Пример определения χ приведен на рисунке 4. На высоте 3,5 км наблюдается слой дыма, характеризующийся высоким β_F (до $5 \cdot 10^{-4} \text{ Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1}$) и малым содержанием пара (менее 0,2 г/кг). В середине слоя значение $\tilde{\delta}_W$ увеличивается от 2% до 12%. Параметр χ внутри этого слоя дыма, составляет около $2 \cdot 10^{-3} \text{ (г/кг)/(Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1})$. Полученная величина χ использовалась для оценки погрешности Δn_w на рисунке 4.

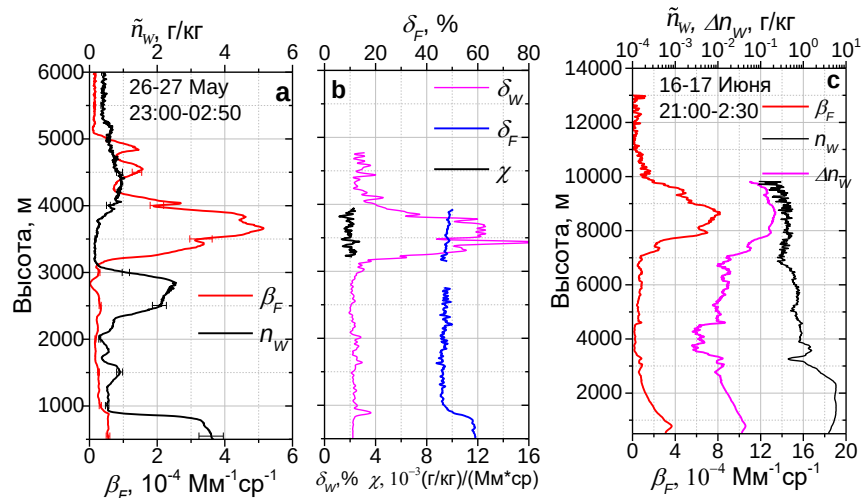


Рисунок 4 – Вертикальные профили коэффициента обратного рассеяния флуоресценции β_F и содержания водяного пара $\tilde{n}_W$ в ночь с 26 на 27 мая 2023 г (а). Коэффициенты деполаризации $\tilde{\delta}_W$ и δ_F вместе с параметром χ (б). Профили β_F , $\tilde{n}_W$ и Δn_W в ночь 16-17 июня 2023 (с).

В измерениях 16-17 июня 2023 флуоресценция дыма на высоте 8000 м. приводит к увеличению значений $\tilde{n}_W$. Оценка величины Δn_W показывает, что погрешность измерения водяного пара, вносимая флуоресценцией, достигает 50%. Таким образом, предложенный подход позволяет проводить коррекцию измерений водяного пара рамановским лидаром внутри дымовых шлейфов.

Пятая глава посвящена исследованию спектра флуоресценции аэрозоля с использованием лидара, содержащего пять дискретных флуоресцентных каналов. Источником излучения является Nd:YAG лазер с генератором третьей гармоники. Энергия в импульсе составляет 80 мДж на длине волны 355 нм при частоте повторения 20 Гц. Оптические сигналы из атмосферы собираются телескопом Ньютона с апертурой 400 мм.

Оптическая схема приемного модуля представлена на рисунке 5. Центральные длины волн и ширины полос пропускания интерференционных фильтров в каналах флуоресценции составляют: 438/29, 472/32, 513/29, 560/40 и 614/54 нм. Поскольку ширина полосы пропускания фильтров (D_λ) варьируется от канала к каналу, значения $\beta_{F\lambda}$ нормируются на D_λ . Таким образом, при анализе измерений используются: «спектральный коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния» $B_\lambda = \beta_{F\lambda} / D_\lambda$ и «спектральная эффективность флуоресценции» $G_\lambda = B_\lambda / \beta_{355}$.

