

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Федеральный исследовательский центр
«Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук»

На правах рукописи



Касьяник Никита Иванович

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

1.3.19. Лазерная физика

Диссертация на соискание ученой степени кандидата
физико-математических наук

Научный руководитель:
к.т.н., М. Ю. Коренский

Москва – 2025

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ.....	5
1 Обзор литературы. Измерение параметров атмосферного аэрозоля методами дистанционного зондирования.....	14
2 Определение параметров частиц атмосферного аэрозоля на основе измерений рамановских и флуоресцентных лидаров.....	27
2.1 Вычисление коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля из измерений рамановского лидара.....	27
2.2 Выбор спектрального диапазона вращательного рамановского рассеяния для измерения коэффициента обратного рассеяния и экстинкции атмосферного аэрозоля.....	31
2.3 Вычисление коэффициента деполяризации в лидарных измерениях.	36
2.4 Анализ измерений флуоресцентного лидара.....	38
2.5 Проведение измерений с использованием одноканального флуоресцентного лидара	40
3 Определение типов аэрозоля и их содержания в смеси на основе измерений рамановского и флуоресцентного лидаров	44
3.1 Разработка алгоритма для определения вкладов компонент аэрозольной смеси в полный коэффициент обратного рассеяния.....	44
3.2 Использование разработанного алгоритма для определения типа аэрозоля и анализа состава смеси.....	47
3.2.1 Измерения 27-28 марта 2022 г. Присутствуют три типа аэрозоля... 48	48
3.2.2 Измерения 1-2 октября 2023 г. Различные типы аэрозолей проявляются в виде слоев.....	53
3.2.3 Измерения во время тепловой волны 16-23 июля 2022 года.....	58
3.2.4 Оценка объемной и массовой концентрации атмосферного аэрозоля	
66	
3.3 Выводы к разделу 3	68

4 Исследование коэффициента деполяризации флуоресценции атмосферного аэрозоля и его использование для коррекции измерений водяного пара рамановским лидаром	69
4.1 Анализ влияния флуоресценции аэрозоля на измерения водяного пара рамановским лидаром.....	69
4.2 Измерение коэффициента деполяризации флуоресценции атмосферного аэрозоля.....	73
4.3 Оценка погрешности зондирования водяного пара рамановским лидаром, обусловленной флуоресценцией аэрозоля, на основе измерений ...	79
4.4 Выводы к разделу 4	84
5 Исследование аэрозоля с помощью многоволнового флуоресцентного лидара	86
5.1 Описание конструкции лидара.....	86
5.2 Исследование спектра флуоресценции дымовых шлейфов во время лесных пожаров в Рязанской области в 2022 году	92
5.2.1 27-28 августа 2022	93
5.2.2 17 августа 2022.....	98
5.3 Анализ влияния гигроскопического роста аэрозоля на сигнал флуоресценции	99
5.4 Исследование спектра флуоресценции аэрозоля в пограничном слое и в дымовых шлейфах в период интенсивных лесных пожаров в Северной Америке и Сибири.....	102
5.5 Вариации флуоресцентных характеристик городского аэрозоля и дыма в период с мая по сентябрь 2023 г. над Москвой.....	107
5.6 Вычисление вклада дыма и городского аэрозоля в полный коэффициент флуоресцентного рассеяния.....	114
5.6.1 Подход к разделению	114
5.6.2 Дым на вершине пограничного слоя 25-26 сентября 2023 года.....	115

5.6.3 Смесь дыма и городского аэрозоля внутри пограничного слоя 26-27 сентября 2023 г	120
5.7 Выводы к разделу 5	124
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	125
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	128

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность темы исследования. Аэрозолями называют взвешенные в атмосфере частицы в жидкой или твердой фазе, размеры которых варьируются от единиц нанометров до сотен микрон. Данные частицы оказывают значительное влияние на радиационный баланс Земли посредством двух основных механизмов: прямого воздействия, связанного с поглощением и рассеянием электромагнитного излучения, и косвенного воздействия, обусловленного модификацией оптических свойств облачных систем [1]. В связи с этим, атмосферный аэрозоль рассматривается как важнейший климатообразующий фактор. Для построения реалистичных моделей радиационного переноса требуется детальная информация о вертикальном распределении микрофизических характеристик аэрозоля в глобальном масштабе [2]. Наиболее перспективным методом получения таких данных является лазерное зондирование атмосферы. Взаимодействие лазерного излучения с атмосферой сопровождается многочисленными физическими процессами, включающими упругое рассеяние, рамановское рассеяние и флуоресценцию, что позволяет получать информацию о её аэрозольном составе. Это обуславливает актуальность разработки рамановских и флуоресцентных лидаров для комплексного мониторинга атмосферных параметров в прикладной метеорологии и экологическом контроле.

Из лидарных измерений может быть получена информация о высотном распределении параметров частиц атмосферного аэрозоля. Лидары способны обеспечить измерение вертикальных распределений параметров атмосферы, таких как содержание аэрозоля и концентрация малых газовых составляющих, температура, скорость и направление ветра [3–6]. Широкое применение лидарных технологий в исследованиях атмосферного аэрозоля объясняется высокой эффективностью взаимодействия оптического излучения с малыми частицами [7]. Мощность принимаемого сигнала описывается лидарным уравнением:

$$P(z) = O(z)C \frac{\beta(z)}{z^2} \exp\{-2 \int_0^z \alpha(z') dz'\}, \quad (1)$$

где $P(z)$ – мощность рассеянного сигнала с дистанции z ;

$O(z)$ - геометрический фактор перекрытия, обусловленный конфигурацией приемного и передающего каналов системы;

C – аппаратная константа, содержащая энергию лазера, апертуру приёмного телескопа, эффективность регистрирующей системы;

$\alpha(z)$, $\beta(z)$ – коэффициенты ослабления (экстинкции) и обратного рассеяния аэрозоля.

Лидарное уравнение (1) содержит два неизвестных: коэффициент обратного рассеяния аэрозоля β и коэффициент экстинкции аэрозоля α . При его решении обычно предполагается, что отношение $S_\lambda = \frac{\alpha_\lambda}{\beta_\lambda}$, так называемое лидарное отношение, является постоянным и не зависит от высоты. Различные типы аэрозоля характеризуются различными лидарными отношениями. Поэтому, на основе метеорологических данных, во многих случаях это отношение может выбрано априори. Уравнение (1) может быть записано в дифференциальной форме, как это делается в методе Клетта-Ферналда [8]. В качестве граничного условия обычно предполагается, что на некоторой опорной высоте аэрозоль отсутствует и рассеяние является чисто молекулярным.

При измерении рамановского рассеяния азота или кислорода (высотное распределение которых известно) появляется возможность записать дополнительное уравнение для соответствующего лидарного сигнала и величины β и α могут быть определены независимо без предположений о величине лидарного отношения [2]. Подобные лидары называются рамановскими и они будут подробно рассмотрены в главе 2 диссертации.

Коэффициент деполаризации отражает соотношение интенсивностей обратного рассеяния света в ортогональной (β_\perp) и параллельной (β_\parallel) плоскостях поляризации [9]. Его величина зависит от формы аэрозольных

частиц: отклонение от сферической структуры приводит к увеличению этого параметра. Благодаря этой особенности, метод позволяет различать сферические (например, капли воды) и нерегулярные частицы (кристаллы, пыль). Так, для городского аэрозоля типичны значения ниже 10%, тогда как для пустынной пыли они часто превышают 30%. Изучение поляризационных свойств рассеянного света служит важным инструментом для классификации аэрозолей и анализа их микроструктуры.

Проведение лидарных измерений на нескольких длинах волн позволяет определять интенсивные (не зависящие от концентрации) параметры аэрозоля [7], такие как:

- Лидарное отношение $S_\lambda = \frac{\alpha_\lambda}{\beta_\lambda}$ на нескольких длинах волн.
- Параметр Ангстрема для коэффициентов экстинкции аэрозоля

$$A_{\lambda_1/\lambda_2}^\alpha = \frac{\ln\left(\frac{\alpha_{\lambda_1}}{\alpha_{\lambda_2}}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)}$$
- Параметр Ангстрема для коэффициентов обратного рассеяния

$$A_{\lambda_1/\lambda_2}^\beta = \frac{\ln\left(\frac{\beta_{\lambda_1}}{\beta_{\lambda_2}}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)}$$
- Коэффициент деполяризации излучения $\delta_\lambda = \frac{\beta_{\lambda\perp}}{\beta_{\lambda\parallel}}$ на нескольких длинах волн.
- Цветовой индекс $I = \frac{\delta_{\lambda_2}}{\delta_{\lambda_1}}$

Характерные значения некоторых из этих параметров для основных типов аэрозоля приведены в таблице 1 [10] и на рисунке 1 [11]. Используя измеренные значения данных параметров можно идентифицировать тип аэрозоля. Из приведенных рисунков видно, что использование коэффициента деполяризации и лидарного отношения позволяет разделить дым, пыль, морской аэрозоль и другие типы аэрозолей. Вместе с тем, параметры городского аэрозоля и дыма в значительной перекрываются и их разделить оказывается затруднительным.

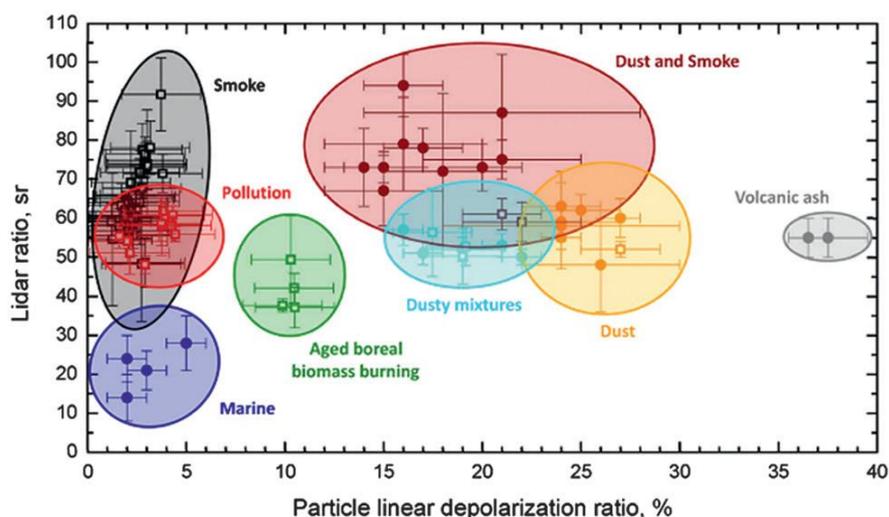


Рисунок 1 – Пример классификации аэрозолей на основе измерений лидарного отношения и коэффициента деполяризации излучения при длине волны 355 нм. [11]

Таблица 1 Интенсивные параметры частиц из публикаций Burton et al. (2013) [12], Nicolae et al., (2018) [13], Paragiannopoulos et al., (2018) [14] и Veselovskii et al., (2022) [10] для городского аэрозоля, дыма и пыли.

	Burton et al., 2013	Nicolae et al., 2018	Paragiannopoulos et al., 2018	Veselovskii et al., 2022
Городской аэрозоль				
S_{355} , ср	-	43 – 54	50 ± 8	42 – 60
S_{532} , ср	43 – 81	52 – 53	41 ± 6	55 – 70
$A_{355/532}^{\alpha}$	-	1,2 – 1,3	$1,7 \pm 0,6$	1,1 – 2,0
$A_{355/532}^{\beta}$	-	1,0 – 1,6	$1,3 \pm 0,3$	1,5 – 2,0
$A_{532/1064}^{\beta}$	0,49 – 1,3	0,54 – 1,0	$1,0 \pm 0,3$	1,1 – 1,2
$I_{1064/532}$	1,1 – 3,1	-	-	-
Дым				
S_{355} , ср	-	56 – 72	81 ± 16	40 – 50
S_{532} , ср	46 – 87	81 – 92	78 ± 11	70 – 80
$A_{355/532}^{\alpha}$	-	1,1 – 1,3	$1,3 \pm 0,3$	0,8 – 1,0
$A_{355/532}^{\beta}$	-	1,4 – 2,1	$1,2 \pm 0,3$	2,0 – 2,4
$A_{532/1064}^{\beta}$	0,48 – 1,6	0,7 – 0,8	$1,3 \pm 0,1$	1,2
$I_{1064/532}$	0,2 – 1,2	-	-	-
Пыль				
S_{355} , ср	-	43 – 46	58 ± 12	57
S_{532} , ср	41 – 57	44 – 49	55 ± 7	52
$A_{355/532}^{\alpha}$	-	0,88 – 0,92	$0,3 \pm 0,4$	0
$A_{355/532}^{\beta}$	-	0,91 – 0,97	$0,3 \pm 0,2$	$\approx 0,3$
$A_{532/1064}^{\beta}$	0,49 – 0,68	0,16 – 0,22	$0,4 \pm 0,1$	-
$I_{1064/532}$	0,8 – 1,1	-	-	-

Таким образом, требуются методики, обеспечивающие дополнительную независимую информацию о свойствах аэрозоля. Такая информация может быть получена при использовании спектроскопии лазерно-индуцированной флуоресценции.

Степень разработанности. Активное использование флуоресценции в лидарных измерениях для анализа свойств аэрозоля началось с 2020 года в совместных исследованиях проводимых в ЦФП ИОФ РАН и университете Лилля. К моменту начала выполнения диссертационной работы измерения в этих научных группах, проводились на лидарах с одним каналом флуоресценции. Вместе с тем, ожидалось, что проведение измерений с использованием нескольких дискретных каналов позволит эффективно разделять различные типы аэрозолей и количественно оценивать их содержание. Данный подход был реализован в процессе выполнения диссертационной работы.

Цель диссертационной работы. Целью диссертационной работы является создание многоканального флуоресцентного лидара 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 измерения водяного пара рамановским лидаром, обусловленных флуоресценцией аэрозоля.
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. Создан лидар, измеряющий сигнал флуоресценции в пяти дискретных каналах и позволяющий оценивать спектры флуоресценции различных атмосферных аэрозолей.
2. Исследованы спектры флуоресценции дыма в высотном диапазоне от пограничного слоя до верхней тропосферы и обнаружен сдвиг спектра в красную область с высотой.
3. Впервые измерены коэффициенты деполяризации флуоресценции для различных типов аэрозоля и различных диапазонов высот.
4. Впервые предложен подход к коррекции погрешностей, вносимых флуоресценцией аэрозоля в измерение водяного пара рамановским лидаром, на основе поляризационных измерений.
5. Продемонстрирована возможность разделение вкладов различных типов аэрозоля в полный коэффициент обратного рассеяния аэрозольной смеси при совместном использовании поляризационных и флуоресцентных лидарных измерений.

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 содержание 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, обоснованных упрощениях в моделировании, корректной методике анализа, а также на согласованности данных экспериментов и теоретических расчетов.

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. <https://doi.org/10.5194/amt-17-4137-2024> (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. <https://doi.org/10.5194/amt-17-1023-2024> (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. <https://doi.org/10.5194/amt-16-2055-2023> (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. <https://doi.org/10.5194/acp-25-1603-2025> (Q1 WoS)

Личный вклад автора состоит в участии в постановке задач, планировании экспериментов и анализе полученных результатов. Все результаты, приведенные в данной работе, были получены автором лично или при его непосредственном участии.

1 Обзор литературы. Измерение параметров атмосферного аэрозоля методами дистанционного зондирования

Физические свойства аэрозоля могут изменяться в процессе их переноса в атмосфере в следствие химических реакций [7]. Таким образом, свойства аэрозоля могут варьироваться в широком диапазоне. Для упрощения анализа результатов измерений, как правило, рассматриваются базовые типы аэрозолей. Соответствующие типы классифицируются по источникам происхождения. Обычно, выделяют пустынный, морской аэрозоль, продукты горения биомассы (дым), городской аэрозоль [15].

Для описания свойств аэрозоля используют числовое распределение по размерам $\frac{dN(r)}{dr}$, характеризующее количество частиц в интервале радиусов $[r, r+dr]$ [2]. Из этого распределения определяются интегральные параметры аэрозоля, такие как:

- Числовая концентрация $N = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \frac{dN(r)}{dr} dr$
- Поверхностная концентрация $S = 4\pi \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \frac{dN(r)}{dr} r^2 dr$
- Объемная концентрация $V = \frac{4\pi}{3} \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \frac{dN(r)}{dr} r^3 dr$

При описании размеров частиц используются средний $r_{\text{mean}} = \frac{1}{N_0} \times \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} r \cdot \frac{dN(r)}{dr} dr$ и эффективный радиус $r_{\text{eff}} = \frac{\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \frac{dN(r)}{dr} r^3 dr}{\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \frac{dN(r)}{dr} r^2 dr} = \frac{3V}{S}$

В распределении атмосферного аэрозоля по размерам, как правило, выделяют три фракции:

- частицы Айткена, имеющие размеры менее десятка нанометров.
- тонкодисперсная фракция
- грубодисперсная фракция.

В данной работе анализ частиц Айткена не проводится из-за их чрезвычайно малых размеров, которые выходят за пределы чувствительности оптических методов.

Дистанционное зондирование позволяет изучать атмосферный аэрозоль с помощью наземных, воздушных и спутниковых систем. Спутниковые технологии, в частности, дают возможность глобального охвата при анализе аэрозольных свойств [16–19]. Среди наиболее распространённых инструментов – спектрорадиометры (MODIS, MISR, ATSR), измеряющие солнечное излучение, рассеяное поверхностью Земли, в различных спектральных диапазонах. Некоторые системы, такие как POLDER, дополнительно поддерживают поляриметрические измерения [20, 21]. Однако, несмотря на способность спутников определять оптическую толщину аэрозоля [22], их точность остаётся ограниченной для детального восстановления микрофизических параметров частиц. Более точные данные в локальных масштабах могут быть получены с помощью наземных измерительных комплексов [7].

Международная сеть AERONET (Aerosol Robotic Network) [23], насчитывающая свыше 1000 станций по всему миру, является одним из ключевых источников наземных измерений аэрозольных характеристик. В основе измерений лежат автоматические солнечные фотометры CIMEL, выполняющие спектральные измерения оптической толщины аэрозоля (AOD) в семи спектральных каналах от 340 до 1020 нм. Помимо прямых измерений солнечной радиации, приборы фиксируют пространственное распределение яркости неба. Специально разработанные алгоритмы обработки [24] позволяют на основе этих данных восстанавливать важнейшие параметры аэрозоля, включая размерное распределение частиц и спектральные зависимости показателя преломления.

Применение лидарных систем с несколькими длинами волн дает возможность оценивать интегральные характеристики аэрозолей:

концентрационные параметры (числовая, поверхностная и объемная концентрации), эффективный размер частиц и комплексный показатель преломления. Решение соответствующей обратной задачи выполняется поэтапно: сначала определяются спектральные коэффициенты обратного рассеяния (β) и ослабления (α), которые затем преобразуются в микрофизические параметры. Однако точность таких подходов ограничена вследствие малого количества входных данных. В наиболее распространенных лидарных системах, на основе Nd:YAG лазеров с генератором третьей гармоники, измеряются лишь пять оптических коэффициентов (β_{355} , β_{532} , β_{1064} , α_{355} , α_{532} , так называемый набор $3\beta+2\alpha$), что делает задачу недоопределенной [2].

Методы решения обратных задач многоволнового лидарного зондирования анализировались в работе Зуева и Нааца [25]. Особую актуальность эти вопросы приобрели с появлением рамановских лидарных систем, способных одновременно измерять коэффициенты экстинкции и обратного рассеяния на различных длинах волн. Как продемонстрировано в [26], обращение измерений многоволнового рамановского лидара с использованием метода регуляризации по Тихонова [27] определять микрофизические параметры аэрозоля. В частности, неопределенность оценки величины объемной концентрации и эффективного радиуса частиц, как правило, не превосходит 20%.

Последующие исследования [2, 28, 29] расширили возможности метода, показав, что даже при ограниченном наборе данных, характерном для Nd:YAG-лидаров, можно извлекать существенную информацию о свойствах аэрозолей. Точность таких измерений составляет:

- $\pm 20\%$ для объемной концентрации и эффективного радиуса
- $\pm 0,05$ для действительной части показателя преломления (m_r)
- менее 50% погрешности для мнимой части (m_i) при значениях $> 0,005$

Подобные технологии легли в основу общеевропейской лидарной сети EARLINET [30], обеспечивающей мониторинг аэрозольных характеристик.

Альтернативный подход к анализу воздействия аэрозоля на радиационный поток основан на классификации аэрозоля, предполагая, что свойства каждого из основных типов аэрозоля известны. При этом, тип аэрозоля может быть определен с использованием меньшего количества исходных данных. Например, в публикациях Burton et al. [31, 32] классификация проведена на основе четырех интенсивных параметров частиц: S_{532} , $A_{532/1064}^{\beta}$, δ_{532} и δ_{1064} . С помощью этих входных интенсивных параметров различаются основные типы частиц, такие как дым, городской аэрозоль и пыль.

Для автоматизации классификации аэрозолей в рамках европейской лидарной сети (EARLINET) были разработаны алгоритмы классификации, использующие $3\beta+2\alpha+1\delta$, наборы данных [13, 14]. Следует также отметить алгоритм, основанный на анализе классификации источников (SCAN) [32]. Все эти алгоритмы продемонстрировали свою способность классифицировать аэрозоли. В частности, NATALI [13] способен идентифицировать до 14 аэрозольных смесей.

Тем не менее, вышеупомянутые алгоритмы сталкиваются с фундаментальным ограничением, а именно с тем, что интенсивные параметры частиц, даже для чистых аэрозолей (происходящих из одного источника), демонстрируют сильные вариации. Например, лидарное отношение дыма S_{355} в публикации [13] варьируется в диапазоне 38–70 ср, а в работе [33] наблюдались значения S_{355} для дыма даже менее 25 ср. Сильные вариации S_{355} и S_{532} дыма обсуждаются также в публикации [34]. Такая неопределенность параметров аэрозольной модели усложняет классификацию. В частности, проблематичным оказывается разделение дыма и городского аэрозоля, поскольку их параметры близки. Это хорошо видно на рисунке 1, где области вариаций параметров для этих типов аэрозоля перекрываются.

Применение флуоресцентного анализа для детекции органических аэрозолей получило широкое распространение в локальном мониторинге органических веществ в атмосфере [35-38]. Современные разработки объединяют этот метод с лидарными технологиями, что позволяет проводить дистанционные измерения [39-41]. Различные атмосферные частицы (биологические аэрозоли, продукты сгорания биомассы, сульфатные соединения и минеральная пыль) проявляют флуоресцентные свойства при облучении ультрафиолетом. Хотя флуоресцентный отклик начинается с длины волны возбуждающего лазера (обычно $\lambda=355$ нм), его максимум наблюдается в видимой области спектра (400-650 нм) [36]. Характерные спектральные особенности флуоресценции служат надежным критерием для классификации аэрозолей. Важным преимуществом метода является его работоспособность в облачной среде, поскольку водяные капли не дают флуоресцентного сигнала, что открывает возможности для изучения аэрозольно-облачного взаимодействия.

Развитие флуоресцентных лидаров связано с внедрением многоканальных детекторных систем. Современные многоанодные фотоумножители в комбинации со спектрометрами обеспечивают одновременную регистрацию сигнала в 32 спектральных каналах [40, 42-45]. Такой подход значительно повышает точность идентификации аэрозолей по их спектральным характеристикам. Однако решеточные спектрометры с волоконным вводом уступают по светопропусканию системам с интерференционными фильтрами. Современные фильтры демонстрируют коэффициент пропускания более 90% при исключительно высоком уровне подавления внеполосного излучения (порядка 10^5). Кроме того, использование флуоресцентных каналов в стандартных рамановских лидарах технически проще реализуется именно с использованием интерференционных фильтров.