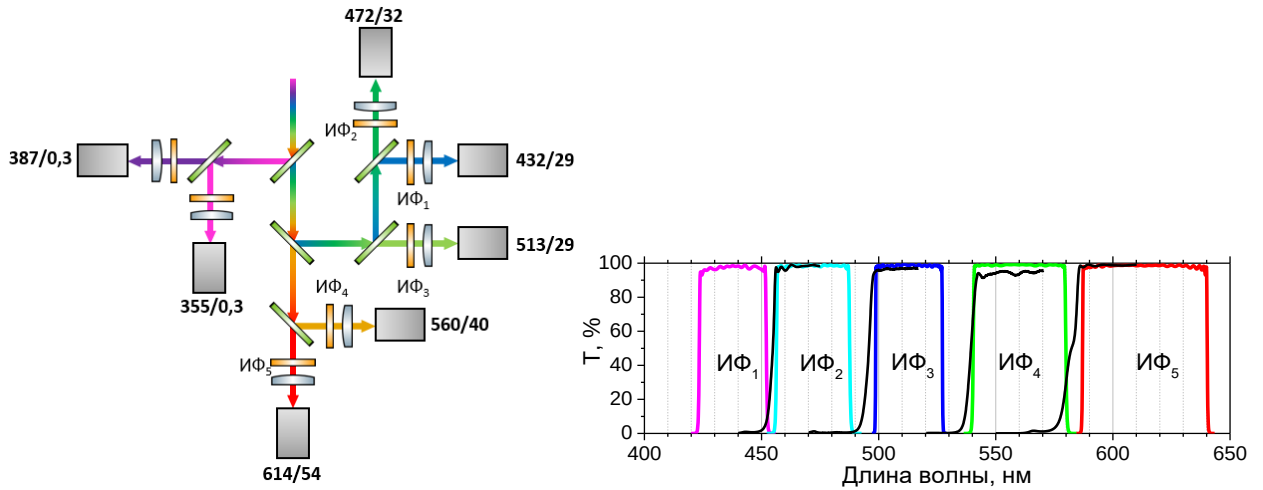


Рисунок 5 – Оптическая схема приёмного модуля лидара и спектры пропускания интерференционных фильтров ИФ₁-ИФ₅ в флуоресцентных каналах. Черные линии показывают пропускание дихроичных зеркал, используемых для разделения спектральных компонент.

Флуоресцентные исследования проводились во время лесных пожаров в Рязанской области осенью 2022 года, а также в периоды лесных пожаров в Северной Америке и Сибири (с мая по сентябрь) в 2023 и 2024 годах. В эти периоды над Москвой регулярно наблюдались слои дыма в широком диапазоне высот, от пограничного слоя до тропопаузы. Типичные профили флуоресценции дыма в тропосфере приведены на рисунке 6. Результаты измерений демонстрируют, что система способна детектировать слои дыма на высотах свыше 10 км, а минимальная детектируемая концентрация дыма оценивается на уровне 1 мкг/м³.

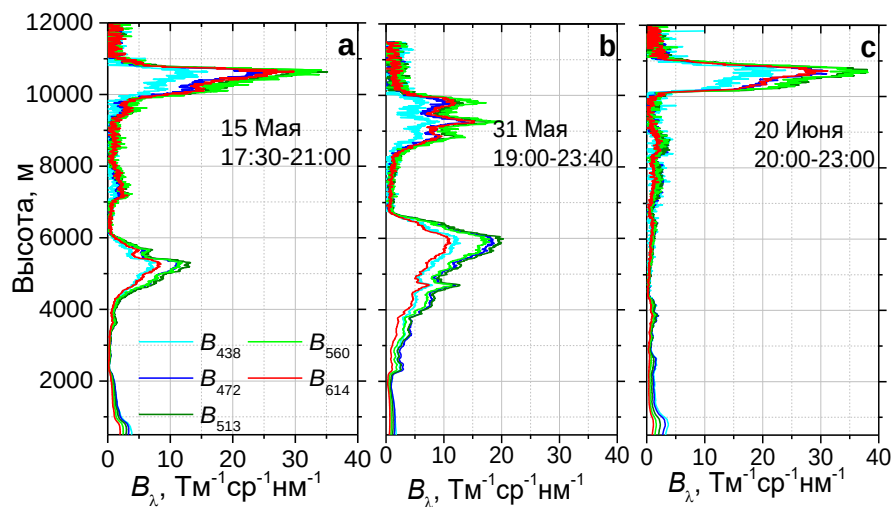


Рисунок 6 – Вертикальные профили обратного флуоресцентного рассеяния на длинах волн 438, 472, 513, 560 и 614 нм. Измерения проводились над Москвой 15 мая, 31 мая и 20 июня 2023 г.