Одним из преимуществ флуоресцентной методики является также возможность мониторинга аэрозоля внутри облаков. Наиболее эффективно

флуоресцентные измерения могут быть использованы в перистых облаках, которые характеризуются малой оптической толщиной. Впервые такие измерения были проведены в работе [10]. Вместе с тем, интерпретация флуоресцентных измерений в облаках оказывается достаточно сложной. Флуоресцирующий аэрозоль может находиться внутри капель в растворенном или твердом состоянии, что приводит к модификации фазовой функции флуоресцентного рассеяния. Как следует из работы [46] этот эффект может увеличивать вдвое принимаемый сигнал флуоресценции. Кроме того, для аэрозоля внутри капель может иметь место линзовый эффект, который также приводит к увеличению сигнала флуоресценции. Эффекты многократного рассеяния в капельных облаках также могут приводить к дополнительным погрешностям. Таким образом, достоверные флуоресцентные измерения могут проводиться лишь у нижней границы облака.

Для обеспечения максимальной мощности принимаемого флуоресцентного сигнала, желательно проводить регистрацию сигнала в широком спектральном диапазоне. Это, однако, увеличивает фоновую засветку и усложняет анализ данных, поскольку необходимо учитывать изменение аэрозольного и молекулярного пропускания внутри используемого спектрального диапазона. Кроме того, при использовании широкополосных фильтров теряется информация, связанная с вариацией спектров флуоресценции для различных типов аэрозоля. При выборе спектрального диапазона регистрации, следует также избегать интервалов, соответствующих линиям рамановского рассеяния на молекулах азота, кислорода и водяного пара.

Наиболее простым типом флуоресцентного лидара является его одноканальный вариант [10, 47, 48]. В работе [47] был предложен подход к анализу измерений одноканального флуоресцентного лидара и продемонстрировано, что такой лидар открывает новые возможности для

определения свойств аэрозоля [10, 49]. 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 G_F , определяемая из отношения β_F к коэффициенту обратного рассеяния аэрозоля на одной из длин волн лазера (в англоязычной литературе – fluorescence capacity) [47]. Данный параметр является интенсивным (не зависящим от концентрации), и он характеризует тип частиц.

Как уже отмечалось, коэффициент деполаризации рассеянного излучения позволяет эффективно идентифицировать частицы нерегулярной формы и проводить их первичную классификацию. Надежность распознавания типа частиц увеличивается при совместном использовании поляризационных и флуоресцентных измерений, как это было показано в работах [10, 49]. Дым и городской аэрозоль обладают близкими коэффициентами деполаризации, но эффективность флуоресценции у дыма в несколько раз выше, что позволяет разделять эти типы частиц. Растительная пыльца и пустынная пыль (обладающими сходными коэффициентами деполаризации) так же могут быть разделены на основе флуоресцентных измерений.

Ниже, приводятся характеристики базовых типов аэрозоля.

- **Пыль.** Коэффициент деполаризации δ_{532} пыли Сахары вблизи источников составляет до 35% [10]. Однако после транспортировки и смешивания с местным аэрозолем величина δ_{532} может уменьшаться до ~20% [51]. Во многих исследованиях слои пыли с меньшим коэффициентом деполаризации классифицируют как «загрязненную пыль» [12, 31]. На данный момент мы не вводим различие между двумя подтипами и классифицируем как пыль частицы с $20\% < \delta_{532} < 35\%$ и $0,1 \cdot 10^4 < G_F < 0,5 \cdot 10^4$.

- **Дым.** Дым от пожаров в Северной Америке и Сибири регулярно наблюдается над Европой (и, в том числе, над Москвой) в период с мая по сентябрь [33]. Коэффициент деполяризации частиц и эффективность флуоресценции дыма варьируется в диапазоне $2\% < \delta_{532} < 10\%$ и $2 \cdot 10^4 < G_F < 6 \cdot 10^4$. Таким образом, дым характеризуется сильной флуоресценцией и малым коэффициентом деполяризации.

- **Пыльца.** Растительная пыльца может вносить заметный вклад в коэффициент обратного рассеяния в весенний период. При этом, внутри пограничного слоя она, как правило, смешана с другими типами аэрозолей. Коэффициент деполяризации растительной пыльцы сильно различается для ее разных видов. Одним из основных источников пыльцы в европейской части является береза. В работе [52] измеренный коэффициент деполяризации пыльцы березы составляет $\delta_{532} = 33\%$. Измерения соответствующего коэффициента деполяризации в Финляндии в работе [53], дают величину δ_{532} до 26%. Измерения над Лиллем в период преобладания березовой пыльцы [49] редко выявляли значения δ_{532} , превышающие 20%. На основании этих измерений мы классифицируем как пыльцу смеси частиц с $15\% < \delta_{532} < 30\%$ и $0,8 \cdot 10^4 < G_F < 3,0 \cdot 10^4$.

- **Городской аэрозоль.** Этот тип аэрозоля включает в себя различные типы частиц (например, сульфаты и сажу), и его свойства могут зависеть от относительной влажности. На основании измерений внутри пограничного слоя для классификации выбираются интервалы $1\% < \delta_{532} < 10\%$ и $0,1 \cdot 10^4 < G_F < 1,0 \cdot 10^4$. Аналогичный диапазон для δ_{532} используется в схеме классификации [12]. Городской аэрозоль и частицы дыма имеют низкий коэффициент деполяризации, но эффективность флуоресценции дыма может быть на порядок выше, поэтому эти частицы можно надежно различить.

- **Ледяные и водные облака.** Оба типа облаков имеют низкую эффективность флуоресценции $G_F < 0,01 \cdot 10^4$. Однако ледяные облака обычно наблюдаются на высотах, где сигнал флуоресценции мал и не может быть

использован для классификации. Ледяные облака характеризуются высоким коэффициентом деполаризации $\delta_{532} > 40\%$. Коэффициент деполаризации жидких облаков мал, однако он может возрастать вследствие эффектов многократного рассеяния. В нашей схеме для идентификации жидких облаков используется коэффициент деполаризации $\delta_{532} < 5\%$.

Подход к классификации частиц, на основе флуоресцентных измерений был предложен в работе [10]. Данный подход рассматривает кластеры частиц на диаграмме δ_{532} - G_F . Соответствующая диаграмма из этой работы приведена на рисунке 2. Городской аэрозоль имеет малый коэффициент деполаризации (менее 10%) и малую эффективность флуоресценции (менее 10^{-4}), поэтому соответствующие измерения располагаются в левом нижнем углу диаграммы. Дым, напротив, обладает высокой эффективностью флуоресценции, и соответствующие измерения располагаются в правом нижнем углу. Пустынная пыль и растительная пыльца расположены в верхнем левом и верхнем правом углах соответственно. Области вариаций параметров для каждого из типов аэрозолей выделены на рисунке 2 прямоугольниками. Точки, расположенные вне этих прямоугольников, соответствуют смесям частиц.

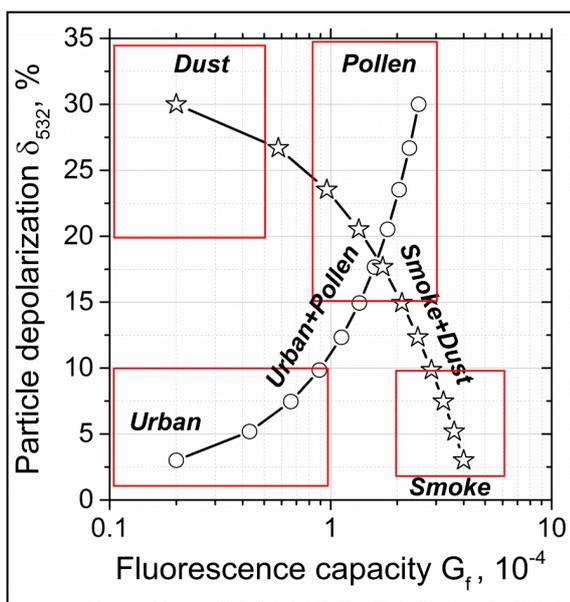


Рисунок 2 – Определение типа аэрозоля из диаграммы δ_{532} - G_F [10]. Прямоугольниками показаны диапазоны значений параметров частиц для пустынной пыли, растительной пыльцы, дыма и городского аэрозоля.

Следует отметить, что в данном подходе используется коэффициент деполяризации только на одной длине волны (δ_{532}). Вместе с тем, спектральная зависимость коэффициента деполяризации так же содержит информацию о типе частиц. Например, коэффициент деполяризации «старого» дыма (дыма время переноса которого составляет несколько дней), уменьшается с увеличением длины волны. На длине волны 1064 нм $\delta_{1064} < 5\%$, в то время, как δ_{355} в верхней тропосфере может превышать 20% [54–57]. Для пылицы, напротив, коэффициент деполяризации на 355 нм может быть минимальным, а максимальные величины наблюдаются на 1064 нм [52, 58]. Таким образом, выбор длины волны 1064 нм и диаграммы $\delta_{1064}-G_F$ может оказаться удобным. Однако, коэффициент обратного рассеяния β_{1064} рассчитывается с помощью метода Клетта [8], который, помимо предположений о лидарном отношении, требует наличия опорной высоты, на которой рассеяние предполагается чисто молекулярным. Соответственно, δ_{1064} не может быть вычислено при наличии облаков. Поэтому использование диаграммы $\delta_{532}-G_F$ оказывается предпочтительнее.

Данная схема классификации является “пороговой”, то есть тип аэрозоля определяется величиной эффективности флуоресценции G_F , превосходящей пороговое значение. Однако, G_F зависит от относительной влажности, поскольку увеличение обратного рассеяния в процессе гигроскопического роста приводит к уменьшению G_F . Как следствие, при высокой относительной влажности мы не можем однозначно определить, происходит ли уменьшение G_F за счет гигроскопического роста или за счет изменения состава аэрозоля.

Гигроскопический рост частиц увеличивает обратное рассеяние, но обычно не приводит к изменению химического состава и, следовательно, флуоресцентные свойства молекул не меняются. Таким образом, можно ожидать, что спектр флуоресценции не изменяется в процессе

гигроскопического роста аэрозоля, и что этот спектр может быть использован для идентификации типа аэрозоля.

Аэрозоли в атмосфере имеют различное происхождение, и, зачастую, представлены смесью частиц разных типов. В схемах классификации обычно вводятся дополнительные категории для обозначения смешанных типов аэрозолей (загрязненная пыль, загрязненный морской аэрозоль и т. д.). Однако, для понимания вклада различных типов аэрозолей в процесс воздействия на радиационный поток важно количественно оценивать содержание каждого типа аэрозоля в смеси. В простейшем случае, когда речь идет о смеси двух типов аэрозолей с сильно различающимися коэффициентами деполяризации (например, дым и пыль), разделение вкладов каждого типа частиц в полное обратное рассеяние оказывается достаточно простым [59–61]. В работе [62] было показано, что ряд интенсивных параметров частиц, при смешивании, оказываются аддитивными. То есть, процесс смешивания описывается системой линейных уравнений. К таким параметрам относятся лидарные отношения, коэффициент деполяризации, отношение коэффициентов обратного рассеяния (цветовое отношение). Разработанный подход был применен к экспериментальным результатам для двухкомпонентных смесей.

Разделение компонент смеси становится более сложным, когда мы имеем дело с более чем двумя типами частиц. Основная проблема разделения аэрозольных смесей заключается в ограниченном количестве интенсивных параметров частиц, измеренных с помощью лидара, которые специфичны для каждого типа аэрозоля и демонстрируют значительные различия между типами. Фактически, даже в пределах одного типа аэрозоля, параметры частиц (например, лидарные отношения) демонстрируют широкий диапазон изменчивости [63]. Проблема разделения становится особенно острой при разделении вкладов городского аэрозоля и дыма, поскольку оба эти типа

обладают близкими характеристиками [63]. Использование флуоресценции делает возможным разделение этих двух типов аэрозолей.

Во всех существующих исследованиях по флуоресцентным лидарам анализируется только полная мощность флуоресценции, в то время как поляризационные свойства флуоресценции игнорируются. В то же время, в лабораторных исследованиях измерения деполяризации флуоресценции широко используются для анализа свойств частиц [64]. При использовании поляризованного лазерного излучения, флуоресценция оказывается также частично поляризованной, а степень поляризации (анизотропия) зависит от времени рекомбинации флюорофора, от угла между диполями возбуждения и излучения, а также от вращательной подвижности молекул [64]. Как будет показано далее, измерение деполяризации может быть использовано для коррекции погрешностей, вносимых флуоресценцией в рамановские измерения.

Водяной пар является ключевым компонентом атмосферы, и рамановские лидары в настоящее время широко используются для его мониторинга [65, 66]. Для соответствующих измерений, как правило используется лазерное излучения на длине волны 355 нм. Однако, при наличии в тропосфере дымовых шлейфов, УФ излучение индуцирует широкополосный сигнал флуоресценции, спектр которого включает область рамановских линий водяного пара. Таким образом, регистрируемый сигнал в канале водяного пара (около 407.5 нм) содержит также вклад, обусловленный флуоресценцией дыма [67, 68]. Вклад флуоресценции можно уменьшить, сократив ширину полосы пропускания фильтра в канале водяного пара. Такое уменьшение, однако, не решает проблему, и флуоресценция дыма вносит погрешности в измерения водяного пара даже при ширине полосы пропускания канала на уровне 0,3 нм [44, 66].

Контролировать наличие сигнала флуоресценции в канале рамановского рассеяния водяного пара возможно путем измерения коэффициента

деполяризации. Колебательные линии рамановского рассеяния водяного пара характеризуются малым коэффициентом деполяризации (менее 2%), тогда как коэффициент деполяризации флуоресценция составляет десятки процентов. Таким образом, наличие флуоресценции должно увеличивать коэффициент деполяризации сигнала в канале водяного пара. Более того, оказывается возможным оценить и скорректировать вклад флуоресценции в измерения водяного пара. Разработка и апробация данного подхода является одной из задач диссертационной работы.

Таким образом, на основе проведенного литературного обзора, сформулировать основные задачи, которые будут решаться в данной диссертационной работе. К этим задачам относятся:

- Разработка флуоресцентного лидара с несколькими дискретными измерительными каналами.
- Создание алгоритмов, позволяющих количественно оценивать содержание различных типов аэрозоля в атмосфере.
- Проведение регулярных измерений флуоресцентного лидара и исследование сезонных вариаций содержания дыма в тропосфере.

2 Определение параметров частиц атмосферного аэрозоля на основе измерений рамановских и флуоресцентных лидаров

2.1 Вычисление коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля из измерений рамановского лидара

На начальной стадии анализа результатов лидарного зондирования выполняется восстановление высотных распределений коэффициентов обратного рассеяния $\beta(z)$ и ослабления $\alpha(z)$ для используемых длин волн. Методика основана на решении системы уравнений, описывающих два измеряемых лидарных сигнала: суммарный сигнал от аэрозольного и молекулярного упругого рассеяния ($P_L(z)$) и сигнал чисто молекулярного рамановского рассеяния ($P_R(z)$). Для получения $P_R(z)$ выбирается одна из составляющих атмосферы с известным распределением концентрации по высоте. В качестве такой составляющей обычно выбирают азот, т.к. он обладает максимальным сечением рамановского рассеяния среди атмосферных компонентов. Мощности сигналов $P_L(z)$ и $P_R(z)$ рассеяния с дистанции z описываются уравнениями:

$$P_L(z) = O(z)C_L \frac{\beta_L^p(z) + \beta_L^m(z)}{z^2} \exp[-2 \int_0^z (\alpha_L^p(z') + \alpha_L^m(z')) dz'] = C_L O \frac{\beta_L^p + \beta_L^m}{z^2} T_L^2 \quad (2)$$

$$P_R(z) = O(z)C_R O(z)N_R(z) \frac{\sigma_R}{z^2} \exp[- \int_0^z (\alpha_L^p(z') + \alpha_L^m(z') + \alpha_R^p(z') + \alpha_R^m(z')) dz'] = \\ = C_R O N_R \frac{\sigma_R}{z^2} T_L T_R, \quad (3)$$

где $O(z)$ - геометрический фактор перекрытия, обусловленный конфигурацией приемного и передающего каналов системы;

C_L, C_R – аппаратные константы;

σ_R – дифференциальное сечение рамановского рассеяния;

$N_R(z)$ – концентрация молекул, на которых происходит рамановское рассеяние;

T_L, T_R – коэффициенты пропускания атмосферы;

$\alpha(z)$ – коэффициент экстинкции;

$\beta(z)$ – коэффициент обратного рассеяния.

Коэффициенты экстинкции и обратного рассеяния представляют собой сумму аэрозольной и молекулярной составляющих: $\beta_L = \beta_L^p + \beta_L^m$ и $\alpha_R = \alpha_R^p + \alpha_R^m$. В дальнейших главах диссертации будет использоваться следующая система обозначений:

- Индекс 'L' - параметры упругого рассеяния;
- Индекс 'R' - параметры рамановского рассеяния;
- Верхний индекс 'p' - вклад аэрозольных частиц;
- Верхний индекс 'm' - молекулярная составляющая.

Из-за большой разницы между длинами волн возбуждающего лазерного излучения ($\lambda_L = 355$ нм) и стоксовой компонентой рамановского рассеяния на молекулах азота ($\lambda_R = 387$ нм), точное определение коэффициента экстинкции $\alpha_L^p(z)$ на длине волны лазера требует установления соотношения между $\alpha_L^p(z)$ и $\alpha_R^p(z)$. Для этого вводится параметр Ангстрема (A) [69], который характеризует спектральную зависимость коэффициента экстинкции аэрозоля:

$$\frac{\alpha_L^p(z)}{\alpha_R^p(z)} = \left(\frac{\lambda_R}{\lambda_L}\right)^A \quad (4)$$

Коэффициент обратного рассеяния можно вычислить, используя отношение упругого сигнала и сигнала рамановского рассеяния в точке привязки z_0 , как это было предложено в работе [70]. z_0 - высота, на которой преобладает молекулярный сигнал и величиной аэрозольной составляющей можно пренебречь, т.е. $\beta_L^m(z_0) \gg \beta_L^p(z_0)$. Это условие, как правило, выполняется в тропосфере. Таким образом, из уравнений (2) и (3) могут быть получены выражения для α_L^p и β_L^p :

$$\alpha_L^p(z) = \frac{\frac{d}{dz} \ln\left(\frac{N_R(z)}{P_R(z) \cdot z^2}\right) - \alpha_L^m(z) - \alpha_R^m(z)}{1 + \left(\frac{\lambda_L}{\lambda_R}\right)^A} \quad (5)$$

$$\beta_L^p(z) = -\beta_L^m(z) + \beta_L^m(z_0) \cdot \frac{P_R(z_0)P_L(z)N_R(z)}{P_L(z_0)P_R(z)N_R(z_0)} \cdot \frac{\exp[-\int_{z_0}^z (\alpha_R^p(z') + \alpha_R^m(z')) dz']}{\exp[-\int_{z_0}^z (\alpha_L^p(z') + \alpha_L^m(z')) dz']} \quad (6)$$

Однако, точка привязки доступна не всегда, например, при наличии низких облаков. Более того, при анализе долговременных пространственно-временных изменений коэффициентов обратного рассеяния, неопределенность в выборе z_0 приводит к осцилляциям величины обратного рассеяния. Чтобы устранить эту проблему, в работе [10] метод расчета был модифицирован.

Из отношения уравнений (2) и (3) получаем:

$$\frac{P_L}{P_R} = \frac{C_L}{C_R} \frac{(\beta_L^m + \beta_L^p)}{\beta_R} \frac{T_L}{T_R} \quad (7)$$

Из формулы (7) может быть определен коэффициент обратного рассеяния:

$$\beta_L^p = \frac{P_L}{P_R} \frac{C_R}{C_L} N_R \sigma_R \frac{T_R}{T_L} - \beta_L^m = \frac{P_L}{P_R} K N_R \frac{T_R}{T_L} - \beta_L^m \quad (8)$$

Если разница между длинами волн упругого и рамановского сигналами незначительна ($\lambda_L \approx \lambda_R$), то отношение $\frac{T_R}{T_L}$ становится равным 1. Подобное условие может быть выполнено, если в качестве рамановского сигнала использовать длину волны вращательного рамановского рассеяния. Применение канала вращательного рамановского рассеяния в лидарной системе будет подробно рассмотрено в разделе 2.2.

Калибровочную константу $K = \frac{C_R}{C_L} \sigma_R$ можно найти, сопоставив β_L^p с коэффициентом обратного рассеяния $\widetilde{\beta}_L^p$, найденным классическим методом из формулы (6).

$$K = (\widetilde{\beta}_L^p + \beta_L^m) \frac{P_R}{P_L} \frac{1}{N_R} \frac{T_L}{T_R} \quad (9)$$

Таким образом, если во время сеанса измерения у нас есть временной интервал, в котором доступна точка привязки, мы можем определить калибровочную константу K и использовать ее для расчетов β_L^P из уравнения (8), предполагая, что относительная чувствительность каналов в течение сеанса не изменяется. Даже если слои облаков наблюдаются в течение всего сеанса, мы можем использовать K из предыдущих сеансов (предполагая, что относительная чувствительность каналов не изменилась).

Результаты расчета профилей коэффициента обратного рассеяния аэрозоля обычным и модифицированным методами, взятые из работы [10], приведены на рисунке 3. Профили $\tilde{\beta}_{532}$ и β_{532} совпадают во всем диапазоне высот. Калибровочная константа K , показанная на том же графике, не демонстрирует зависимости от высоты, хотя колебания вокруг среднего значения увеличиваются с высотой. Для расчетов обычно выбирается значение K на малых высотах.

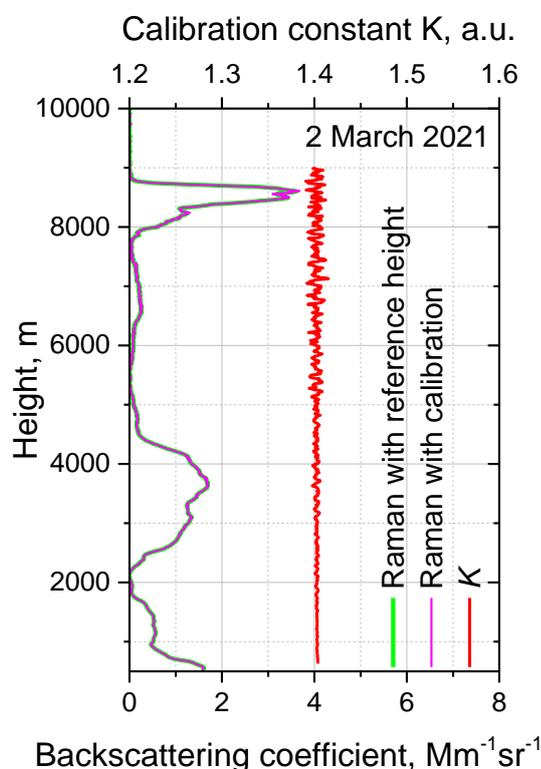


Рисунок 3 – Вертикальный профиль коэффициента обратного рассеяния аэрозоля β_{532} из работы [10]. Результаты полученные традиционным рамановским методом (6) и с использованием калибровочной константы (8) совпадают.

2.2 Выбор спектрального диапазона вращательного рамановского рассеяния для измерения коэффициента обратного рассеяния и экстинкции атмосферного аэрозоля

Низкая интенсивность сигнала колебательного рамановского рассеяния существенно ограничивает пространственно-временное разрешение лидарных измерений и усложняет проведение наблюдений в условиях дневной засветки. Дополнительным фактором неопределенности является значительный сдвиг стоксовой компоненты (в частности, при $\lambda_L=355$ нм $\lambda_R=387$ нм), требующий введения параметрической зависимости между коэффициентами экстинкции α_L и α_R . Данное приближение вносит систематическую погрешность в результаты измерений.