При анализе измерений рассматривались три высотных интервала: пограничный слой (содержащий аэрозоль городского типа), дым в средней тропосфере (4-8 км) и в верхней тропосфере (8-12 км). Полученные результаты демонстрируют, что городской аэрозоль и дым имеют принципиально разные спектры флуоресценции. Сечение флуоресценции городского аэрозоля уменьшается с длиной волны, в то время как флуоресценция дыма максимальна в каналах 513 нм и 560 нм. Средние значения B_λ и G_λ , измеренные в период с мая по сентябрь 2023 г приведены на рисунке 7. Как следует из рисунка, флуоресцентные параметры дыма меняются с высотой. В частности, эффективность флуоресценции G_{513} увеличивается от 3,5 в средней тропосфере до 7,6 в верхней. Кроме того, максимум спектра флуоресценции сдвигается в красную область с 513 нм в средней тропосфере до 560 нм в верхней. Эти изменения могут свидетельствовать об увеличении доли органических соединений углерода в дымовых шлейфах с высотой.

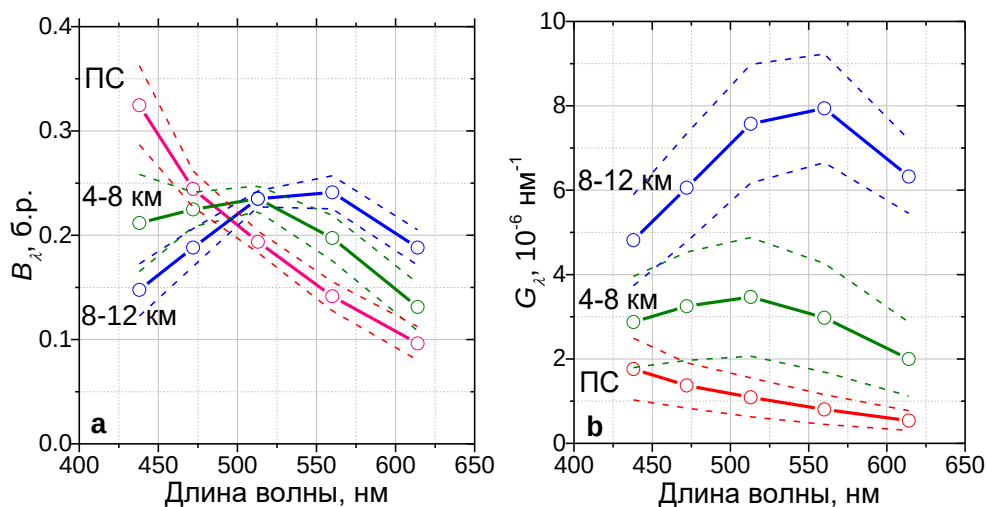


Рисунок 7 – Спектральная зависимость средних значений обратного флуоресцентного рассеяния B_λ (a) и эффективности флуоресценции G_λ (b) измеренных в мае-сентябре 2023 г над Москвой. Результаты приведены для пограничного слоя (ПС), средней тропосферы (4-8 км) и верхней тропосферы (8-12 км).

Если преобладающими компонентами аэрозольной смеси являются дым и городской аэрозоль, то наблюдаемый спектр флуоресценции можно представить, как линейную комбинацию спектров этих аэрозолей. В качестве

таких спектров можно выбрать усредненные величины из Рисунке 7а. Таким образом, для рассматриваемого лидара может быть записана система из пяти уравнений с двумя неизвестными (а и b), которая решается методом наименьших квадратов.

$$B_{\lambda} = B_{\lambda}^U + B_{\lambda}^S = aB_{\lambda}^{Uref} + bB_{\lambda}^{Sref}, \quad (6)$$

где B_{λ}^{Uref} и B_{λ}^{Sref} – спектры городского аэрозоля и дыма соответственно. Разработанный подход был использован для анализа эпизодов, когда дым из тропосферы опускался к пограничному слою и смешивался с ним. На рисунке 8 показаны пространственно-временные распределения параметров аэрозоля, такие как β_{355} , B_{513} , G_{513} и B_{560}/B_{438} , в ночь с 26 на 27 сентября 2023 года. Слой дыма располагается на верхней границе пограничного слоя (около 1200 м), и надежно идентифицируется по эффективности флуоресценции (рисунок 8с). Спектральные различия флуоресценции городского аэрозоля и дыма также позволяют разделять эти типы частиц из отношения B_{560}/B_{438} , как это следует из рисунка 8d.