Решение данной задачи может быть достигнуто за счет использования спектра вращательного рамановского рассеяния на молекулах атмосферных газов (N_2 и O_2). Этот подход нашел широкое применение в лазерной термометрии, что подтверждается рядом экспериментальных и теоретических исследований [71, 72]. Помимо температурных измерений, данный метод также эффективен для определения микрофизических параметров аэрозолей, как показано в работах [73, 74].

Спектральные линии вращательного рассеяния локализованы вблизи центральной длины волны зондирующего лазера, однако современные узкополосные интерференционные фильтры позволяют эффективно выделять эти компоненты при сильном подавлении фона упругого рассеяния. Важно отметить, что сечение вращательного рассеяния на 2 порядка величины превышает сечение колебательного рамановского рассеяния азота, что обеспечивает значительное усиление полезного сигнала в лидарных измерениях [7].

Одним из ключевых факторов, влияющих на точность измерений, является температурная зависимость интенсивностей вращательных линий, что приводит к появлению высотных вариаций погрешностей при расчете коэффициента обратного рассеяния. Согласно исследованиям [75], данный эффект может быть компенсирован путем регистрации суммарного сигнала всех вращательных линий, демонстрирующего слабую температурную чувствительность. Однако техническая реализация такого подхода сопряжена с трудностями, связанными с необходимостью равномерного детектирования стоксовых и антистоксовых компонент.

Альтернативным решением является выбор спектрального поддиапазона вращательного рассеяния с минимальной зависимостью от температуры. Такой метод позволяет модернизировать существующие многоволновые рамановские лидары без существенного изменения конструкции приемного тракта [7].

Интенсивность линий стоксовых (s) и антистоксовых (as) областей спектра рамановского рассеяния молекулы, находящейся в энергетическом состоянии J, описывается как [75]:

$$\sigma_{s,as}(J) = \frac{112\pi^4}{15} \frac{g(J)hcB_0(\omega_0 + \Delta\omega_{s,as}(J))^4 \gamma^2}{(2I+1)^2 kT} b(J)_{s,as} \exp\left(-\frac{E_J}{kT}\right), \quad (10)$$

где $g(J)$ – весовой коэффициент, зависящий от спина I;

ω_0 – частота падающего излучения;

$\Delta\omega_{s,as}(J)$ – сдвиг частоты;

γ – анизотропия тензора поляризуемости;

h – постоянная Планка;

c – скорость света;

k – постоянная Больцмана;

T – температура;

B_0 – вращательная константа для основного энергетического состояния.

Коэффициенты $b(J)_{s,as}$ для стоксовых и антистоксовых линий определяются как:

$$b_s(J) = \frac{(J+1)(J+2)}{(2J+3)} \text{ и } b_{as}(J) = \frac{J(J-1)}{(2J-1)} \quad (11)$$

А сдвиг частоты:

$$\Delta\omega_s(J) = -(4J + 6)V_0 \text{ и } \Delta\omega_{as}(J) = (4J - 2)V_0 \quad (12)$$

Величины $g(J)$, I и γ для молекул азота и кислорода являются табличными. Энергия вращения двухатомной молекулы приближенно определяется как $E_J = J(J+1)hcB_0$.

Если пропускание фильтра на канале рамановского рассеяния равно $\xi(\lambda)$, то эффективное дифференциальное сечение вращательного рамановского рассеяния можно рассчитать по следующей формуле:

$$\sigma_{RR}^{eff} = \int_{\Delta\lambda} \left(\eta_{N_2} \sigma_{N_2}(\lambda) + \eta_{O_2} \sigma_{O_2}(\lambda) \right) \xi(\lambda) d\lambda, \quad (13)$$

где η_{N_2} , η_{O_2} – концентрации молекул азота и кислорода в атмосфере;

$\Delta\lambda$ - спектральная полоса пропускания фильтра.

Спектральную зависимость коэффициента экстинкции аэрозоля α можно не учитывать по причине малого частотного сдвига линий вращательного рамановского рассеяния по сравнению с колебательным рамановским рассеянием.

Для сигнала вращательного рамановского рассеяния коэффициент обратного рассеяния определяется как $\beta_R(z) = \sigma_{RR}(z)N(z)$ и коэффициент экстинкции аэрозоля вычисляется как:

$$\alpha^p(z) = \frac{1}{2} \frac{d}{dz} \ln \left[\frac{N(z)}{P_R(z)z^2} \right] + \frac{1}{2} \frac{d}{dz} \ln [P_R(z)] - \alpha^m(z), \quad (14)$$

где $N(z)$ – концентрация молекул. Коэффициент обратного рассеяния в случае вращательного рамановского рассеяния записывается как:

$$\beta^p(z) = -\beta^m(z) + \beta^m(z_0) \cdot \frac{P_R(z_0)P_L(z)N(z)\sigma_{RR}^{eff}(z)}{P_L(z_0)P_R(z)N(z_0)\sigma_{RR}^{eff}(z_0)} \quad (15)$$

$X(z) = \frac{\sigma_{RR}^{eff}(z)}{\sigma_{RR}^{eff}(z_0)}$ - параметр, характеризующий температурную зависимость $\beta^p(z)$

от температур T_0 и T на высотах z_0 и z соответственно. Величина погрешности

ε_{β}^T , обусловленной предположением, что $\beta^p(z)$ не зависит от температуры (то есть для $X=1$), может быть оценена как:

$$\varepsilon_{\beta}^T = \frac{\beta^p - \beta_{X=1}^p}{\beta^p} = \frac{\beta}{\beta - \beta^m} \frac{X-1}{X} = \frac{R}{R-1} \frac{X-1}{X}, \quad (16)$$

где R – отношение суммарного коэффициента обратного рассеяния к его молекулярной компоненте $\frac{\beta}{\beta^m}$. При $\beta^p \gg \beta^m$ погрешность ε_{β}^T определяется $\frac{X-1}{X}$, дополнительный фактор $\frac{R}{R-1}$ появляется при низких концентрациях аэрозоля [7].

Ключевым критерием при выборе полосы пропускания интерференционного фильтра является максимизация отношения сигнал-шум. Оптимальная ширина полосы пропускания должна охватывать наиболее интенсивные линии вращательного рамановского рассеяния, но при этом оставаться достаточно узкой для минимизации влияния фоновой засветки.

Зависимость эффективного сечения рамановского рассеяния от температуры анализировалась в работе [76] и соответствующие результаты представлены на рисунке 4 для различных спектров пропускания интерференционного фильтра в рамановском канале. Относительные вариации сечения вращательного рамановского рассеяния в диапазоне температур 230-300 К не превышали 3,5%. Вклад $\sigma_{RR}^{eff}(T_0)$ в полное сечение антистоксовой компоненты составил 0,2, 0,37 и 0,7 соответственно для указанных диапазонов.

Результаты проведенного исследования демонстрируют оптимальность спектрального диапазона 529,2-531,2 нм для регистрации сигналов. Этот интервал позволяет детектировать приблизительно 70% интенсивности антистоксовой компоненты рамановского рассеяния, при этом температурная чувствительность σ_{RR}^{eff} остается в пределах 1%. Установленная незначительная зависимость от температуры и высокая эффективность регистрации

послужили основанием для выбора указанного спектрального окна в качестве рабочего диапазона для интерференционного фильтра приемной системы.

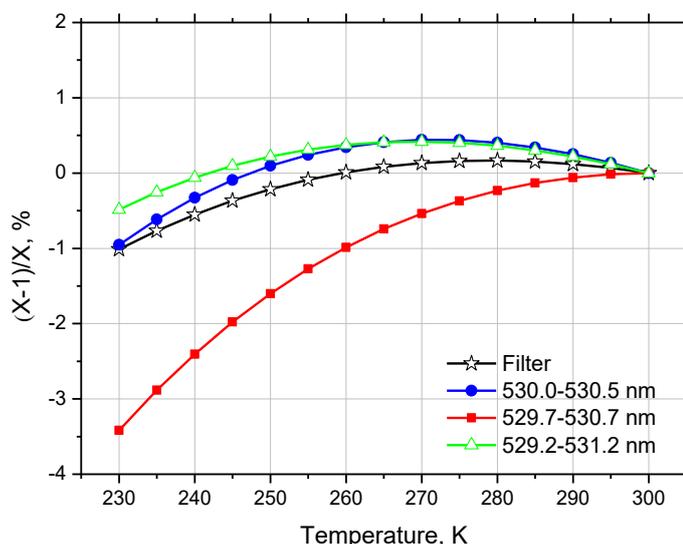


Рисунок 4 – Температурная зависимость относительного изменения сечения вращательного рамановского рассеяния из работы [7] для различных спектральных диапазонов и для спектра пропускания выбранного интерференционного фильтра в рамановском канале.

На рисунке 5 показаны спектры рамановского вращательного рассеяния молекул азота и кислорода в атмосфере. Расчет проведен для длины волны лазерного излучения 532.12 нм. Также, на этом рисунке представлена спектральная функция пропускания интерференционного фильтра фирмы Аллуха, используемого в лидарной системе. Результаты расчетов, приведенные в работе [7] показывают, что изменение сечения вращательного рамановского рассеяния, вследствие вариаций температуры в диапазоне 230-300 К, не превосходит 1% для выбранного фильтра.

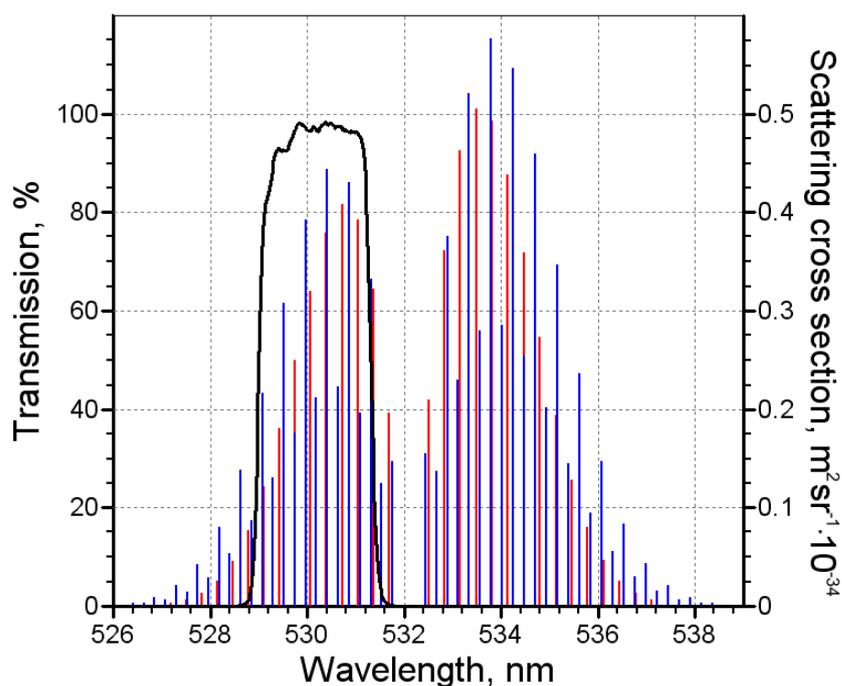


Рисунок 5 – Спектр пропускания интерференционного фильтра в рамановском канале и вращательные рамановские линии азота (синие) и кислорода (красные) при температуре $T=270$ К. Длина волны лазерного излучения 532,12 нм. Взято из работы [76].

Вертикальные вариации $X(z)$ не превосходят 10 % в интервале высот от 0 до 10 км для используемого интерференционного фильтра.

2.3 Вычисление коэффициента деполяризации в лидарных измерениях

Измерение коэффициента деполяризации рассеянного лазерного излучения позволяет разделять сферические частицы и частицы нерегулярной формы [77–81]. Лазерное излучение в лидарной системе является линейно поляризованным, и сигнал обратного рассеяния P в приемном блоке лидара разделяется поляризационным кубом на две компоненты, с поляризациями, ориентированными параллельно и ортогонально исходной:

$$P = P_{\parallel} + P_{\perp} \quad (17)$$

Каждая из этих компонент содержит молекулярный и аэрозольный вклад. Таким образом

$$\beta = \beta_{\parallel} + \beta_{\perp} = \beta_{\parallel}^p + \beta_{\parallel}^m + \beta_{\perp}^p + \beta_{\perp}^m \quad (18)$$

Отношение $\frac{\beta_{\perp}}{\beta_{\parallel}}$ называют коэффициентом объемной деполяризации δ_v .

Деполяризации обусловленная рассеянием на аэрозоле (в англоязычной литературе – particle depolarization) определяется как

$$\delta_p = \frac{\beta_{\perp}^p}{\beta_{\parallel}^p} \quad (19)$$

Для вычисления коэффициента деполяризации частиц через объёмный коэффициент деполяризации обычно используется выражение из работы [9]:

$$\delta_p = \frac{(1+\delta_m)\delta_v R - (1+\delta_v)\delta_m}{(1+\delta_m)R - (1+\delta_v)} \quad (20)$$

где δ_m – коэффициент деполяризации молекул воздуха, а R - отношение суммарного коэффициента обратного рассеяния к его молекулярной компоненте $\frac{\beta}{\beta^m}$. В дальнейшем, для простоты, коэффициент деполяризации аэрозоля мы будем называть просто коэффициентом деполяризации.

Для вычисления коэффициента деполяризации относительная чувствительность параллельного и ортогонального приемного каналов должна калиброваться. В диссертационной работе использовался, так называемый метод ± 45 градусов, описанный в работе [9]. В данной методике линейный пленочный поляризатор устанавливается на входе приемного блока. Измерения проводятся для двух его ориентаций по отношению к поляризации лазерного излучения $\varphi = \pm 45^\circ$. Определив калибровочный коэффициент K , объемная поляризации вычисляется как

$$\delta_v = K \frac{\beta_{\perp}}{\beta_{\parallel}} \quad (21)$$

Далее, деполяризация рассчитывается из формулы (20).

2.4 Анализ измерений флуоресцентного лидара

Широкополосный характер лазерно-индуцированной флуоресценции требует учета нескольких факторов:

- Спектральная зависимость коэффициентов экстинкции для аэрозольных частиц и молекул в пределах спектра флуоресценции [47];
- Зависимость дифференциального сечения флуоресценции ($d\sigma_F/d\lambda$) от размерных характеристик частиц;
- Необходимость учета функции распределения частиц по размерам ($dN(r)/dr$) для точного описания процесса.

Мощность сигнала флуоресценции в спектральном интервале $[\lambda_{\min}; \lambda_{\max}]$ может быть рассчитана как:

$$P_F(z) = O(z) \frac{1}{z^2} T_L(z) \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} C_F(\lambda) \frac{dN(r)}{dr} \frac{d\sigma_F}{d\lambda}(\lambda, r) \exp\left\{-\int_0^z \left(\alpha_\lambda^p(\lambda, z') + \alpha_\lambda^m(\lambda, z')\right) dz'\right\} dr d\lambda \quad (22)$$

где $C_F(\lambda)$ – аппаратная константа, не зависящая от высоты. Если ширина спектра пропускания фильтра $\lambda_{\max}-\lambda_{\min}$ в флуоресцентном канале не слишком велика, процедура анализа данных может быть упрощена. Пропускание атмосферы для флуоресцентного сигнала

$$T_F(\lambda, z) = \exp\left\{-\int_0^z \left(\alpha_\lambda^a(\lambda, z') + \alpha_\lambda^m(\lambda, z')\right) dz'\right\} \quad (23)$$

можно вычислить на длине волны λ_F , соответствующей центру полосы пропускания фильтра. Если спектр пропускания используемого фильтра близок к прямоугольному (как на рисунке 5), а чувствительность используемого ФЭУ в интервале $[\lambda_{\min}; \lambda_{\max}]$ предполагается постоянной, то мы можем упростить $T_F(\lambda, z) = T_F(\lambda_F, z) = T_F(z)$. Выражение (22) можно переписать, введя коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния β_F :

$$\beta_F = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} C_F(\lambda) \frac{dN(r)}{dr} \frac{d\sigma_F}{d\lambda}(\lambda, r) dr d\lambda = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \frac{dN(r)}{dr} \sigma_F(r) dr \quad (24)$$

Здесь $\sigma_F(r) = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} \frac{d\sigma_F(r)}{d\lambda} d\lambda$ - эффективное дифференциальное сечение флуоресценции, интегрированное по спектральному интервалу $[\lambda_{\min}; \lambda_{\max}]$. Используя коэффициент β_F мы можем упростить уравнение (22):

$$P_F(z) = P_0 \frac{1}{z^2} C_F \beta_F T_F(z) T_L(z) \quad (25)$$

Коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния β_F находится из уравнений (25) и (3) для обратного флуоресцентного и рамановского рассеяния:

$$\beta_F = \frac{C_R P_F}{C_F P_R} N_R \sigma_R \frac{T_R}{T_F} \quad (26)$$

Для анализа флуоресценции как интенсивного параметра аэрозоля вводится параметр “эффективность флуоресценции”:

$$G_F = \frac{\beta_F}{\beta_\lambda}, \quad (27)$$

который является отношением коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния к упругому рассеянию на длине волны излучения лазера.

Совместное использование многоволновых и флуоресцентных лидарных измерений позволяет дистанционно оценивать дифференциальное сечение флуоресценции частиц. Как уже отмечалось, измерения многоволнового рамановского лидара позволяют оценить числовую плотность частиц $N = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \frac{dN(r)}{dr} dr$, а также их общий объем V . Таким образом, среднее сечение флуоресценции на одну частицу можно оценить как $\sigma_F^N = \frac{\beta_F}{N}$. Предполагая, что в простейшем случае коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния пропорционален объему частиц, мы можем оценить сечение флуоресценции на единицу объема частиц как $\sigma_F^V = \frac{\beta_F}{V}$ [47].

2.5 Проведение измерений с использованием одноканального флуоресцентного лидара

Наиболее простым типом флуоресцентного лидара является его одноканальный вариант. Многоволновый рамановский лидар с одним флуоресцентным каналом был разработан в ЦФП ИОФ РАН и установлен в университете Лилля, Франция [47]. Второй лидар, содержащий 5 флуоресцентных каналов, был разработан в процессе выполнения данной диссертационной работы, и он установлен в ЦФП ИОФ РАН, Троицк, Москва. Описание этого лидара будет приведено в главе 4.1 диссертации. В диссертационной работе проводится анализ измерений, проводимых на обеих лидарных системах.

Общий вид установки показан на рисунке 6. Источником излучения лидара является Nd:YAG-лазер с генератором третьей гармоники и частотой повторения 20 Гц при энергии в импульсе около 70 мДж на длине волны 355 нм. Для уменьшения расходимости пучка используется внеосевой зеркальный коллиматор Далл – Кирхама с коэффициентом увеличения равным 5. Диаметр пучка на выходе из коллиматора равен 40 мм, а его расходимость – на уровне 0,1 мрад. Общий вид коллиматора показан на рисунке 7. Полное геометрическое перекрытие излучения и поля зрения телескопа достигается на расстоянии примерно 750 метров.

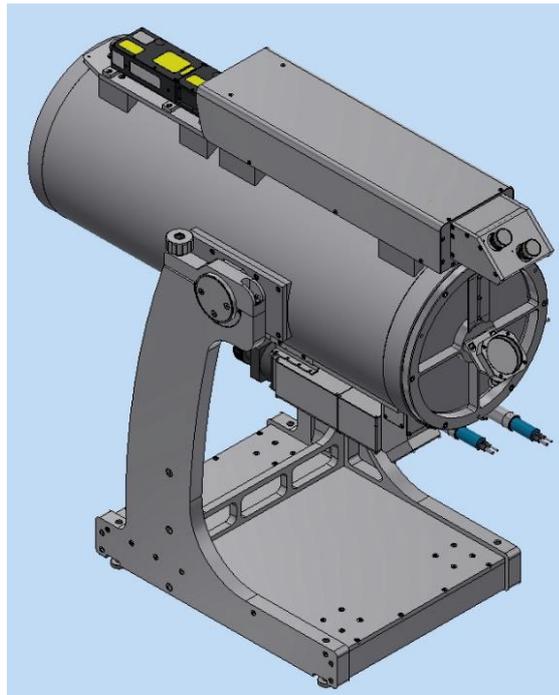


Рисунок 6 – Общий вид многоволнового рамановского лидара с одним флуоресцентным каналом.

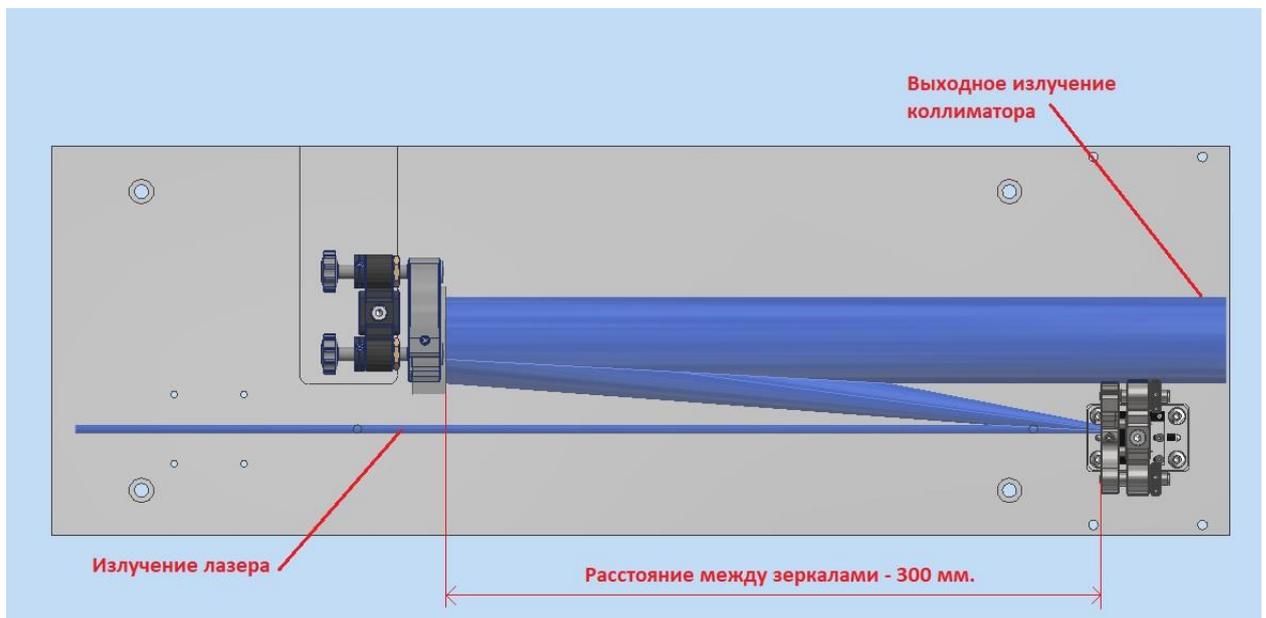


Рисунок 7 – Общий вид внеосевого зеркального коллиматора.

Рассеянное в атмосфере излучение попадает в ньютоновский телескоп с апертурой 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}). Подобный набор данных в литературе обычно называют $3\beta+2\alpha+3\delta$.

Оптическая схема приемного модуля рамановского лидара, содержащего один канал флуоресценции, представлена на рисунке 8. Для проведения измерений флуоресценции используется канал с центром полосы пропускания на длине волны 466 нм и шириной полосы пропускания 44 нм. Для подавления излучения на длинах волн 355 и 532 нм в канал устанавливалось два фильтра и общее подавление превосходило (согласно спецификации) 12 порядков. Дополнительное подавление сигнала упругого рассеяния на уровне 10^4 достигалось за счет использования notch-фильтра. Сильный солнечный фон в дневное время позволяет проводить измерения флуоресценции только в ночное время. Коэффициенты экстинкции и обратного рассеяния на длинах волн 355 и 532 нм рассчитываются модифицированным рамановским методом, как описано в разделе 2.1. Обратное рассеяние на длине волны 1064 нм рассчитывается методом Клетта [8].

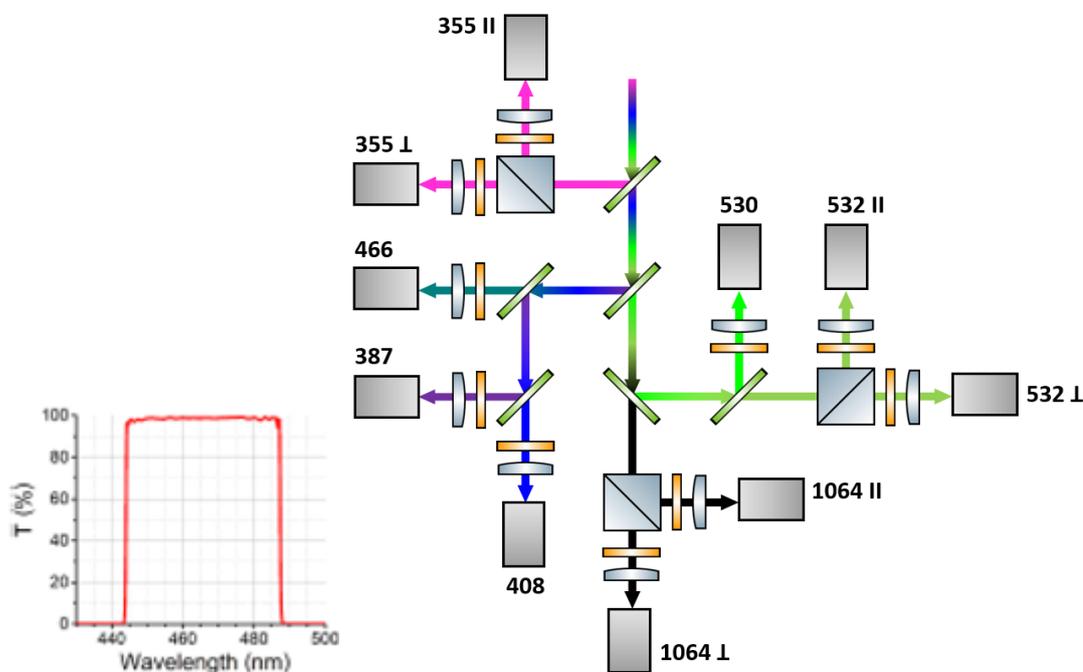


Рисунок 8 – Оптическая схема разделения компонент упругого, рамановского и флуоресцентного рассеяния, а также функция пропускания интерференционного фильтра в канале флуоресценции.

Сигнал, попадающий в приёмный модуль, разделяется по каналам с помощью дихроичных зеркал, поляризационные компоненты разделяются поляризационными кубами. Рабочие длины волн выделяются интерференционными фильтрами. Для детектирования сигнала используются ФЭУ Hamamtsu R-9880. Сигнал на выходе ФЭУ оцифровывается регистратором фирмы Licel, позволяющим проводить измерения как в аналоговом режиме, так и в режиме счета фотонов. Разрешение по дистанции составляет 7,5 м. В одном измерении усредняется 2000 сигналов, что соответствует временному разрешению измерений 100 секунд.

Таким образом, лидарная система позволяет измерять 9 параметров аэрозоля $3\beta+2\alpha+3\delta+1\beta_F$ на основании которых могут быть определен тип аэрозоля и его физические характеристики.

3 Определение типов аэрозоля и их содержания в смеси на основе измерений рамановского и флуоресцентного лидаров

Данный раздел написан на основе результатов, опубликованных в работе “Retrieval and analysis of the composition of an aerosol mixture through Mie–Raman–fluorescence lidar observations”.

3.1 Разработка алгоритма для определения вкладов компонент аэрозольной смеси в полный коэффициент обратного рассеяния

При исследовании процессов взаимодействия аэрозоля с облаками, необходимо проводить классификацию аэрозоля с высоким высотным – временным разрешением, а также определять вклад различных типов аэрозоля в полное обратное рассеяние. Для расчета параметров, связанных с коэффициентом экстинкции аэрозоля, таких как лидарное отношение или коэффициент Ангрстрема, необходимо усреднять лидарные профили на значительном пространственно-временном интервале. В диссертационной работе, для определения типа аэрозоля, используются два параметра: коэффициент деполаризации δ_{532} и эффективность флуоресценции G_F , которые можно рассчитать с высоким высотным – временным разрешением (7.5 м и 100 сек соответственно). Кроме того, функции геометрического перекрытия $O(z)$ в процессе расчета частично компенсируются, что позволяет вычислять δ_{532} и G_F даже в области неполного перекрытия. Коэффициенты обратного рассеяния различных типов аэрозоля можно преобразовать в объемную плотность частиц с использованием соответствующих коэффициентов пересчета [82], [83].

Для анализа состава аэрозольной смеси в диссертационной работе рассматривается модель, в которой предполагается, что в атмосфере одновременно сосуществуют не более трех типов аэрозолей. Например, дым (s), пыль (d) и городской аэрозоль (u). Коэффициенты обратного аэрозольного и флуоресцентного рассеяния (β_{532} и β_F) представляют собой сумму соответствующих вкладов:

$$\beta_{532} = \beta_{532}^s + \beta_{532}^d + \beta_{532}^u \quad (28)$$

$$\beta_F = \beta_F^s + \beta_F^d + \beta_F^u \quad (29)$$

Эффективность флуоресценции для каждого типа аэрозолей определяется как:

$$G_F^{s,d,u} = \frac{\beta_F^{s,d,u}}{\beta_{532}^{s,d,u}} \quad (30)$$

Вводя относительные вклады различных типов аэрозоля в полное рассеяние β_{532} :

$$\eta_{s,d,u} = \frac{\beta_{532}^{s,d,u}}{\beta_{532}} \quad (31)$$

По определению, имеем:

$$\eta_s + \eta_d + \eta_u = 1 \quad (32)$$

Эффективность флуоресценции представляет собой линейную комбинацию эффективностей флуоресценции отдельных типов аэрозолей:

$$G_F = \eta_s G_F^s + \eta_d G_F^d + \eta_u G_F^u \quad (33)$$

Как уже отмечалось, коэффициент деполяризации аэрозоля определяется, как отношение компонент обратного рассеяния, соответствующих перпендикулярной и параллельной ориентации поляризаций: $\delta_{532} = \frac{\beta_{532}^\perp}{\beta_{532}^\parallel}$. Однако, для анализа смеси использование потенциала деполяризации $\delta' = \frac{\delta_{532}}{1+\delta_{532}}$ предпочтительнее, поскольку δ' , так же, как и G_F , представляет собой линейную комбинацию потенциалов деполяризации отдельных типов частиц ($\delta'_s, \delta'_d, \delta'_u$) [62]:

$$\delta' = \eta_s \delta'_s + \eta_d \delta'_d + \eta_u \delta'_u \quad (34)$$

Таким образом, из системы трех уравнений (32) – (34) можно определить относительные вклады в обратное рассеяние η_s , η_d и η_u . В диссертационной работе система (32) – (34) решается методом наименьших квадратов с дополнительным ограничением на неотрицательность решений.

В итоге, у нас есть система трех уравнений (32) – (34), из которой мы можем определить относительный вклад каждого типа аэрозоля, найдя η_s , η_d и η_u . В нашем исследовании мы решаем систему уравнений (32) – (34) методом наименьших квадратов с дополнительным ограничением на неотрицательность решений. Как упоминалось ранее, параметры частиц могут варьироваться в заданных пределах даже для конкретного типа аэрозоля. Однако точные значения G_F^i и δ'_i для конкретного пикселя высоты/времени неизвестны. Чтобы устранить неопределенность в η_i , мы используем метод Монте-Карло, предполагая, что G_F^i и δ'_i являются случайными величинами, равномерно распределенными в пределах заранее определенных интервалов. Для каждого испытания Монте-Карло генерируются случайные значения G_F^i и δ'_i . Вместо того, чтобы полагаться на одно решение, мы проводим серию испытаний Монте-Карло, чтобы получить набор решений и вычислить среднее значение этого набора. Дисперсия этих решений принимается как мера неопределенности метода. Число испытаний Монте-Карло было установлено равным 100, и дальнейшее увеличение этого числа не оказало существенного влияния ни на итоговое среднее значение, ни на дисперсию решений.

В выбранной схеме классификации рассматривается четыре типа аэрозолей: дым, пыльца, городской аэрозоль, пустынная пыль. Тем не менее, система уравнений (32) – (34) состоит всего из трех уравнений. Крайне маловероятно, что все четыре типа аэрозолей присутствуют в одном пикселе высоты/времени, поэтому один из четырех типов может быть исключен априори на основе диаграммы G_F - δ_{532} или других соответствующих соображений. Другой вариант — исключить один тип аэрозоля в каждом

пикселе высоты/времени на основе самих данных лидара, как описано ниже. Такой метод мы назовем автоматическим выбором типа аэрозоля (ATS).

Для автоматического выбора типа аэрозоля решается линейная система уравнений (32) – (34) для наборов смесей из трех компонент: (S, P, U), (S, P, D), (S, U, D), (P, U, D), где S, P, U, D обозначают дым, пыльцу, городской аэрозоль и пустынную пыль соответственно. Для определения типа аэрозоля, который можно исключить, используется невязка уравнений (33) и (34). А именно, вычисляется разница между входными данными (G_F и δ) и соответствующими значениями, полученными подстановкой решения в правую часть системы (32) – (34). Эти разности рассматриваются как двумерный вектор, а евклидова норма этого вектора принимается за невязку. Для каждого высотного-временного пикселя выбирается тройка аэрозолей, обеспечивающая наименьшую невязку. Эта процедура повторяется для каждой реализации Монте-Карло, и после усреднения пространственно-временные распределения η_s , η_p , η_u , η_d (как будет показано далее) не обнаруживают нефизичных высокочастотных осцилляций.

3.2 Использование разработанного алгоритма для определения типа аэрозоля и анализа состава смеси

При анализе состава аэрозольной смеси, используя описанный в разделе 3.1 метод, принципиально важным является выбор диапазона параметров частиц для каждого типа аэрозоля. Диапазоны вариаций G_F и δ_{532} , используемые в данной работе, приведены в таблице 2. 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 [12– 14, 31, 32].

Таблица 2. 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
Частицы воды	<0,01	<5
Кристаллы льда	<0,01	>40

Ниже представлены результаты применения разработанного алгоритма к измерениям, проведенным на одноволновом флуоресцентном лидаре 27-28 марта 2022 г. и 1-2 октября 2023 г. и 16-23 июля 2022 г.

3.2.1 Измерения 27-28 марта 2022 г. Присутствуют три типа аэрозоля.

Пространственно-временные распределения обратного аэрозольного рассеяния β_{532} , коэффициента деполяризации частиц δ_{532} и эффективности флуоресценции G_F 27-28 марта 2022 г. показаны на рисунке 9. Основная масса аэрозоля присутствовала на высотах ниже 2500 м, при этом можно идентифицировать несколько типов частиц. Увеличение коэффициента деполяризации частиц на высоте 2000 м до 30% в период 20:00-22:00 UTC объясняется наличием пыли, а высокие значения эффективности флуоресценции (до $2,5 \cdot 10^{-4}$) в период времени 00:00-05:00 UTC предполагает наличие дыма.

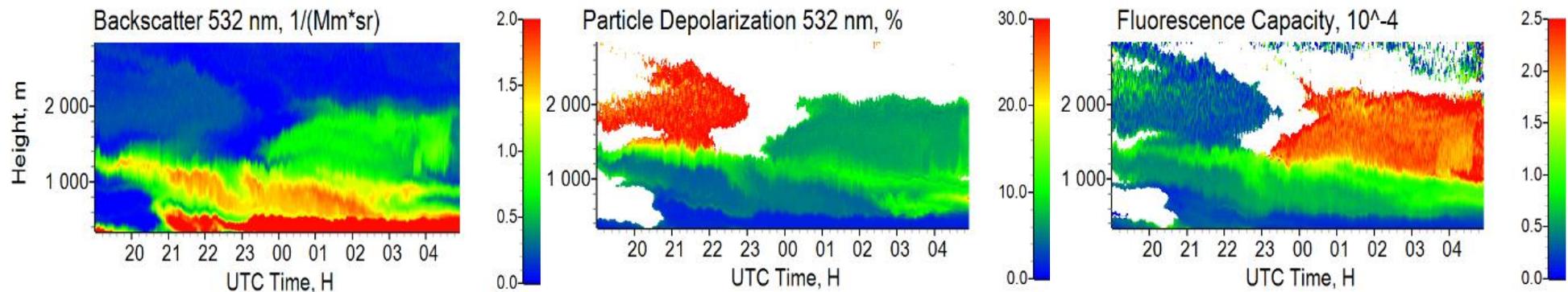


Рисунок 9 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного рассеяния β_{532} , коэффициента деполяризации частиц δ_{532} и эффективности флуоресценции G_F 27-28 марта 2022 г. Коэффициент деполяризации и эффективность флуоресценции рассчитаны только для значений $\beta_{532} > 0,1 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$. Измерения проводились под углом 45° к горизонту.

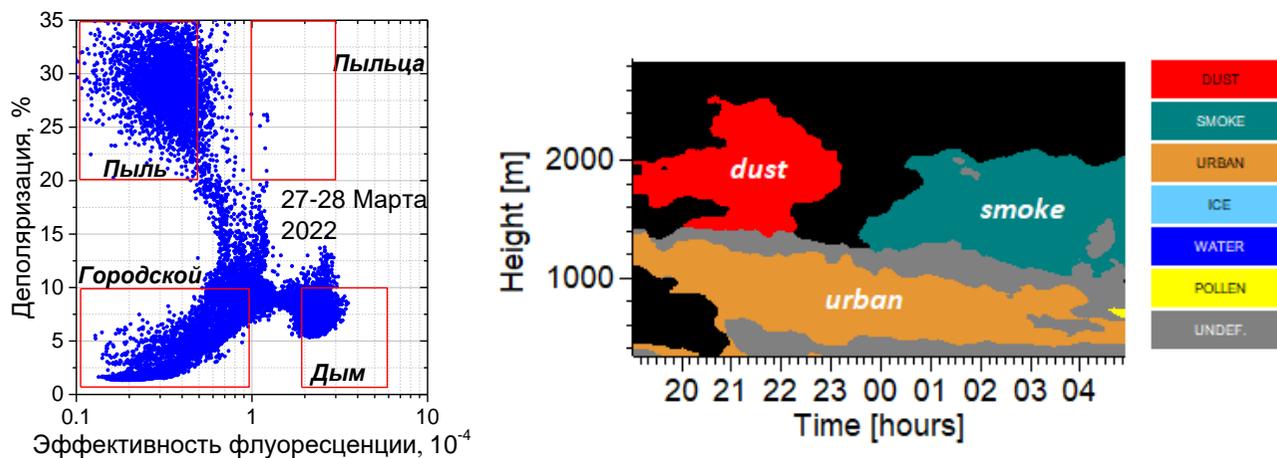


Рисунок 10 – Диаграмма G_F - δ_{532} для измерений проводимых в диапазоне высот 3500–2800 м (а) и пространственно-временное распределение типов аэрозолей (б) в ночь 27–28 марта 2022 г.

Диаграмма $G_F-\delta_{532}$ для этих измерений приведена на рисунке 10а. Красные прямоугольники обозначают диапазоны параметров, используемые в схеме классификации аэрозолей. Эти диапазоны несколько шире, чем указанные в таблице 2, поскольку в процессе классификации типы аэрозолей присваиваются даже смесям, в которых определенный тип является преобладающим. Диаграмма $G_F-\delta_{532}$ позволяет выделять кластеры точек, соответствующих пыли, дыму и городскому аэрозолю, а также области, соответствующие смесям частиц. Вклад пылевых частиц в обратное рассеяние для рассматриваемого эпизода был незначительным. Используя данную схему классификации, можно рассчитать пространственно-временное распределение типов аэрозолей, следуя методологии, изложенной в [10]. Соответствующие распределения приведены на рисунке 10б. На распределении выделены области с преобладанием пыли, дыма и городского аэрозоля. Небольшое количество пыльцы наблюдается в конце сеанса измерения на высоте около 700 м. Серым цветом на рисунке 10б обозначены области, соответствующие аэрозольным смесям, тип частиц в которых не может быть идентифицирован. Используя метод изложенный в разделе 3.1, становится возможным разделить вклад каждого типа частиц в полный коэффициент обратного рассеяния β_{532} .

На рисунке 11 представлены пространственно-временные распределения относительных вкладов η_s , η_u и η_d в предположении, что вкладом пыльцы можно пренебречь. Таким образом, рассматриваются только три типа аэрозоля. Алгоритм работает стабильно, демонстрируя распределения без каких-либо нефизичных высокочастотных осцилляций. Из приведенных распределений, можно заключить, что дымовой шлейф содержит значительное количество городского аэрозоля, тогда как в пространственно-временной области соответствующей пустынной пыли, не наблюдается присутствия других типов частиц. Распределения на рисунке 11 представляют собой средние значения η_s , η_u и η_d . Для оценки

неопределенностей, возникающих из-за вариаций характеристик частиц, на рисунке 12 показаны вертикальные профили η_s , η_u и η_d для периода 21:00–22:00 UTC вместе с соответствующими стандартными отклонениями. Городской аэрозоль преобладают ниже 1000 м с отклонением от среднего значения около 5%. Выше 1500 м η_u уменьшается до 0,05, а неопределенность возрастает до 100%. И наоборот, ниже 1000 м вклад пыли в обратное рассеяние можно не учитывать, но выше 1000 м этот вклад становится преобладающим. Вклад дыма в рассматриваемый период времени мал и становится заметным ($\eta_s \sim 0,15$) только в диапазоне высот 1250–1500 м.

Результаты на рисунке 11 были получены без рассмотрения возможного вклада растительной пыльцы. Для оценки возможного влияния вклада пыльцы на результат, было проведено разделение вклада частиц в обратное рассеяние для четырех типов аэрозолей с использованием подхода, описаного в разделе 3.1. Соответствующие профили η_s , η_u , η_d изображены на рисунке Рисунок 12 пурпурными линиями. Как видно из рисунка, профили, полученные для трех и четырех типов аэрозолей, близки. Наличие пыльцы может оказывать небольшое влияние на η_s , но ее влияние на пыль и городской аэрозоль незначительно.

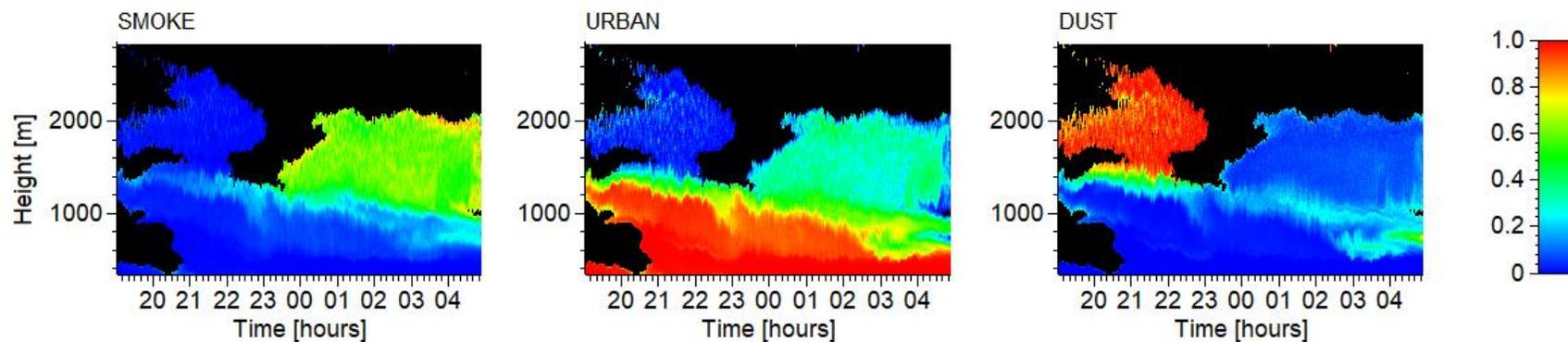


Рисунок 11 – Относительный вклад частиц дыма (η_s), городского аэрозоля (η_u) и пыли (η_d) в общий коэффициент обратного рассеяния β_{532} .

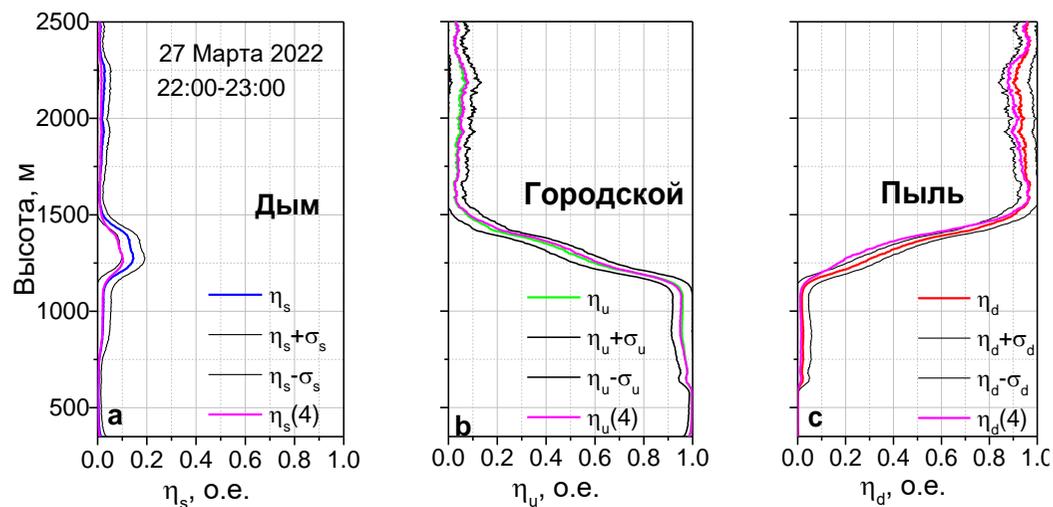


Рисунок 12 – Вертикальные профили относительных вкладов частиц дыма (η_s), городского аэрозоля (η_u) и пыли (η_d) в коэффициент обратного рассеяния β_{532} 27 марта 2022 г., полученные в предположении, что присутствуют только три типа аэрозоля. Черные линии показывают стандартные отклонения решений от средних значений. Пурпурные линии показывают вклады $\eta_s(4)$, $\eta_u(4)$, $\eta_d(4)$, полученные при рассмотрении четырех типов аэрозолей (включая растительную пыльцу).

3.2.2 Измерения 1-2 октября 2023 г. Различные типы аэрозолей проявляются в виде слоев.