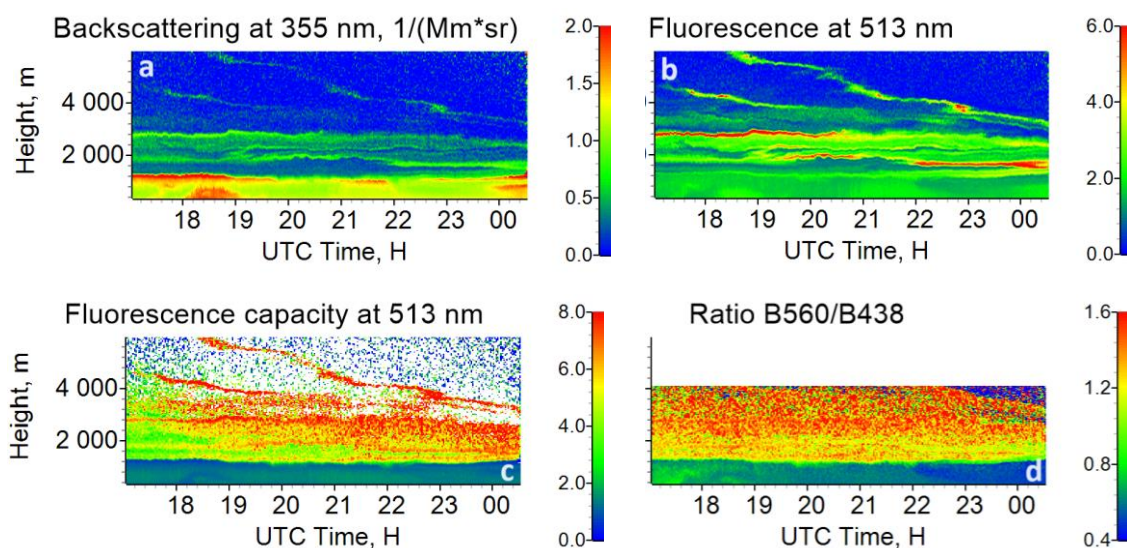


Рисунок 8 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (a), коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния B_{513} (в $\text{Тм}^{-1}\text{ср}^{-1}\text{нм}^{-1}$) (b), эффективности флуоресценции G_{513} (в 10^{-6} нм^{-1}) (c), и отношение B_{560}/B_{438} (d) в ночь с 26 на 27 сентября 2023 г.

Результаты количественного разделения вкладов городского аэрозоля и дыма в полную флуоресценцию, при решении уравнения (6) приведены на

Рисунке 9. Дым располагается, главным образом, над пограничным слоем. Вместе с тем, наблюдается небольшого количества дыма и внутри пограничного слоя. Массовую концентрацию дыма внутри пограничного слоя, M , можно оценить из его вклада в полный коэффициент обратного рассеяния, используя соответствующие факторы пересчета, C_V , (Ansmann et al., 2021).

$$M = C_V^\beta \frac{B_{355}^S}{G_{355}^S} \rho_S, \quad (7)$$

где ρ_S плотность дыма. Оценка массовой концентрации дыма по формуле (7) в диапазоне высот 500-1000 м и временном интервале 17:00-23:00 дает среднюю величину 0,8 мкг/м³.

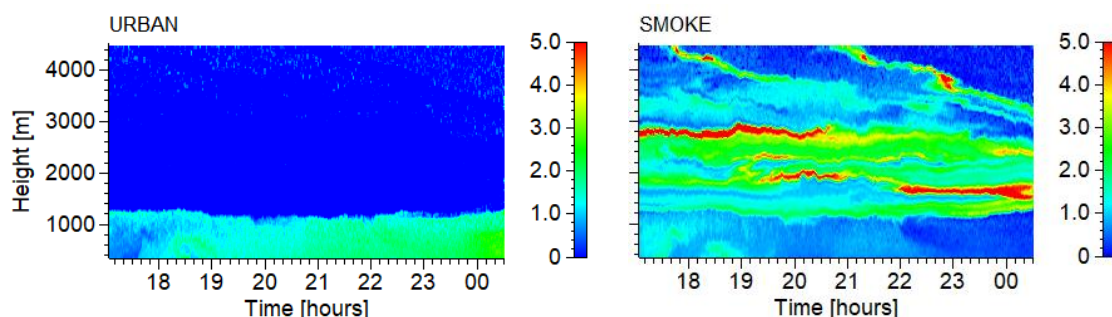


Рисунок 9 – Вклады городского аэрозоля и дыма в полный коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния B_{438} (в $\text{Tm}^{-1}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}$) 26-27 сентября 2023 г.