Проводимые долговременные измерения продемонстрировали, что дым от североамериканских лесных пожаров, переносимый через Атлантику, регулярно спускался из верхней тропосферы и вторгался в пограничный слой. Один из таких эпизодов показан на рисунке 13, где представлены пространственно-временные распределения β_{532} , δ_{532} и G_F в ночь с 1 на 2 октября 2023 г. Интенсивные аэрозольные слои наблюдаются до высоты 5 км. Коэффициент деполяризации δ_{532} выше 2000 м превышает 25%, что указывает на преобладание пыли. Однако ниже 1000 м низкий коэффициент деполяризации ($\delta_{532} < 8\%$) сопровождается высокой эффективностью флуоресценции частиц (до $3,0 \cdot 10^{-4}$), что характерно для дыма. На диаграмме G_F - δ_{532} на рисунке 14а выделены группы точек, относящихся к пыли, дыму и городскому аэрозолю. В то же время, на диаграмме присутствуют интервалы, соответствующие смесям частиц. Эти области представлены на распределении типов частиц (рисунок 14b) серым цветом. Результаты классификации аэрозолей находят подтверждение в анализе обратных траекторий (модель NYSPLIT). Обратные траектории 2 октября 2023 г. в 00:00 UTC показаны на рисунке 15. Воздушные массы над Атлантикой, содержащие североамериканский дым, опускаются с высоты 5000 м, что приводит к преобладанию дыма на высоте 500 м. Воздушные массы на высоте 1500 м переносятся над континентом и могут содержать городской (континентальный) аэрозоль, тогда как воздушные массы на высоте 2700 м приходят из Африки и содержат пыль.

Пространственно-временные распределения η_s , η_u , η_d рассчитанные в предположении, что присутствуют только три типа аэрозолей, изображены на рисунке 16. Городской аэрозоль локализован, главным образом, между слоями

дыма и пыли. При этом, некоторое количество городского аэрозоля присутствует, так же в слое дыма. Вертикальные профили η_s , η_u , η_d для периода 22:00-23:00 UTC представлены на рисунке 17. Дым преобладает на высоте ниже 1000 м, при этом вклад дыма ($\eta_s=0,7$ на высоте 750 м) оценивается с погрешностью 20%. Вклад городского аэрозоля в слое дыма составляет $\eta_u=0,3$ на высоте 750 м с соответствующей неопределенностью на уровне 30%. Вклад пыли составляет $\eta_d=0,8$ выше 2000 м, а неопределенность его оценки не превышает 15%. Существование пыльцы в октябре маловероятно, но в целях тестирования алгоритма, был проведен расчет для четырех типов аэрозолей методом ATS (пурпурные линии на рисунке 17). Влияние растительной пыльцы наиболее выражено для пыли на высоте 1750 м, где η_d снижается примерно на 25%. Однако полученные значения по-прежнему попадают в предполагаемый диапазон неопределенности.

Из рассмотренных примеров можно сделать вывод, что вклад трех компонент аэрозоля в коэффициент обратного рассеяния можно определить путем совместных флуоресцентных и поляризационных измерений.

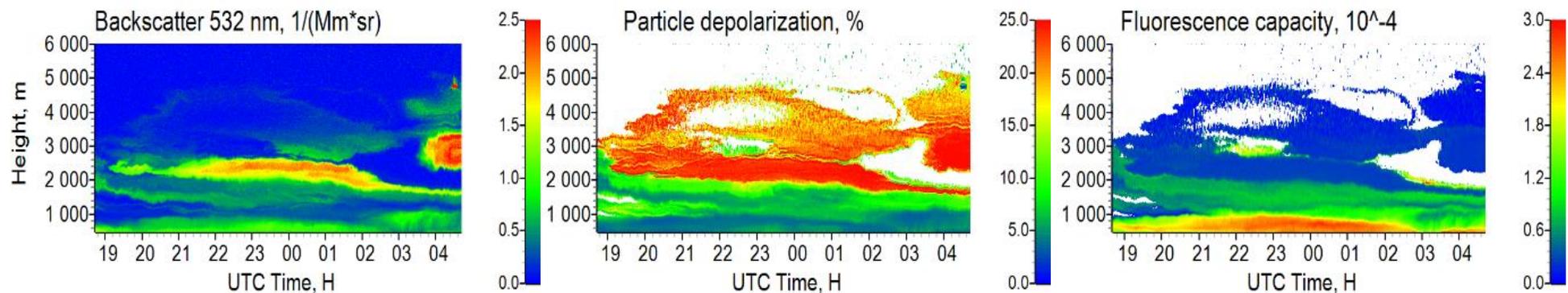


Рисунок 13 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного рассеяния β_{532} , коэффициент деполаризации частиц δ_{532} и эффективности флуоресценции G_F 1-2 марта 2023 г. Коэффициент деполаризации и эффективность флуоресценции рассчитаны для значений $\beta_{532} > 0,1 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$.

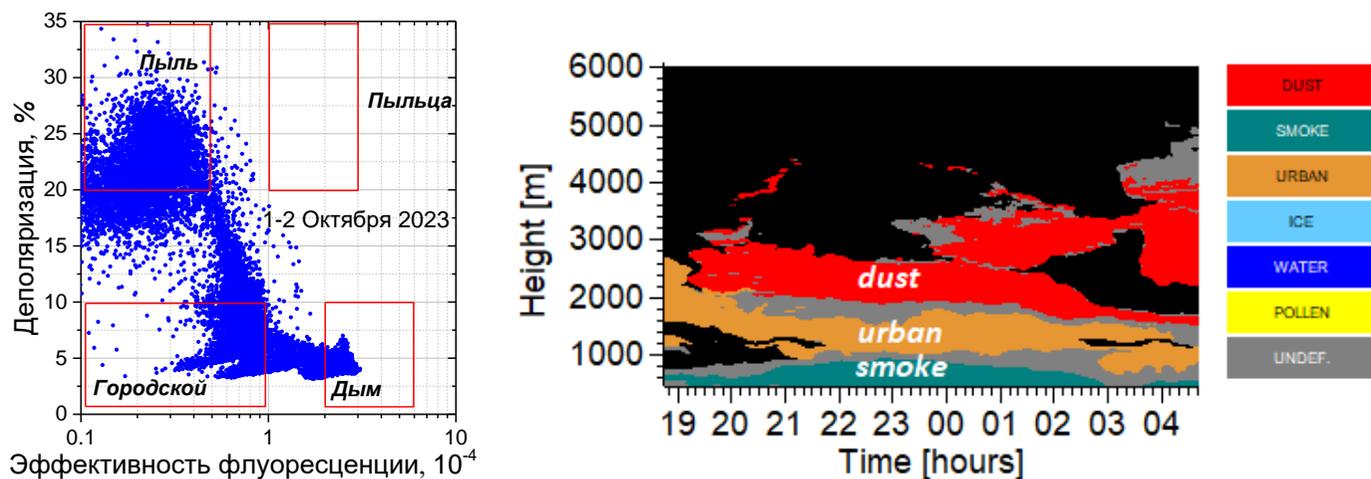


Рисунок 14 - Диаграмма G_F - δ_{532} (а) и пространственно-временное распределение типов аэрозолей (б) в ночь 1–2 октября 2023 г.

NOAA HYSPLIT MODEL
 Backward trajectories ending at 0000 UTC 02 Oct 23
 GDAS Meteorological Data

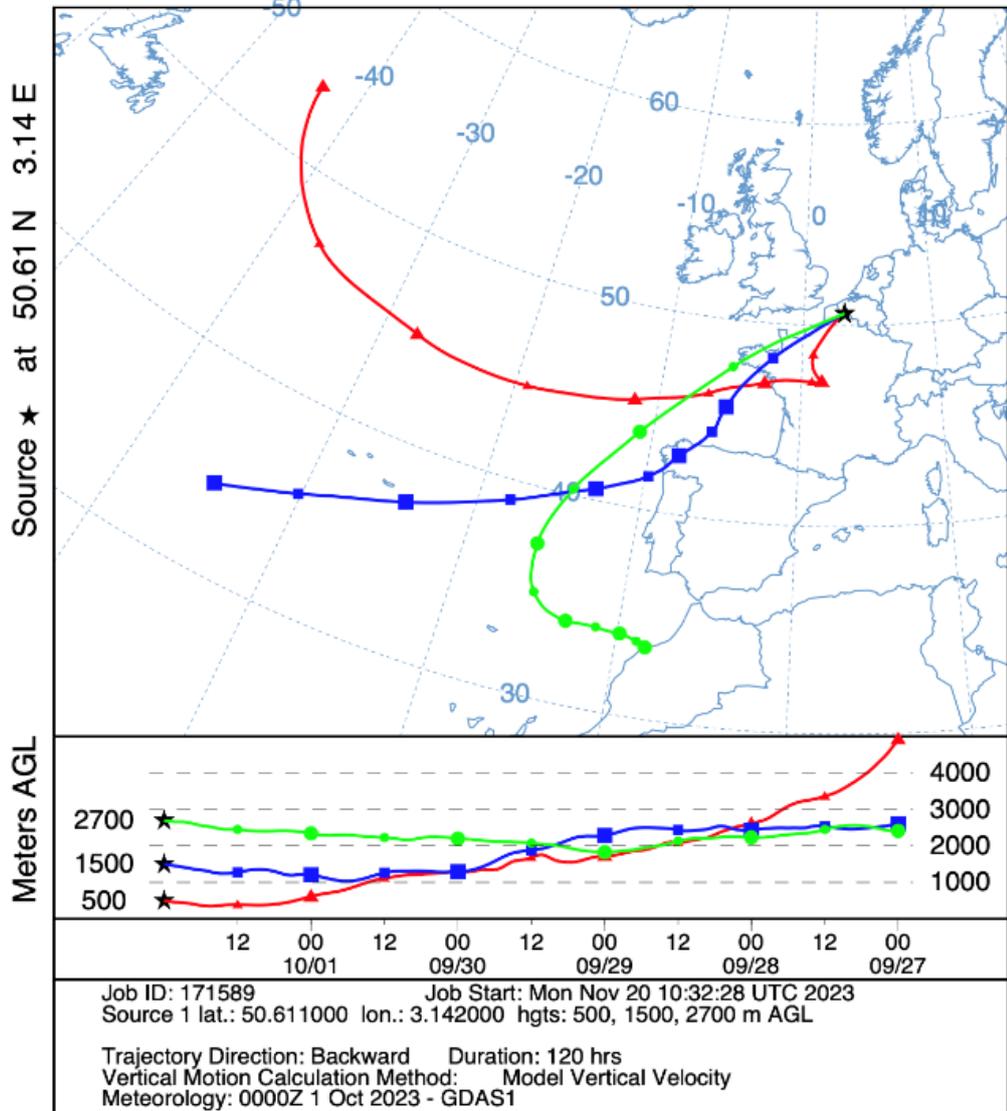


Рисунок 15 – Обратные траектории воздушных масс на высотах 500 м, 1500 м, 2700 м 2 октября 2023 г. в 00:00 UTC.

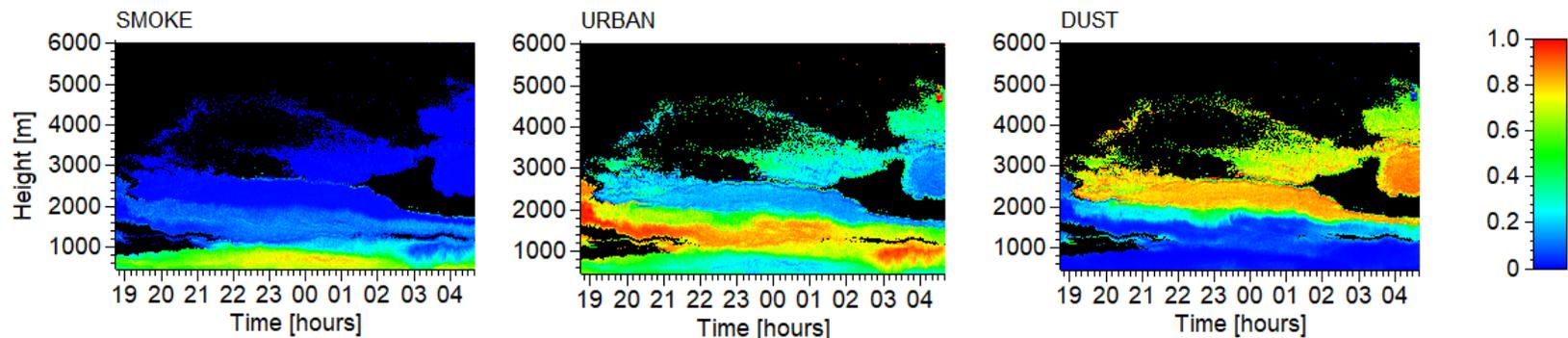


Рисунок 16 – Относительный вклад частиц дыма (η_s), городского аэрозоля (η_u) и пыли (η_d) в общий коэффициент обратного рассеяния β_{532} .

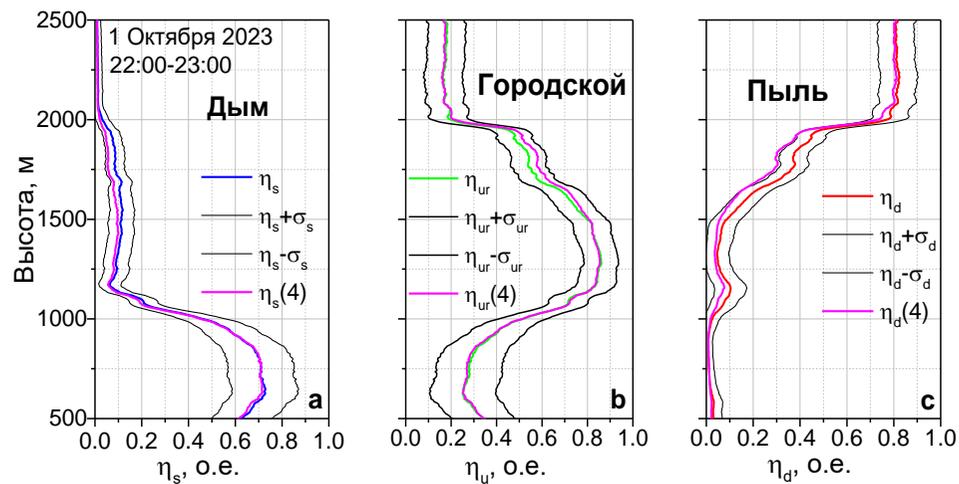


Рисунок 17 – Вертикальные профили относительных вкладов частиц дыма (η_s), городского аэрозоля (η_u) и пустынной пыли (η_d) в коэффициент обратного рассеяния β_{532} на 1 октября 2023 г. Профили получены в предположении, что присутствуют только три типа аэрозолей. Черные линии показывают стандартные отклонения решений от средних значений. Пурпурные линии показывают вклады $\eta_s(4)$, $\eta_u(4)$, $\eta_d(4)$, полученные при рассмотрении четырех типов аэрозолей (включая растительную пыльцу).

3.2.3 Измерения во время тепловой волны 16-23 июля 2022 года.

В июле 2022 года над Францией имела место тепловая волна, обусловленная системой высокого давления у берегов Испании, что приводило к увеличению температуры. Лидарные измерения, проводимые на нашей системе в Лилле, фиксировали существенное увеличение содержания аэрозоля в середине июля 2022 года. На рисунке 18 показаны оптическая толщина аэрозоля при длине волны 500 нм и параметр Ангстрема для длин волн 380/500 нм, предоставленные AERONET. Лидарные измерения проводились с 16 по 23 июля. В этом интервале оптическая толща увеличивалась, достигая максимума 18 июля. Параметр Ангстрема уменьшался, что указывает на наличие пыли. На рисунке 19 показан объем частиц, интегрированный по высоте, полученный из измерений AERONET. Результаты показаны как для мелкодисперсной, так и для грубодисперсной фракций. После 16 июля объем грубодисперсной фракции увеличился примерно в четыре раза, тогда как мелкодисперсная фракция не претерпела существенных изменений, что еще раз подтверждает наличие частиц пыли. К сожалению, данные недоступны после 20 июля из-за облачности.

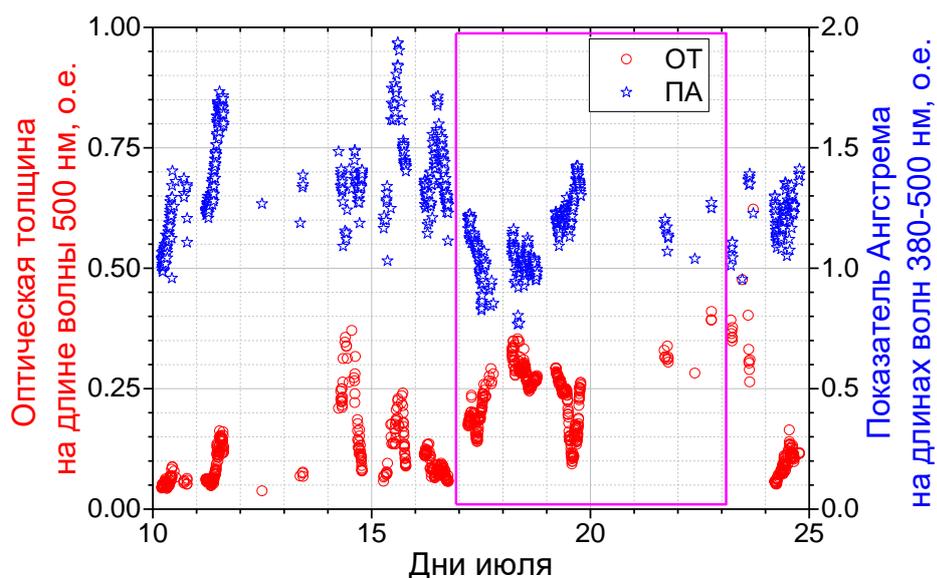


Рисунок 18 – Оптическая толщина аэрозоля на длине волны 500 нм и показатель Ангрестема, предоставленные AERONET в июле 2022 года. Пурпурный прямоугольник отображает период времени, в течение которого анализировались лидарные измерения.

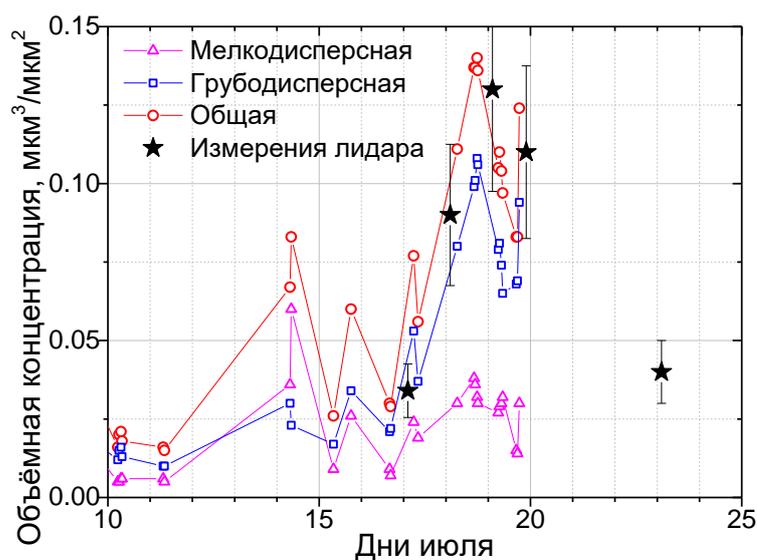


Рисунок 19 Объемная концентрация частиц из измерений AERONET (кружки). Треугольники и квадраты обозначают объемы мелкодисперсной и грубодисперсной фракций соответственно. Черные звезды соответствуют интегральному по высоте объему аэрозоля, полученному из лидарных измерений.

Методика, изложенная в разделе 2.1, была применена для анализа состава аэрозоля во время этого эпизода. На рисунке 20 показаны пространственно-временные распределения β_{532} , δ_{532} и G_F в период с 16 по 23 июля.

17 июля после полуночи слой пыли с δ_{532} , превышающий 20%, наблюдался на высоте 5 км. На следующую ночь (17-18 июля) нижняя граница слоя опустилась до высоты 2 км. Ночью с 18 на 19 июля было обнаружено сильное обратное рассеяние аэрозоля в диапазоне высот от 0.75 км до 5 км. При этом коэффициент деполяризации δ_{532} превышал 20%. Высокий коэффициент деполяризации наблюдалось в двух диапазонах высот: 0,75-2,0 км и 3,0-5,0 км. В период 19-22 июля облака не позволяли проводить лидарные измерения. Результаты единственного кратковременного измерения 19 июля в период с 21:00 до 23:00 UTC показали, что пыль присутствует в диапазоне высот 0,75-5,0 км. К 22 июля аэрозоль был локализован ниже 3 км. Коэффициентом деполяризации не превосходил 10%, и аэрозоль может быть идентифицирован, как городской.

На рисунке 21 представлены диаграммы $G_F-\delta_{532}$ для измерений, показанных на рисунке 18. 16-17 июля хорошо различимы кластеры точек, соответствующие пыли, а также смеси дыма и городского аэрозоля. 17-18 и 18-19 июля происходит перемешивание частиц, а к 22-23 июля мы наблюдаем только городской аэрозоль. Распределения типов частиц (нижний ряд на рисунке 21) содержат протяженные серые области, где частицы перемешаны и их тип не идентифицирован. Результаты разделения компонент аэрозольной смеси (для трех типов частиц) показаны на рисунке 22. 16-17 июля пограничный слой содержит значительное количество городского аэрозоля. 18-19 июля городской аэрозоль наблюдался преимущественно на высоте 2-3 км между слоями пыли, и этот тип становится преобладающим 22 июля. Дым присутствовал в виде тонкого слоя 16-17 июля на высоте около 3 км.

Классификация аэрозолей, основанная на измерениях флуоресценции и деполяризации, подтверждается анализом обратных траекторий движения воздушных масс. На рисунке 23 показаны обратные траектории для четырех сеансов измерений (соответствующих рисунку 20) на высотах 1500 м, 3000 м и 4500 м. 16-17 июля слой пыли на высоте 4000 м транспортируется из

Северной Африки. 17-18 июля воздушные массы на высоте 3000 м переносятся из Африки над районами лесных пожаров в Испании, что указывает на смесь пыли и дыма. 22-23 июля температурная волна закончилась. Воздушные массы приходят с запада, вне источников пыли и дыма, а аэрозоль в диапазоне высот 1000-3000 м идентифицируется как городской.

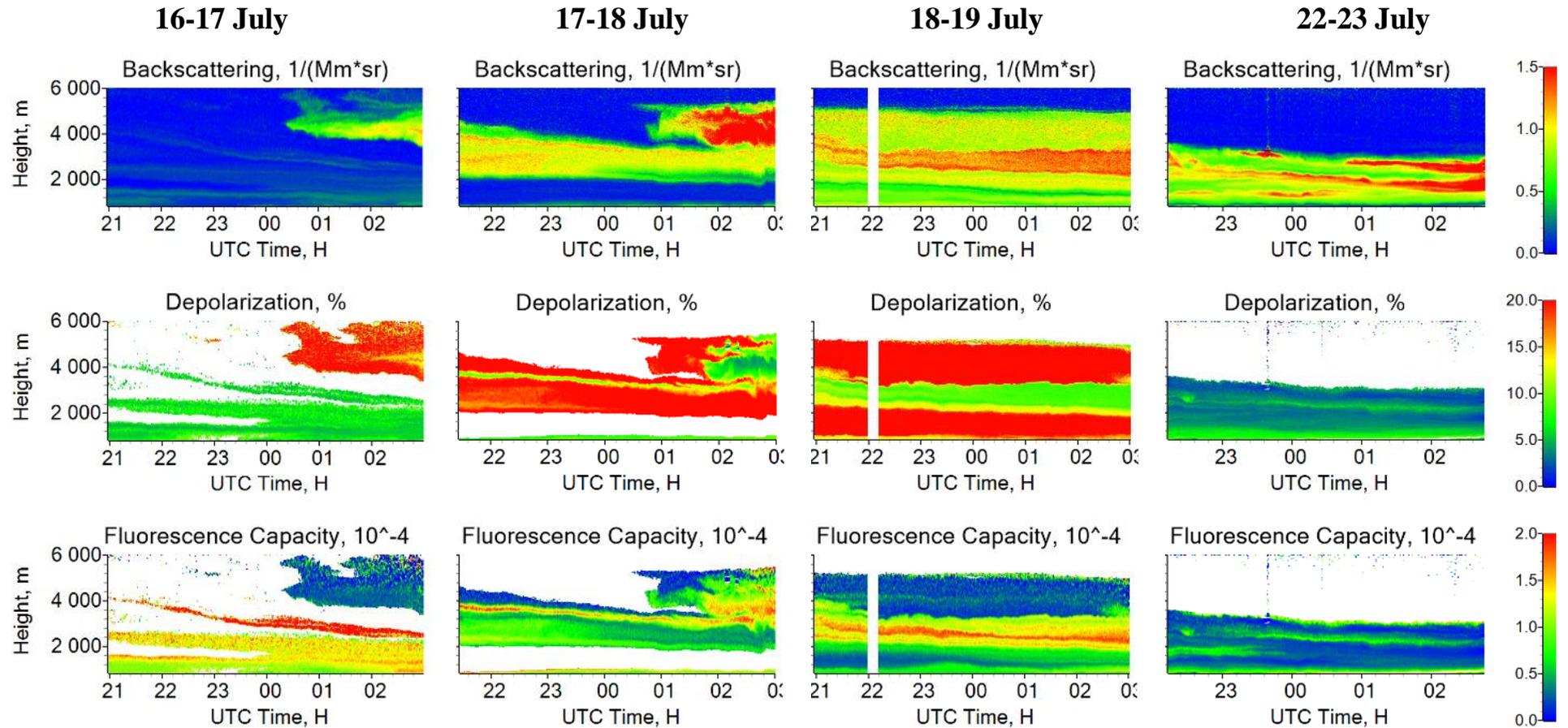


Рисунок 20 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного рассеяния β_{532} , коэффициента деполаризации частиц δ_{532} и эффективности флуоресценции G_F для ночей 16-17, 17-18, 18-19 и 22-23 июля 2022 г. Коэффициент деполаризации и эффективность флуоресценции были рассчитаны только для значений $\beta_{532} > 0,1 \text{ Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1}$.

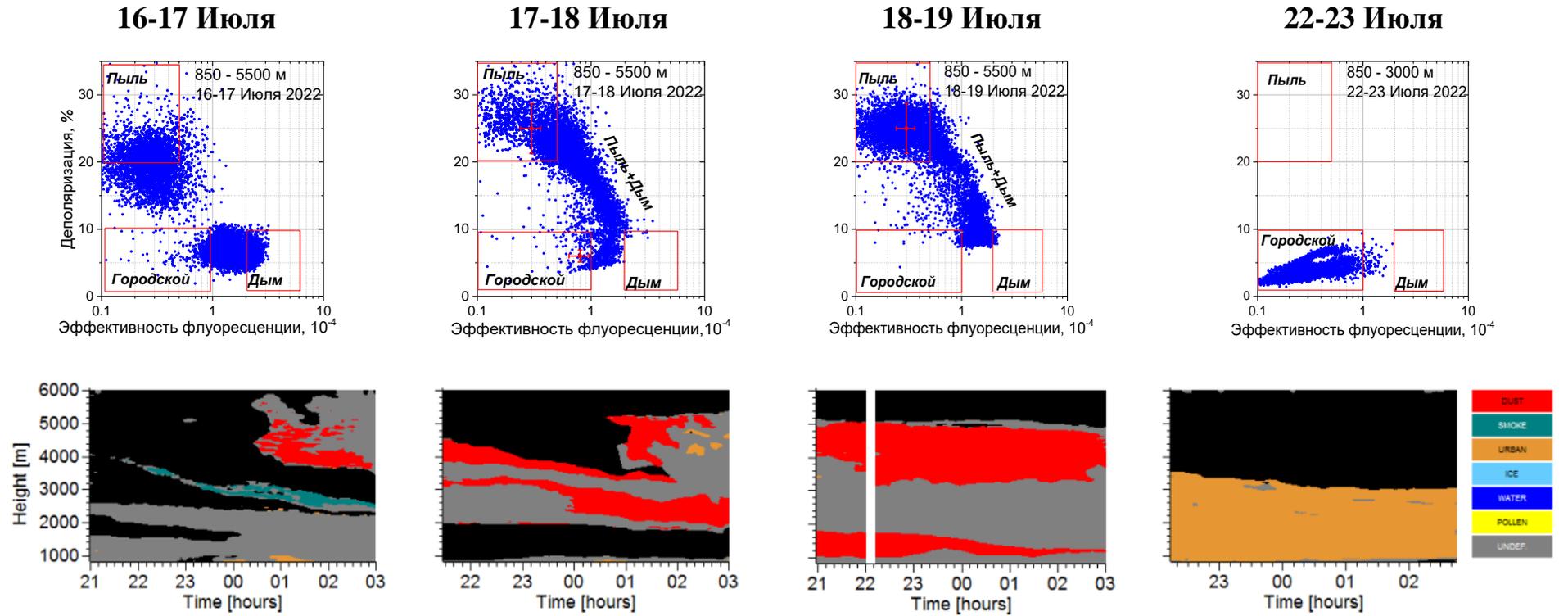


Рисунок 21 – Диаграмма $\delta_{532}\text{-}G_F$ (верхний ряд) и пространственно-временное распределение типов аэрозолей (нижний ряд) для ночей 16-17, 17-18, 18-19 и 22-23 июля 2022 года.

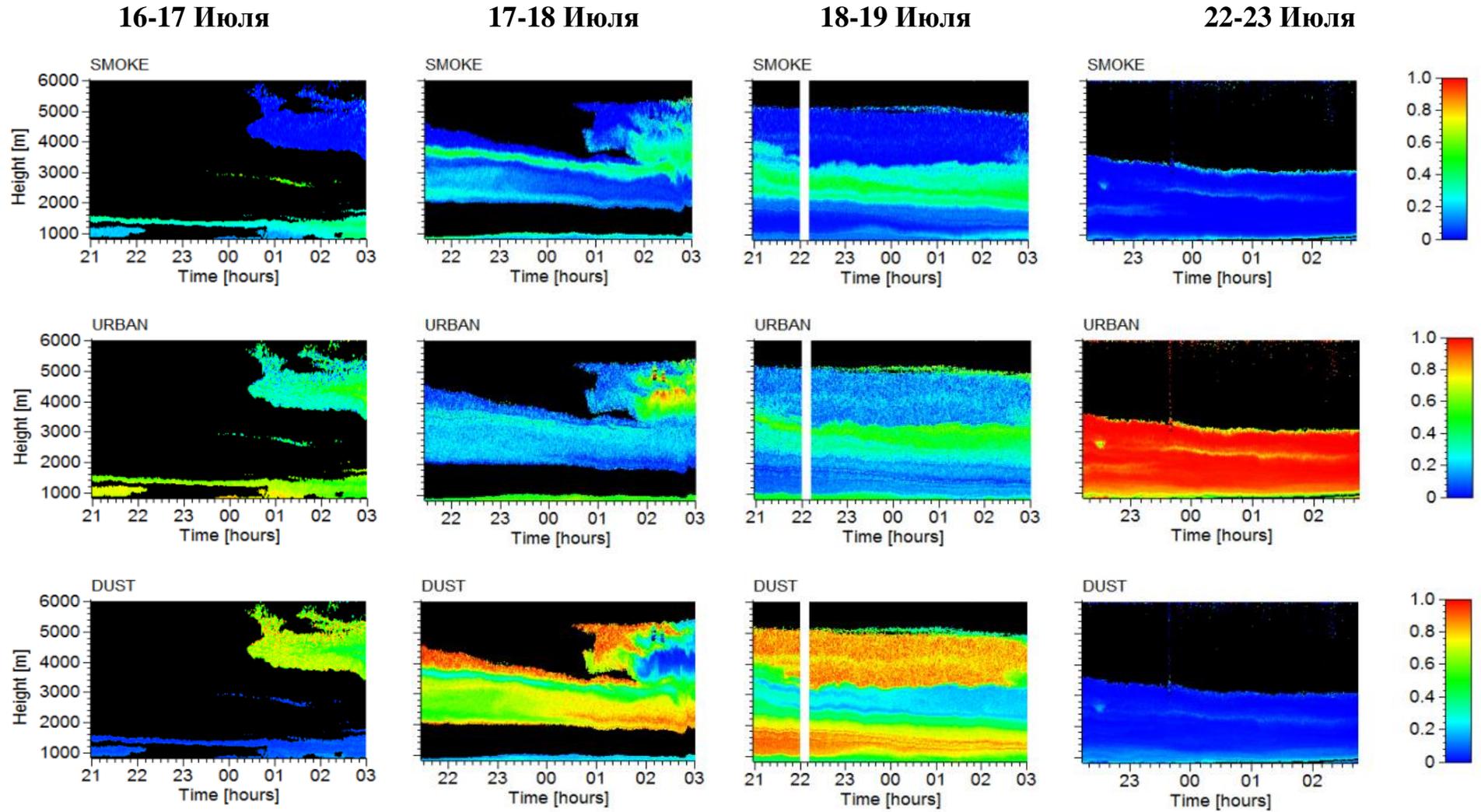


Рисунок 22 – Относительный вклад частиц дыма (η_s), городского аэрозоля (η_u) и пыли (η_d) в общий коэффициент обратного рассеяния β_{532} .

3.2.4 Оценка объемной и массовой концентрации атмосферного аэрозоля

Коэффициенты обратного рассеяния позволяют оценить объемные и массовые концентрации каждого типа аэрозоля в смеси. Факторы пересчета коэффициента экстинкции в объемную концентрацию для различных типов частиц, полученные на основе измерений AERONET, анализировались в работах [12, 82–85]. В нашем случае, коэффициент экстинкции может быть получен умножая коэффициент обратного рассеяния на лидарное отношение, характерное для выбранного типа аэрозоля. Таким образом для компонента смеси «i»:

$$V_i = \beta_{532} \cdot \eta_i \cdot S_{532}^i \cdot C_V^i, \quad (35)$$

где V_i – объёмная концентрация;

S_{532}^i – лидарное отношение;

C_V^i – фактор пересчета экстинкции аэрозоля в объёмную концентрацию для длины волны 532 нм.

Значения факторов пересчета на длине волны 532 нм, а также диапазоны лидарных отношений, приведены в таблице 3.

Таблица 3. Лидарные отношения (S_{532}) и коэффициенты преобразования экстинкции в объем (C_V^i) на длине волны 532 нм для различных типов аэрозолей.

Тип аэрозоля	Лидарное отношение S_{532} , ср	Коэффициент преобразования экстинкции в объем C_V^i , $\text{мкм}^3\text{см}^{-3}/\text{Мм}^{-1}$
Городской аэрозоль	53-70 ⁵	0,3-0,41 ¹
Дым (транспортированный из Северной Америки)	55-73 ⁵	0,13 ⁴
Пустынная пыль (Северная Африка)	40-50 ⁴	0,61-0,64 ¹ 0,67-0,73 ³ 0,64-0,67 ²

¹Mamouri and Ansmann, 2017 [82]; ²He et al., 2023 [83]; ³Ansmann et al., 2019 [84]; ⁴Ansmann et al., 2021 [85]; ⁵Burton et al., 2013 [12]

Объемную концентрацию каждого компонента аэрозольной смеси можно оценить с помощью уравнения (35). На рисунке 24 представлены вертикальные профили объемной концентрации дыма, городского аэрозоля и частиц пыли для четырех сеансов измерений из рисунка 22. В расчетах использовались средние значения η_s , η_u , η_d , а также средние значения лидарных отношений из таблицы 3 и эффективности флуоресценции из таблицы 2. Лидарные отношения для дыма, городского аэрозоля и пыли составляют 64 ср, 61 ср и 45 ср соответственно, а значения эффективности флуоресценции составляют $0,13 \cdot 10^{-4}$, $0,35 \cdot 10^{-4}$ и $0,7 \cdot 10^{-4}$ соответственно. Основной вклад в объем вносят городской аэрозоль и частицы пыли, причем заметный вклад дыма наблюдается только 16-17 июля, при этом объемная плотность составляет менее $5 \text{ мкм}^3 \text{ см}^{-3}$. Чтобы оценить достоверность наших оценок объемной концентрации, результаты лидарных измерений были сопоставлены с данными AERONET. Для этого сравнения профили объемной концентрации каждого компонента из рисунка 24 были проинтегрированы по всей высоте и показаны на рисунке 19. Объемная концентрация из AERONET согласуется с результатами лидарных измерений. Объемную концентрацию можно пересчитать в массовую (M_i), если известна плотность частиц. Профили массовой концентрации показаны на рисунке 24 штриховыми линиями. В расчетах мы использовали плотность дыма $\rho_s=1,15 \text{ г/см}^3$ [85] и плотность пыли $\rho_d=2,6 \text{ г/см}^3$ [83]. Для городского аэрозоля была выбрана плотность сульфатных частиц $\rho_u=1,5 \text{ г/см}^3$.

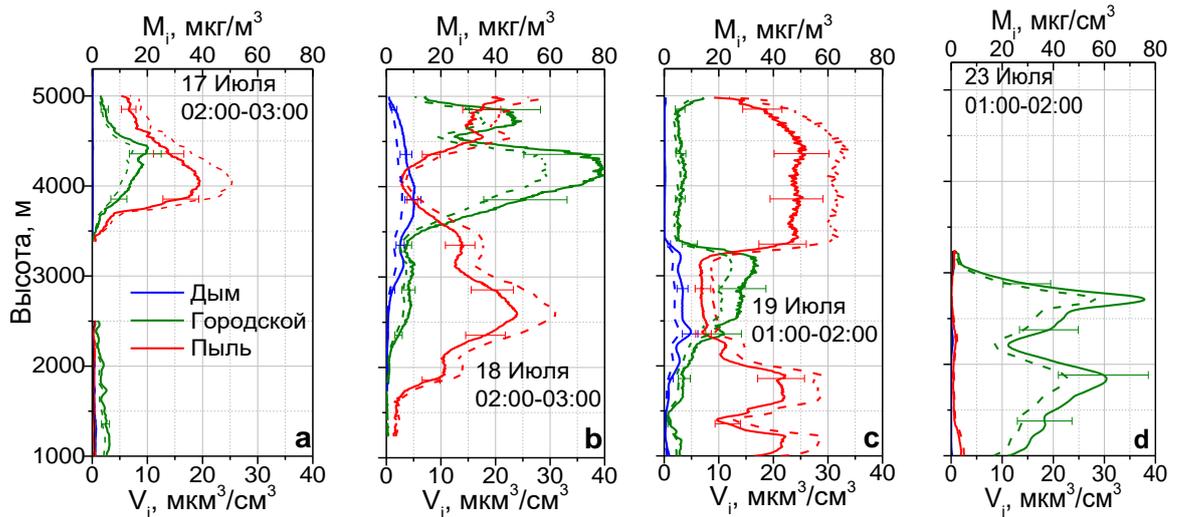


Рисунок 24 – Вертикальные профили объемной концентрации дыма (V_i), пыли и городских частиц, полученные из η_s , η_u и η_d на рисунке 22 с использованием средних значений лидарных отношений и коэффициентов преобразования из таблицы 2. Профили показаны для эпизодов: 17 июля (а), 18 июля (б), 19 июля (с) и 23 июля (д) 2022 г. Штриховыми линиями обозначена рассчитанная массовая концентрация (M_i).

3.3 Выводы к разделу 3

Таким образом, в данном разделе был предложен подход, позволяющий определять вклад компонент аэрозоля (дым, пыль, городской аэрозоль, пыльца) в полный коэффициент обратного рассеяния, на основе поляризационных и флуоресцентных лидарных измерений. Определение этого вклада оказывается возможным в каждом высотном-временном пикселе. Подход может быть использован даже при относительно низком содержании аэрозоля ($\beta_{532} \sim 0,5 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$), а также для аэрозольных слоев в верхней тропосфере, где получение профилей коэффициентов экстинкции оказывается сложным. Разработанный подход был использован для анализа измерений многоволновым рамановским лидаром с одним каналом флуоресценции.

4 Исследование коэффициента деполяризации флуоресценции атмосферного аэрозоля и его использование для коррекции измерений водяного пара рамановским лидаром

Данный раздел написан на основе результатов, опубликованных в работе “Derivation of depolarization ratios of aerosol fluorescence and water vapor Raman backscatters from lidar measurements”.

4.1 Анализ влияния флуоресценции аэрозоля на измерения водяного пара рамановским лидаром.

Как уже отмечалось, лидары с одним каналом флуоресценции получают широкое распространение благодаря своей простоте. Однако во всех предыдущих лидарных исследованиях анализировалась только полная мощность сигнала флуоресценции, а поляризационные свойства флуоресценции игнорировались. В то же время, в лабораторных исследованиях широко используются измерения деполяризации флуоресценции [64]. При использовании поляризованного лазерного излучения, флуоресценция также частично поляризована, а степень поляризации излучения (анизотропия) зависит от времени жизни флуоресценции, от угла между диполями возбуждения и излучения, а также от вращательной подвижности молекул [64]. Анизотропия флуоресценции вводится следующим образом:

$$r = \frac{P_F^{\parallel} - P_F^{\perp}}{P_F^{\parallel} + 2P_F^{\perp}} \quad (36)$$

где P_F^{\parallel} и P_F^{\perp} — мощности компонент флуоресценции с поляризациями ориентированными параллельно и ортогонально поляризации лазерного излучения. Однако, в лидарных измерениях обычно используется коэффициент деполяризации δ_F :

$$\delta_F = \frac{P_F^{\perp}}{P_F^{\parallel}} \quad (37)$$

Анизотропия и коэффициент деполяризации взаимосвязаны посредством выражения:

$$r = \frac{1-\delta_F}{1+2\delta_F} \quad (38)$$

Для случайно ориентированных молекул, с коллинеарными диполями поглощения и излучения, а также при отсутствии вращательного движения, анизотропия равна $r=0,4$ [64], что соответствует $\delta_F=33\%$. Это минимальное значение коэффициента деполяризации флуоресценции, которое можно ожидать при лидарных измерениях. Наличие угла между диполями поглощения и излучения, а также вращение молекул в процессе излучения приводит к увеличению δ_F . Таким образом, измерение коэффициента деполяризации флуоресценции может дать дополнительную информацию об атмосферном аэрозоле. Кроме того, измерение δ_F позволяет анализировать влияние флуоресценции на измерение содержания водяного пара рамановским лидаром.

Как уже отмечалось во введении, широкополосный сигнал флуоресценции, перекрывает рамановские линии водяного пара. Таким образом, регистрируемый сигнал в канале водяного пара содержит вклад флуоресценции.

Мощность лидарного сигнала в канале водяного пара (в отсутствие флуоресценции), описывается лидарным уравнением:

$$P_W(z) = C_W O N_W \frac{\sigma_W}{z^2} T_L T_W, \quad (39)$$

где C_W — аппаратная константа;

N_W — концентрация водяного пара;

σ_W - дифференциальное сечение рамановского рассеяния водяного пара;
 $T_L T_W$ – коэффициенты пропускания атмосферы на длинах волн соответствующих лазерному излучению и рамановскому сигналу водяного пара.

Сигнал флуоресценции, прошедший в канал водяного пара, соответственно, записывается как:

$$P_{FW}(z) = 0 \cdot C_W \frac{\beta_{FW}}{z^2} T_L T_W, \quad (40)$$

где β_{FW} - коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния в полосе пропускания канала водяного пара.

Содержание водяного пара может быть получено из уравнений (39) и (3):

$$n_W = K_W \frac{P_W T_R}{K_R T_W} \quad (41)$$

где $K_W = \frac{C_R \sigma_R}{C_W \sigma_W}$ - калибровочная константа.

Коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния β_F , полученный из уравнений (22) и (24), также содержит калибровочную константу K_F :

$$\beta_F = K_F n_R \frac{P_F T_R}{P_R T_F} \quad (42)$$

Здесь $n_R = \frac{N_R(z)}{N_R(z=0)}$ – относительное изменение концентрации молекул азота с высотой. Процедура калибровки описана в работе [47].

Сигнал флуоресценции в канале водяного пара можно выразить через измеряемый сигнал флуоресценции (в нашем случае $\lambda_F=466$ нм) с помощью параметра χ . Этот параметр зависит от соотношения сечений флуоресценции на длинах волн λ_W и λ_F , ширины полосы пропускания фильтров и эффективности обоих каналов. Таким образом уравнение (40) может быть записано как:

$$P_{FW} = P_F \chi \frac{T_W}{T_F} \quad (43)$$

Сигнал, измеренный в канале водяного пара, \tilde{P}_W , представляет собой сумму обратного рамановского рассеяния водяного пара, P_W , и флуоресценции, P_{FW} :

$$\tilde{P}_W = P_W + P_{FW} = P_W + P_F \chi \frac{T_W}{T_F} \quad (44)$$

Следует учитывать, что спектр флуоресценции, даже для одного и того же типа аэрозоля, может меняться с высотой и от измерения к измерению, что влияет на χ . Чтобы минимизировать это влияние, желательно располагать λ_W и λ_F как можно ближе.

Если сигналы в канале рамановского рассеяния водяного пара и канале флуоресценции разделены на две компоненты: с поляризациями, ориентированными параллельно и ортогонально поляризации лазерного излучения, то мощности в этих каналах определяются соответствующими уравнениями:

$$\tilde{P}_W^{\parallel} = P_W^{\parallel} + P_F^{\parallel} \chi \frac{T_W}{T_F} \quad (45)$$

$$\tilde{P}_W^{\perp} = P_W^{\perp} + P_F^{\perp} \chi \frac{T_W}{T_F} = \delta_W P_W^{\parallel} + \delta_F P_F^{\parallel} \chi \frac{T_W}{T_F} \quad (46)$$

Здесь δ_F и δ_W — коэффициенты деполяризации флуоресценции и рамановского рассеяния водяного пара:

$$\delta_F = \frac{P_F^{\perp}}{P_F^{\parallel}} \quad \delta_W = \frac{P_W^{\perp}}{P_W^{\parallel}} \quad (47)$$

При этом предполагается, что коэффициент деполяризации флуоресценции одинаков на длинах волн λ_W и λ_F [64].

Из-за наличия флуоресценции коэффициент деполяризации, измеренный в рамановском канале водяного пара, определяется следующим уравнением:

$$\tilde{\delta}_W = \frac{\tilde{P}_W^{\perp}}{\tilde{P}_W^{\parallel}} = \frac{\delta_W P_W^{\parallel} + \delta_F P_F^{\parallel} \chi \frac{T_W}{T_F}}{P_W^{\parallel} + P_F^{\parallel} \chi \frac{T_W}{T_F}} \quad (48)$$

Здесь δ_W — коэффициент деполяризации водяного пара в отсутствие флуоресценции. Из уравнений (40), (41), (45), (46) и (48) параметр χ может быть рассчитан из измеряемых величин, таких как содержание водяного пара \tilde{n}_W , коэффициента деполяризации $\tilde{\delta}_W$ и обратного флуоресцентного рассеяния β_F :

$$\chi = \frac{\tilde{n}_W K_F}{\beta_F K_W} n_R \frac{(1+\delta_F)(\tilde{\delta}_W-\delta_W)}{(1+\tilde{\delta}_W)(\delta_F-\delta_W)} \quad (49)$$

Следует отметить, что выбор калибровочных констант K_F , K_W не влияет на χ , поскольку и содержание пара и β_F рассчитываются с теми же калибровочными константами. Наконец, погрешность определения содержания водяного пара, вызванную флуоресценцией, можно рассчитать следующим образом:

$$\Delta n_W = K_W \frac{P_{FX} \frac{T_W}{T_F} T_R}{P_R T_W} = \frac{K_W}{K_F} \chi \beta_F \frac{1}{n_R} \quad (50)$$

Как только параметр χ найден из уравнения (49), становится возможным оценить погрешность Δn_W используя β_F , измеренную на длине волны 466 нм. При такой оценке предполагается, что связь между флуоресценцией при 466 нм и 408 нм не зависит от высоты.