В заключении сформулированы основные результаты диссертационной работы:

1. Реализован метод разделения вкладов основных типов аэрозоля, таких как дым, пустынная пыль, городской аэрозоль и растительная пыльца в полный коэффициент обратного рассеяния смеси на основе измеренного коэффициента деполяризации и эффективности флуоресценции аэрозоля.

2. Разработан лидар, измеряющий флуоресцентный сигнал в пяти спектральных каналах с центральными длинами волн 438, 472, 513, 560 и 614 нм. Продемонстрировано, что флуоресцентный лидар позволяет детектировать слои дыма на высотах до 12 км при содержании дыма на уровне 1 мкг/м³.

3. Измерения спектров флуоресценции дыма над Москвой в период с 2022 по 2024 г., выявили высотную зависимость параметров флуоресценции. Показано, что эффективность флуоресценции в верхней тропосфере возрастает по отношению к нижней тропосфере. Соответствующие средние значения в канале 513 нм составляют $3,5 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$ в средней тропосфере и $7,6 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$ в верхней. Максимум спектра флуоресценции с высотой сдвигается в красную спектральную область. Для нижней тропосферы максимум флуоресценции наблюдается в канале 513 нм, а для верхней тропосферы – в канале 560 нм. Наблюдаемые высотные вариации могут быть связаны с увеличением содержания органических соединений углерода в верхней тропосфере.

4. Продемонстрировано, что городской аэрозоль и дым характеризуются принципиально разными спектрами флуоресценции. Сечение флуоресценции городского аэрозоля уменьшается с увеличением длины волны, в то время как, флуоресценция дыма достигает максимума в спектральных каналах 513 нм и 560 нм. На основе наблюдаемых спектральных различий разработан алгоритм оценки концентрации этих типов аэрозоля внутри пограничного слоя атмосферы.

5. Измерены коэффициенты деполяризации флуоресценции дыма и городского аэрозоля. В нижней тропосфере коэффициент деполяризации флуоресценции дыма варьируется в диапазоне 45-55%. Коэффициент деполяризации городского аэрозоля растет с увеличением влажности и может достигать 60%.

6. Проанализированы погрешности измерения водяного пара рамановским лидаром, обусловленные флуоресценцией дыма. Эти погрешности растут с увеличением высоты и в верхней тропосфере они могут превосходить 50%. Показано, что эти погрешности могут быть скорректированы при одновременном измерении коэффициента деполяризации рамановского сигнала водяного пара и коэффициента деполяризации флуоресценции аэрозоля.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Houghton, J.T. Third Assessment Report of Working Group 1 of the Intergovernmental Panel on Climate Change / J.T. Houghton // Cambridge University, Cambridge, England. – 2001.
2. Зуев, В.Е. Лазерное зондирование тропосферы и поверхности Земли / В. Е. Зуев // Новосибирск: Наука. – 1987. – 321с.
3. Захаров, В.М. Лидары и исследование климата. / В.М. Захаров, О.К. Костко, С.С. Хмелевцов // Ленинград: Гидрометиздат – 1990. – 180 с.
4. Lidar. Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere // ed. Weitkamp C. – Springer. – N.Y. – 2005. – 466 p.
5. Inversion with regularization for the retrieval of tropospheric aerosol parameters from multi-wavelength lidar sounding / I. Veselovskii et al. // Appl. Opt. – 2002. – V. 41. – № 18. – P. 3685-3699.
6. Inversion with regularization for the retrieval of tropospheric aerosol parameters from multi-wavelength lidar sounding / I. Veselovskii, A. Kolgotin, V. Griaznov [et al.] // Appl. Opt. – 2002. – V. 41. – № 18. – P. 3685-3699.
7. Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations / O. Dubovik, B. Holben, T.F. Eck [et al.] // J. Atmos. Sci. – 2002. – Vol. 59. - № 3. – P. 590–608.
8. Aerosol classification from airborne HSRL and comparisons with the CALIPSO vertical feature mask / S.P. Burton, R.A. Ferrare, M.A. Vaughan [et al.] // Atmos. Meas. Tech. – 2013. – Vol. 6. - № 5 – P. 1397–1412.
9. A neural network aerosol-typing algorithm based on lidar data / D. Nicolae, J. Vasilescu, C. Talianu [et al.] // Atmos. Chem. Phys. – 2018. – Vol. 18. - № 19. – P. 14511–14537.
10. An automatic observation-based aerosol typing method for EARLINET / N. Papagiannopoulos, L. Mona, A. Amodeo [et al.] // Atmos. Chem. Phys. – 2018. – Vol. 18. - № 21. – P. 15879–15901.