Следует отметить, что из измеренной деполяризации сигнала рамановского рассеяния водяного пара вклад флуоресценции Δn_W можно получить без использования χ . Из уравнений (49) и (50) мы имеем:

$$\Delta n_W = \tilde{n}_W \frac{(1+\delta_F)(\tilde{\delta}_W-\delta_W)}{(1+\tilde{\delta}_W)(\delta_F-\delta_W)} \quad (51)$$

Однако, такую коррекцию можно выполнить только на малых высотах, где отношение сигнал/шум в кросс-поляризованном канале водяного пара достаточно велико.

4.2 Измерение коэффициента деполяризации флуоресценции атмосферного аэрозоля

В 2023 году лидар, описанный в разделе 2.5, был модернизирован, чтобы обеспечить возможность измерения деполяризации как на длине волны 466, так и на 408 нм. Соответствующая оптическая схема представлена на рисунке

25. Дихроичные зеркала разделяют сигналы с длинами волн 387, 408 и 466 нм, а поляризационные кубы разделяют компоненты с поляризациями, ориентированными параллельно (s) и перпендикулярно (p) поляризации лазера. Коэффициент деполаризации флуоресценции δ_F и коэффициент деполаризации рамановского рассеяния водяного пара δ_W рассчитываются, как отношение перпендикулярной и параллельной компонент сигнала. Калибровка каналов проводилась по методике, описанной в [9].

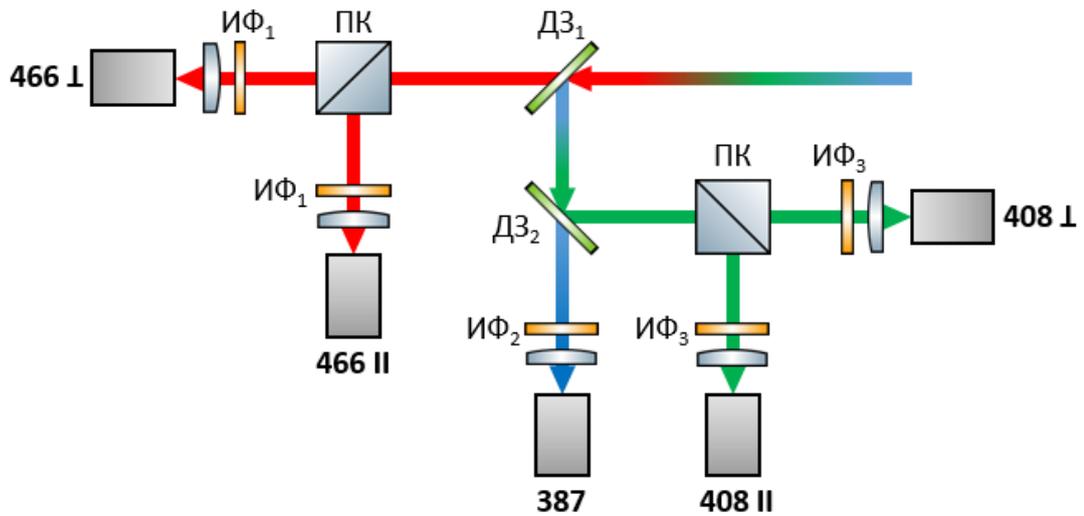


Рисунок 25 – Оптическая схема измерения деполаризации на длинах волн 408 и 466 нм; ИФ₁ - ИФ₃ – интерференционные фильтры; ДЗ₁, ДЗ₂ – дихроичные зеркала; ПК – поляризационный куб.

На первом этапе исследований анализировалась зависимость коэффициента деполаризации флуоресценции от типа аэрозоля. Основное внимание было уделено частицам дыма, поскольку они оказывают наиболее сильное влияние на измерение водяного пара, вследствие большого сечения флуоресценции.

Пространственно-временные распределения коэффициентов обратного аэрозольного и флуоресцентного рассеяния (β_{532} и β_F) в ночь с 26 на 27 июня 2023 г. показаны на рисунке 26. 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. Относительная влажность увеличивается от 40% на высоте 4 км до более чем 90% на высоте 7 км, где

начинается образование кристаллов льда. Вертикальные профили β_{532} и β_F , и G_F показаны на рисунке 26с. Внутри слоя дыма G_F составляет около $3 \cdot 10^{-4}$, что является типичным значением для дыма, тогда как выше 6 км G_F уменьшается из-за образования льда. Кристаллы льда увеличивают коэффициент деполаризации частиц δ_{532} с 3% на высоте 6 км до 20% на высоте 8 км. Сигналы флуоресценции сильно деполаризованы. Внутри пограничного слоя δ_F составляет около 60%, тогда как выше 2 км оно падает до 45%. Процессы гигроскопического роста и образования льда не оказывают заметного влияния на величину δ_F дыма. Во время измерений, проводимых в мае и июне 2023, коэффициент деполаризации дыма изменялся в пределах 45-55%.

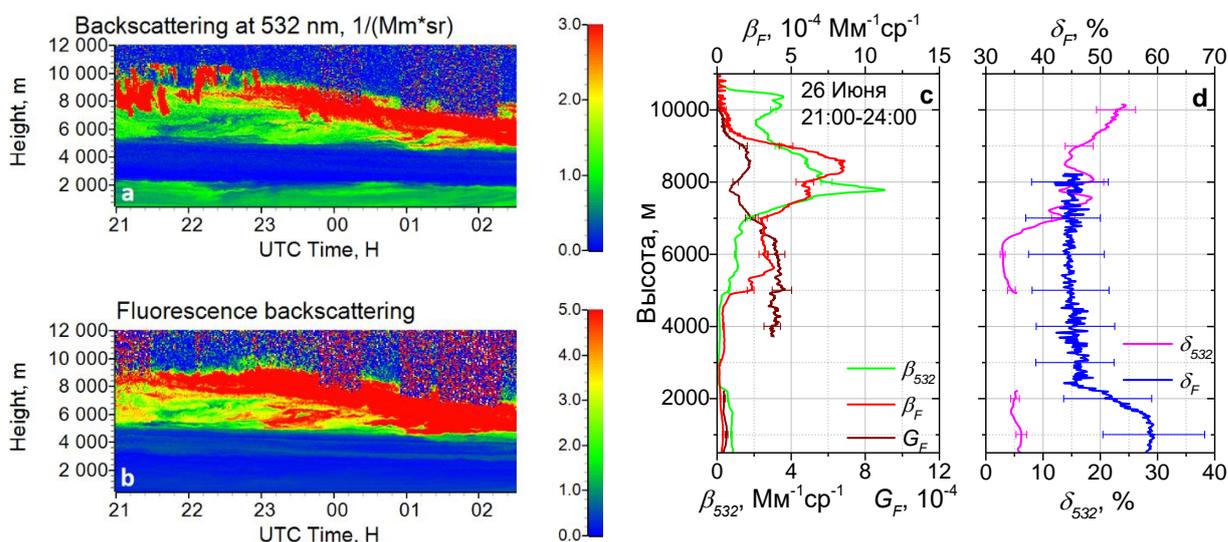


Рисунок 26 – Дымовой шлейф в ночь с 26 на 27 июня 2023 г. Пространственно-временные распределения коэффициента обратного рассеяния β_{532} (a) и флуоресценции β_F (в $10^{-4} \text{ Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1}$) (b). Вертикальные профили коэффициентов обратного рассеяния аэрозоля β_{532} и флуоресценции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

Как обсуждалось в публикациях [10] и [33], эффективность флуоресценции дыма транспортируемого через Атлантику варьируется в пределах $(2,5-5,5) \cdot 10^{-4}$, что, вероятно, связано с изменениями в составе дыма и в условиях переноса а атмосфере. Однако, во время пожаров в Альберте наблюдалось несколько шлейфов дыма с высокими показателями G_F . Наибольшая эффективность флуоресценции наблюдалась в ночь с 16 на 17

июня 2023 г. Вертикальные профили параметров аэрозоля для этого эпизода показаны на рисунке 27. Интенсивные слои дыма с обратным флуоресцентным рассеянием, превышающим $10,0 \cdot 10^{-4} \text{ Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1}$, наблюдались в диапазоне высот 7,0-9,0 км. Коэффициент деполяризации флуоресценции составляет около 50% во всем шлейфе, и процесс образования льда (как и на рисунке 26d) не влияет на δ_F . Так, в мае-июне 2023 г. сильные вариации G_F в диапазоне $(2,5-10,0) \cdot 10^{-4}$ сопровождались относительно небольшими вариациями δ_F в интервале 45-55%.

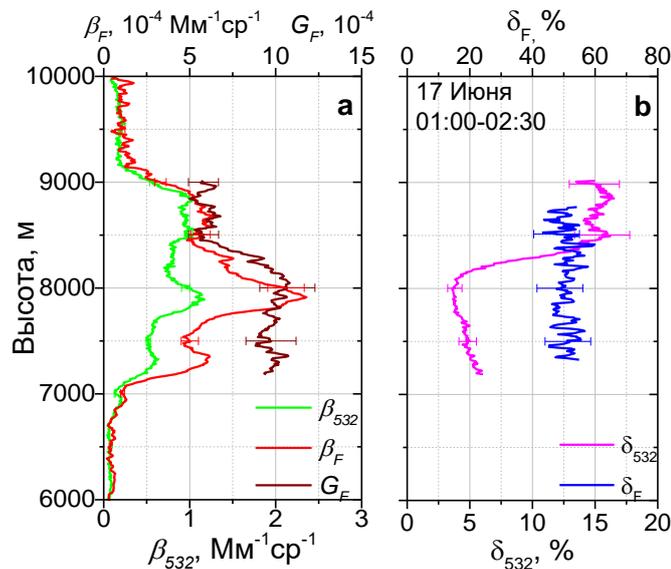


Рисунок 27 – Вертикальные профили коэффициентов обратного рассеяния β_{532} и флуоресценции β_F , эффективности флуоресценции G_F (a) и коэффициентов деполяризации δ_{532} , δ_F (b) в ночь 16-17 июня 2023 г. за период 01:00-02:30 UTC.

Известно, что в верхней тропосфере и нижней стратосфере коэффициент деполяризации дыма δ_{532} может достигать до 15-20% [54] – [56], [86]. Высокие значения коэффициента деполяризации обычно объясняют сложной внутренней структурой частиц дыма [87]. Два эпизода на этих высотах, где были обнаружены высокие значения δ_{532} , 28-29 мая и 3-4 июня 2023 г., показаны на рисунке 28. 28-29 мая можно различить три слоя дыма на высотах $\sim 3,5$, 6,5 и 11,5 км. Высокие коэффициенты деполяризации, достигающие 40% на высотах 9,8-10,5 км, обусловлены присутствием ледяных облаков. В нижних слоях дыма на высоте от 3,5 до 6,5 км деполяризация частиц не

превышает 8%, тогда как в слое дыма выше 11 км δ_{532} возрастает до 15%. Высокие значения δ_{532} , измеряемые в верхней тропосфере и нижней стратосфере, совпадают с увеличением G_F и деполаризации флуоресценции δ_F до $7,0 \cdot 10^{-4}$ и 70% соответственно. Аналогичное поведение наблюдалось 3-4 июня, когда коэффициент деполаризации δ_{532} на высоте выше 11,5 км увеличивался до 15% одновременно с увеличением G_F и δ_F до $9,5 \cdot 10^{-4}$ и 70% соответственно. Изменение морфологии частиц, в принципе, может влиять на коэффициент деполаризации флуоресценции. Другое возможное объяснение состоит в том, что на границе тропосферы и стратосферы может меняться не только структура частиц, но и состав. На текущем этапе исследований мы не можем сделать вывод о механизмах, объясняющих увеличение деполаризации флуоресценции на этих высотах.

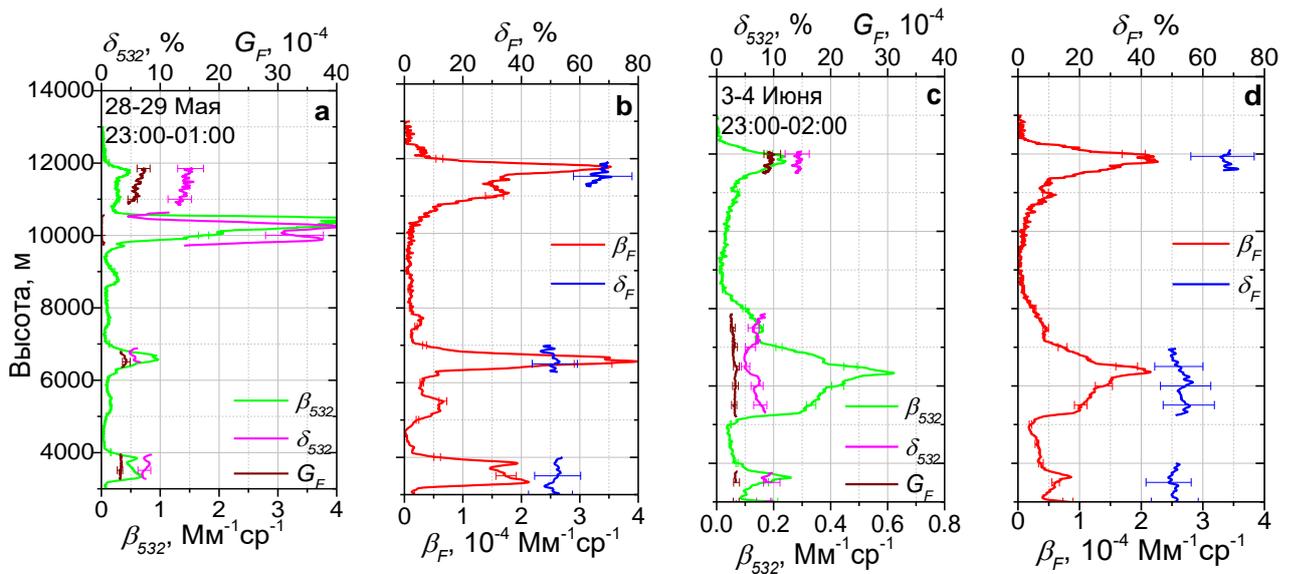


Рисунок 28 – Вертикальные профили коэффициента обратного рассеяния β_{532} , коэффициента деполаризации частиц δ_{532} , эффективности флуоресценции G_F (а, с) и обратного флуоресцентного рассеяния β_F и коэффициента деполаризации флуоресценции δ_F (b, d) для двух эпизодов дыма 28-29 мая 2023 г. и 3 – 4 июня 2023 г.

В процессе проведения исследований не наблюдалось влияния относительной влажности на деполаризацию флуоресценции дыма. Однако, внутри пограничного слоя гигроскопический рост частиц сопровождался увеличением δ_F . В период с 9 по 16 июня 2023 года в пограничном слое

наблюдались многочисленные эпизоды гигроскопического роста. Один из таких эпизодов, в ночь с 12 на 13 июня, показан на рисунке 29. На данном рисунке относительная влажность внутри пограничного слоя увеличивается с 50% до 70%, что приводит к увеличению β_{532} вблизи границы пограничного слоя. Коэффициент деполяризации δ_{532} уменьшается с высотой, так как частицы в процессе гигроскопического роста становятся более сферическими. Однако, коэффициент деполяризации флуоресценции внутри пограничного слоя возрастает с 50 до 70%.

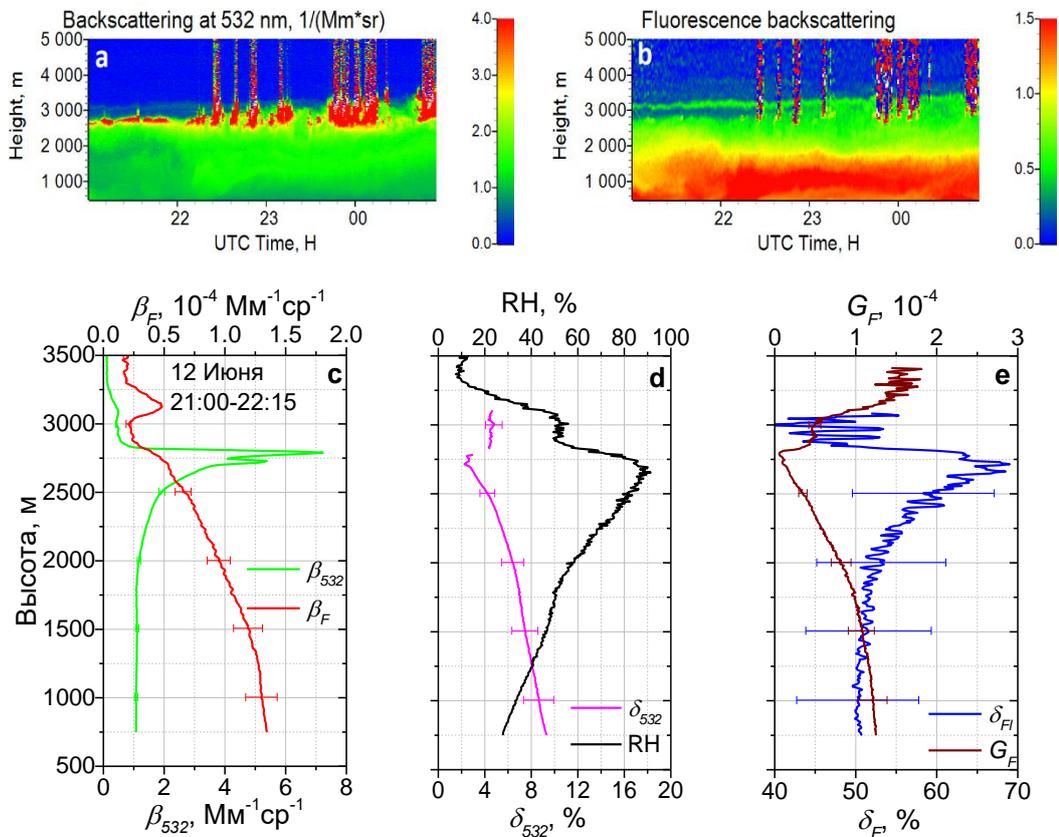


Рисунок 29 – Гигроскопический рост частиц в пограничном слое в ночь с 12 на 13 июня 2023 г. Пространственно-временные распределения коэффициента обратного аэрозольного рассеяния β_{532} (a) и обратного флуоресцентного рассеяния β_F (в $10^{-4} \text{ Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1}$) (b). Вертикальные профили коэффициентов обратного рассеяния аэрозоля β_{532} и флуоресценции β_F (c); коэффициента деполяризации частиц δ_{532} и относительной влажности RH (d); коэффициента деполяризации флуоресценции δ_{FI} и эффективности флуоресценции G_F (e) за период времени 21:00-22:15 UTC.

Результаты, полученные в течение 9-16 июня, показывающие зависимость δ_{FI} и δ_{532} от относительной влажности, приведены на рисунке 30.

Деполяризация частиц δ_{532} систематически уменьшается с увеличением относительной влажности, но 16 июня эта зависимость не является монотонной, что может быть связано с изменением состава аэрозоля с высотой. При низкой относительной влажности (ниже 30%) коэффициент деполяризации флуоресценции составляет около 50%. Однако при относительной влажности около 90% δ_F возрастает до 70%. Одним из возможных объяснений поведения δ_F может быть увеличение вращательной подвижности молекул в процессе поглощения частицами воды.

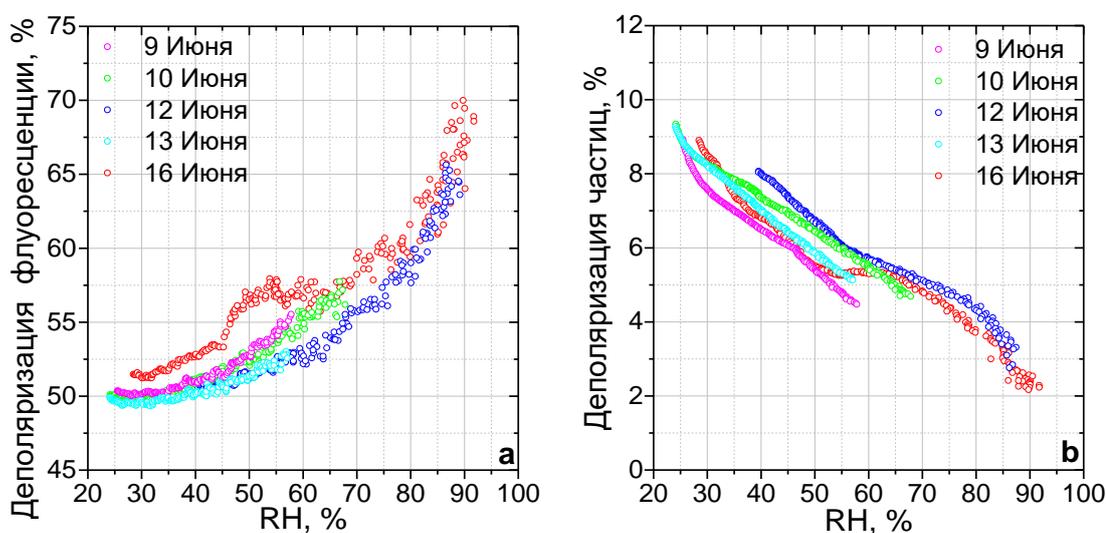


Рисунок 30 – Зависимости коэффициента деполяризации флуоресценции δ_F (a) и коэффициента деполяризации частиц δ_{532} (b) от относительной влажности (RH) в пограничном слое для измерений 9, 10, 12, 13, 16 июня 2023 г.

4.3 Оценка погрешности зондирования водяного пара рамановским лидаром, обусловленной флуоресценцией аэрозоля, на основе измерений

Как было показано в разделе 4.1, измерение коэффициента деполяризации в канале водяного пара дает возможность оценить влияние флуоресценции в этом канале. Соответствующие измерения проводились в мае – июне 2023 г. Вертикальные профили коэффициента деполяризации

водяного пара вместе с \tilde{n}_W , β_{532} , β_F и G_F , измеренные 8-9 и 10-11 июня 2023 показаны на рисунке 31. 8-9 июня аэрозольный слой тянется до 5 км. Ниже 3,0 км эффективность флуоресценции составляет около $1,0 \cdot 10^{-4}$, но выше 3 км G_F возрастает до $2,5 \cdot 10^{-4}$, что указывает на наличие дыма. Коэффициент деполяризации в канале водяного пара составляет около 2% в диапазоне высот 1,5–3,5 км. В диапазоне высот, где вклад флуоресценции был незначительным, значения $\tilde{\delta}_W$ были равны 1,8%-2,0%. Коэффициент деполяризации δ_W мал, поскольку интерференционный фильтр в канале водяного пара выделяет только самые сильные линии Q-ветви, а большая часть вращательных линий блокируется. Вклад флуоресценции становится заметен выше 3,5 км, где n_W падает, что приводит к увеличению $\tilde{\delta}_W$ до ~3%. Также, заметно увеличение $\tilde{\delta}_W$ до 2,2% на высоте ниже 1,0 км, где обратное рассеяние флуоресценции увеличивается. Аналогичные значения $\tilde{\delta}_W$ наблюдались 10-11 июня, когда коэффициент деполяризации возрастал до 2,5% внутри слоя дыма, обнаруженного на высоте ~3,75 км и ниже 2,0 км.