11. Single-particle laser-induced-fluorescence spectra of biological and other organic-carbon aerosols in the atmosphere: Measurements at New Haven, Connecticut, and Las Cruces, New Mexico / Y.-L. Pan, R.G. Pinnick, S.C. Hill [et al.] // *J. Geophys. Res.* – 2007. – Vol. 112. - № D24S19.
12. Real-time sensing of bioaerosols: Review and current perspectives / J.A. Huffman, A.E. Perring, N.J. Savage [et al.] // *Aerosol Science and Technology.* – 2020. – Vol. 54. - № 5. – P. 465–495.
13. Remote Detection of the Fluorescence Spectrum of Natural Pollens Floating in the Atmosphere Using a Laser-Induced-Fluorescence Spectrum (LIFS) Lidar / Y. Saito, K. Ichihara, K. Morishita [et al.] // *Remote Sensing.* – 2018. – Vol. 10. - № 10. – P. 1533.
14. Combining Mie–Raman and fluorescence observations: a step forward in aerosol classification with lidar technology / I. Veselovskii, Q. Hu, P. Goloub [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2022. – Vol. 15. - № 16. – P. 4881–4900.
15. Combined use of Mie–Raman and fluorescence lidar observations for improving aerosol characterization: feasibility experiment / I. Veselovskii et al. // *Atmos. Meas. Tech.* – 2020. – Vol. 13. - № 12. – P. 6691–6701.
16. Classification and source analysis of low-altitude aerosols in Beijing using fluorescence–Mie polarization lidar / Y. Zhang, Z. Sun, S. Chen [et al.] // *Optics Communications.* – 2021. – Vol. 479. – P. 126417.
17. Fluorescence from atmospheric aerosols observed with a multi-channel lidar spectrometer / N. Sugimoto, Z. Huang, T. Nishizawa [et al.] // *Opt. Express.* – 2012. – Vol. 20. - № 19. – P. 20800.
18. Reichardt, J. Cloud and Aerosol Spectroscopy with Raman Lidar / J. Reichardt // *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology.* – 2014. – Vol. 31. - № 9. – P. 1946–1963.
19. Lakowicz, J.R. Principles of Fluorescence Spectroscopy / ed. J. R. Lakowicz // Boston, MA: Springer US, 2006.

20. Whiteman, D.N. Examination of the traditional Raman lidar technique. I. Evaluating the temperature dependent lidar equations / D.N. Whiteman // *Appl. Optics*. – 2003. – Vol. 42. - № 15. – P. 2571–2592.

21. The impact of aerosol fluorescence on long-term water vapor monitoring by Raman lidar and evaluation of a potential correction method / F. Chouza, T. Leblanc, M. Brewer [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2022. – Vol. 15. - № 14. – P. 4241–4256.

22. Immler, F. Is fluorescence of biogenic aerosols an issue for Raman lidar measurements? / F. Immler, O. Schrems // *SPIE Remote Sensing*. – 2005. – Vol. 59840H.

23. Aerosol classification using airborne High Spectral Resolution Lidar measurements – methodology and examples / S.P. Burton, R.A. Ferrare, C.A. Hostetler [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2012. – Vol. 5. - № 1. – P. 73–98.

24. Aerosol type classification analysis using EARLINET multiwavelength and depolarization lidar observations / M. Mylonaki, E. Giannakaki, A. Papayannis [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2021. – Vol. 21. - № 3. – P. 2211–2227.

25. Reichardt, J. Spectrometric fluorescence and Raman lidar: Absolute calibration of aerosol fluorescence spectra and fluorescence correction of humidity measurements / J. Reichardt, O. Behrendt, F. Lauermann // *Atmos. Meas. Tech.* – 2023. – Vol. 16. - № 1. – P. 1-13.