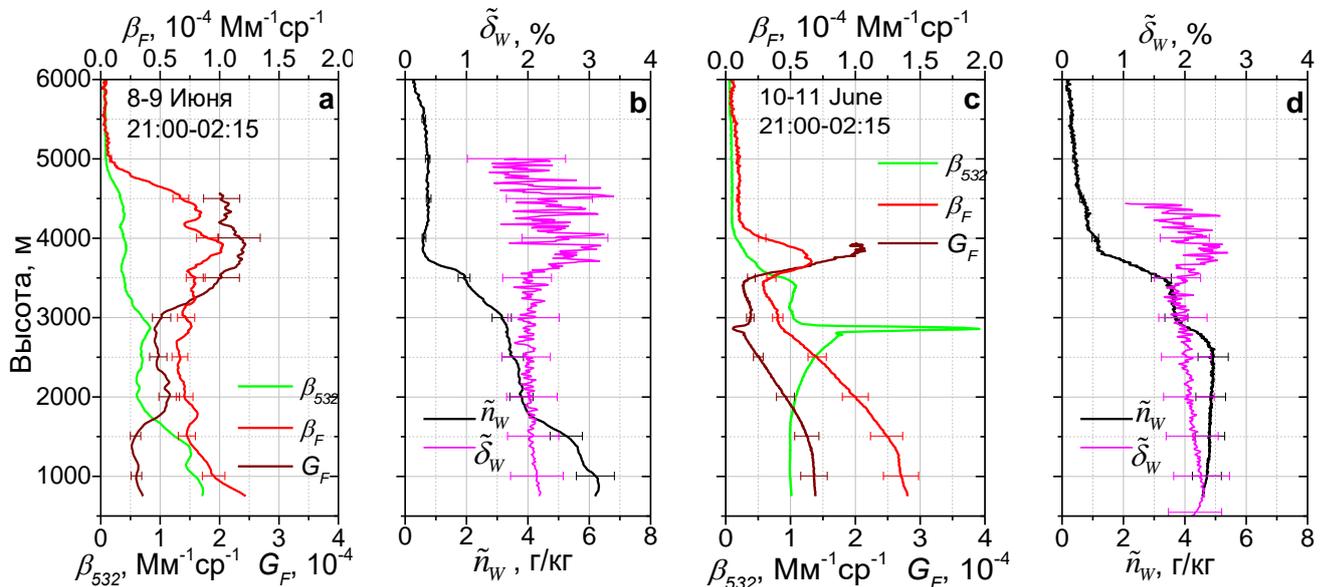


Рисунок 31 – Влияние флуоресценции аэрозоля на коэффициент деполяризации водяного пара с 8 на 9 и с 10 на 11 июня 2023 года. Вертикальные профили β_{532} , β_F , G_F (а, с) и коэффициента деполяризации $\tilde{\delta}_W$ и смешивания водяного пара \tilde{n}_W (b, d).

Как обсуждалось в разделе 4.1, вклад флуоресценции в содержание водяного пара можно получить из уравнения (51), если измерить $\tilde{\delta}_W$ и δ_F . На рисунке 32 представлено моделирование относительной погрешности, вносимой флуоресценцией в содержание водяного пара, в зависимости от $\tilde{\delta}_W$. Расчеты выполнены для коэффициента деполяризации флуоресценции $\delta_F=50\%$, 60% , 70% . Коэффициент деполяризации в рамановском канале водяного пара в отсутствие флуоресценции принимался равным $\delta_W=2\%$. При коэффициенте деполяризации $\tilde{\delta}_W$ ниже 3% относительная погрешность $\frac{\Delta n_W}{\tilde{n}_W}$ не превышала 3% . Как будет указано далее, сечение флуоресценции городского аэрозоля увеличивается в коротковолновой области, поэтому можно ожидать увеличения влияния флуоресценции городского аэрозоля на измерение пара. Однако, на практике мы не наблюдали значений $\tilde{\delta}_W$ в пограничном слое, превышающих 3% , поэтому вклад флуоресценции аэрозоля на малых высотах не является критичным. Причина заключается в малой эффективности флуоресценции городского аэрозоля (примерно на порядок ниже, чем у дыма) и более высоком содержании водяного пара по сравнению с верхней тропосферой.

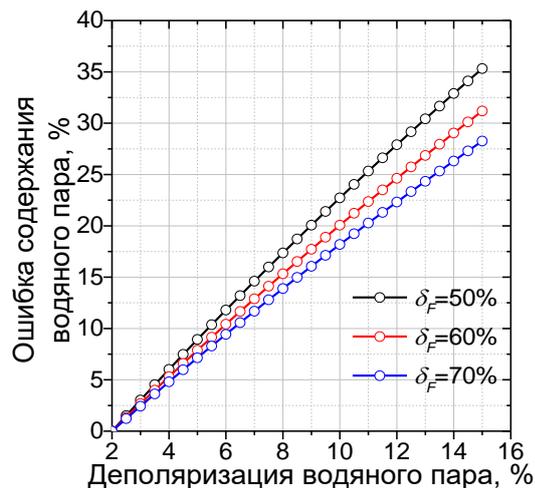


Рисунок 32 – Относительная погрешность определения содержания водяного пара (WVMR) $\frac{\Delta n_W}{\tilde{n}_W}$, вызванная флуоресценцией, как функция коэффициента деполяризации водяного пара $\tilde{\delta}_W$ для трех значений коэффициента деполяризации флуоресценции $\delta_F=50\%$, 60% , 70% . Предполагается, что $\delta_W=2\%$.

Отношение сигнал/шум для профилей содержания водяного пара, на рисунке 31, уменьшается в верхней тропосфере, и параметр $\tilde{\delta}_W$ не может быть определен. Для коррекции влияния флуоресценции в верхней тропосфере использовался параметр χ вычисленный из $\tilde{\delta}_W$ на малых высотах. При таком подходе предполагается, что соотношение между сечениями флуоресценции для дин волн 466 нм и 408 нм не зависит от высоты. Как обсуждалось ранее, такое предположение может привести к погрешности в расчете Δn_W , и на данном этапе не приводится коррекция профилей водяного пара, а лишь приводим оценку погрешности, обусловленной влиянием флуоресценции.

Для расчета χ необходимы эпизоды, в которых наблюдаются большие значения $\tilde{\delta}_W$, что обычно имеет место в слоях дыма с малой влажностью. Соответствующие эпизоды от 26-27 мая и 5-6 июня 2023 г. приведены на рисунке 33. 26-27 мая на высоте 3,5 км наблюдается слой дыма, характеризуемый высоким коэффициентом флуоресцентного рассеяния (β_F до $5 \cdot 10^{-4} \text{ Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1}$) и низким значением $\tilde{\rho}_W$ (ниже 0,2 г/кг). Коэффициент деполаризации флуоресценции составляет около 47%, а в середине этого слоя значение $\tilde{\delta}_W$ увеличивается от 2% до 12%. Параметр χ , рассчитанный из (49) внутри этого слоя дыма, составляет около $2 \cdot 10^{-3} \text{ (г/кг)/(Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1})$. 5-6 июня коэффициент деполаризации $\tilde{\delta}_W$ в слое дыма на высоте 3,5 км достигает значения 10%, и значение $\chi=2 \cdot 10^{-3}$ близко к измеренному 26-27 мая. Параметры χ , полученные для нескольких эпизодов, варьируются в диапазоне $(2-2,5) \cdot 10^{-3} \text{ (г/кг)/(Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1})$. Для оценки Δn_W использовалось среднее значение $\chi=2,3 \cdot 10^{-3} \text{ (г/кг)/(Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1})$. Следует отметить, что это значение может быть использовано только для дыма, тогда как для частиц в пограничном слое значение χ может быть другим.

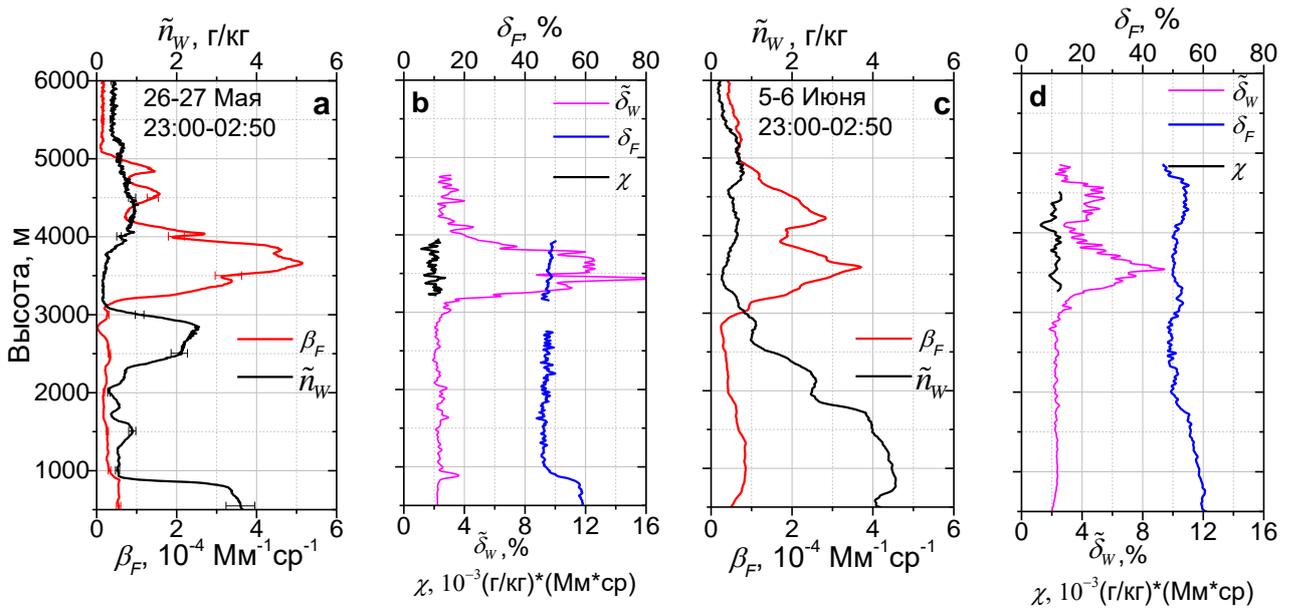


Рисунок 33 – Измерения в ночь с 26 на 27 мая и с 5 на 6 июня 2023 г. Вертикальные профили (а, с) коэффициента обратного рассеяния флуоресценции β_F и содержания водяного пара \tilde{n}_W (b, d). Коэффициенты деполаризации водяного пара $\tilde{\delta}_W$ и флуоресценции δ_F вместе с параметром χ , описывающим вклад флуоресценции в сигнал, измеряемый в канале водяного пара.

На рисунке 34 представлены вертикальные профили содержания водяного пара, коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния и погрешности Δn_W , вносимой флуоресценцией в измерение содержания водяного пара 26-27 мая, 28-29 мая и 16-17 июня 2023 г. Мощностные характеристики используемой лидарной системы не позволяют проводить прецизионные измерения водяного пара на высотах свыше 10 км, тем не менее на рисунке 34 хорошо заметно увеличение $\tilde{\delta}_W$ в слоях дыма. Напомним, что уравнение (50) для Δn_W содержит коэффициент $\frac{1}{n_R}$ (относительное изменение концентрации азота), поэтому вклад флуоресценции в измерение содержания водяного пара увеличивается с высотой. Погрешности $\frac{\Delta n_W}{\tilde{n}_W}$ для всех рассматриваемых эпизодов показаны на рисунке 34d. 26-27 и 28-29 мая на высоте 11 км погрешность составляет порядка 100%. 16 июня слой дыма расположен ниже на высоте 9 км и погрешность составляет около 50%. Данные результаты показывают, что флуоресценция дыма может существенно

влиять на измерение водяного пара рамановским лидаром. Предложенный подход, основанный на анализе коэффициента деполяризации сигнала водяного пара, позволяет оценивать соответствующие погрешности и проводить их коррекцию.

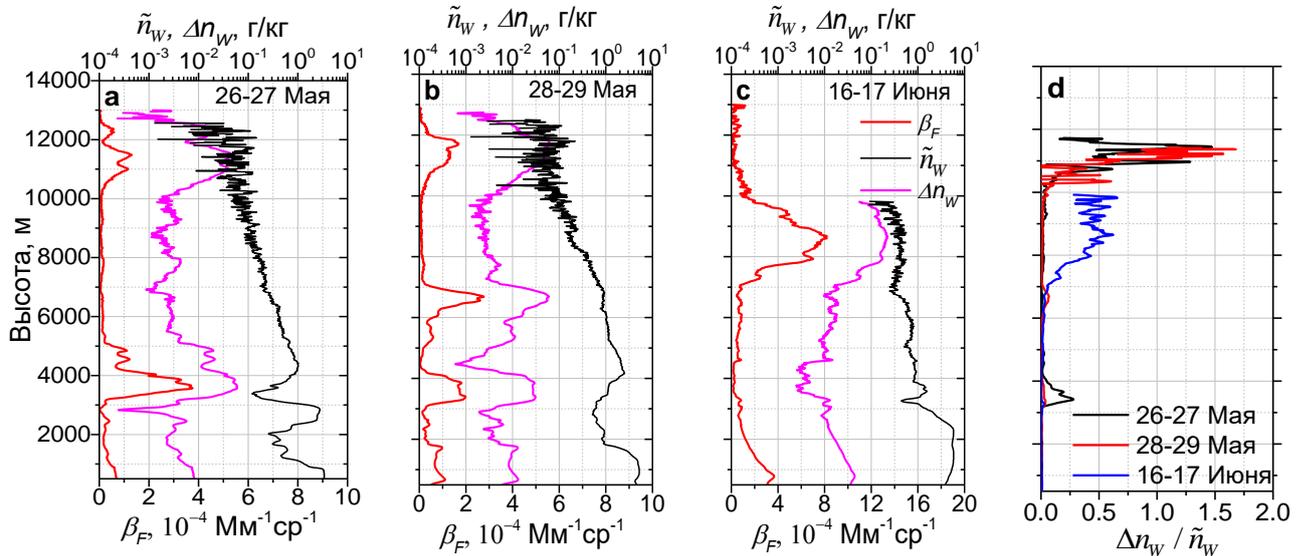


Рисунок 34 – Влияние флуоресценции дыма на измерения водяного пара. Вертикальные профили коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния β_F , содержание водяного пара \tilde{n}_W и погрешность измерения содержания водяного пара Δn_W , полученные для эпизодов 26-27 мая (a), 28-29 мая (b) и 16-17 июня (c) 2023 г. в период времени 21:00-02:30 UTC. Относительная погрешность $\frac{\Delta n_W}{\tilde{n}_W}$, вызванная флуоресценцией дыма для трех эпизодов (d).

4.4 Выводы к разделу 4

1. Проведенный анализ показал, что эффективность флуоресценции дыма в нижней и средней тропосфере варьируется в диапазоне $(2,5-10,0) \cdot 10^{-4}$. При этом, в верхней тропосфере в отдельных эпизодах наблюдалось увеличение соответствующего коэффициента деполяризации до 70%.

2. Внутри пограничного слоя коэффициент деполяризации флуоресценции был выше, чем у дыма, и варьировался в диапазоне 50–70%.

Более того, коэффициент деполаризации флуоресценции городского аэрозоля зависит от относительной влажности, и, в отличие от упругого рассеяния, δ_F увеличивается с ростом относительной влажности.

3. Коэффициент деполаризации обратного рамановского рассеяния водяного пара при отсутствии флуоресценции достаточно мал и составляет $\delta_w = 2 \pm 0,5$ %. Таким образом, величина δ_w чувствительна к присутствию флуоресценции и может быть использована для оценки соответствующей погрешности.

5 Исследование аэрозоля с помощью многоволнового флуоресцентного лидара

Данный раздел написан на основе результатов, опубликованных в работах “Multiwavelength fluorescence lidar observations of smoke plumes” и “Fluorescence properties of long-range transported smoke: Insights from five-channel lidar observations over Moscow during the 2023 wildfire season”.

5.1 Описание конструкции лидара

Источником излучения флуоресцентного лидара является твердотельный лазер Nd:YAG с генератором третьей гармоники. Энергия в импульсе составляет 80 мДж на длине волны 355 нм при частоте повторения 20 Гц. Рассеянное излучение собирается телескопом Ньютона с апертурой 400 мм. Сигналы с детектора оцифровываются с помощью регистраторов Licel. Оптическая схема приемного модуля представлена на рисунке 35. Система предназначена для регистрации сигналов упругого рассеяния на длине волны 355 нм, рамановского рассеяния азота на длине волны 387 нм и обратного флуоресцентного рассеяния в пяти спектральных интервалах. Эти интервалы выделяются дихроичными спектроделителями и широкополосными интерференционными фильтрами (производства Alluxa). Центральные длины волн и ширины полос пропускания этих каналов флуоресценции составляют соответственно: 438/29, 472/32, 513/29, 560/40, 614/54 нм. Пропускание фильтров превышает 95% в центре полосы, а подавление оптического сигнала вне полосы составляет выше OD6. Для улучшения подавления упругого

обратного рассеяния в каждом канале последовательно установлены два фильтра.

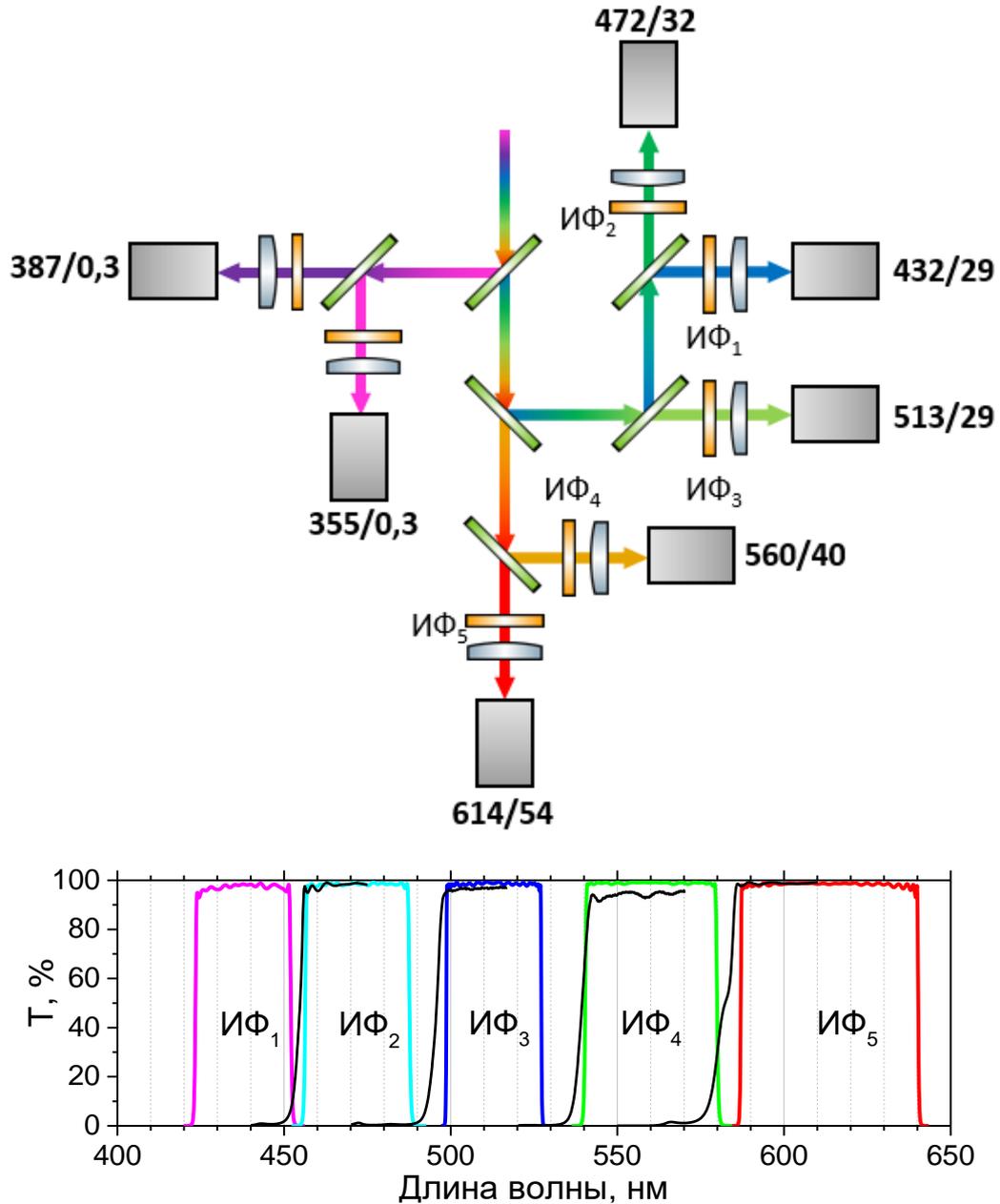


Рисунок 35 – Оптическая схема приёмного модуля лидара и спектр пропускания интерференционных фильтров ИФ₁-ИФ₅ в флуоресцентных каналах. Черные линии показывают пропускание 45-градусных дихроичных светоделителей, используемых для разделения спектральных компонентов флуоресценции.

Лазерное излучение с длиной волны 532 нм может вызвать дополнительную флуоресценцию аэрозоля в длинноволновых каналах. Поэтому, в лидаре используется только излучение третьей гармоники (355 нм),

а компоненты с длинами волн 532 и 1064 нм удаляются дихроичными зеркалами. Как следует из рисунка 35, длина волны 532 нм находится вне полосы пропускания фильтров, что предотвращает попадание остаточного излучения второй гармоники в каналы флуоресценции. Следует отметить, что колебательный обертона рамановского рассеяния азота при 424,4 нм находится в полосе пропускания канала 438 нм. В соответствии с результатами, опубликованными Knippers et al. [88], интенсивность этого обертона примерно на 3 порядка ниже интенсивности основного колебания азота. Поведенные оценки показывают, что для городского аэрозоля с коэффициентом обратного аэрозольного рассеяния $\beta_{355}=1 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$, вклад обертона азота в сигнал флуоресценции в канале 438 нм составляет менее 5%.

Во всех каналах использовались ФЭУ R9880U-01, кроме канала 614 нм, где был установлен ФЭУ R9880-20 из-за его более высокой чувствительности в красной области спектра. Дневная засветка позволяет проводить измерения флуоресценции только в ночное время. Все измерения, представленные в данном исследовании, проводились из окна лаборатории под углом 48° к горизонту, поскольку это максимальный возможный угол.

Коэффициент экстинкции и обратного рассеяния аэрозоля на длине волны 355 нм рассчитывались на основе рамановских измерений, как описано в разделе 2.1. Дополнительная информация о параметрах атмосферы бралась из измерений радиозондов, проводимых в Центральной аэрологической обсерватории (ЦАО), Долгопрудный, расположенной примерно в 50 км от места измерений. Следует отметить, что в используемой конфигурации лидара измерения коэффициента деполяризации не проводились.

Коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния β_{FL} рассчитывается из отношения сигнала флуоресценции к сигналу рамановского рассеяния азота (387 нм), как описано в главе 1.4. Атмосферное пропускание сигнала флуоресценции рассчитывается для длин волн, соответствующих центрам

полос пропускания интерференционных фильтров в каналах флуоресценции. Погрешность, обусловленная игнорированием спектральной зависимости экстинкции Рэлея внутри полосы пропускания фильтра, является наибольшей для коротковолнового канала (438 нм). Расчеты показывают, что на высоте 4000 м соответствующая погрешность β_{F438} составляет менее 4 %. Для коррекции погрешностей, связанных с дифференциальной экстинкцией аэрозоля, необходимо предполагать величину параметра Ангстрема для коэффициентов экстинкции аэрозоля $A_{\lambda_1/\lambda_2}^\alpha$. В частности, для дыма переносимого через Атлантику, параметр Ангстрема для пары длин волн 355 и 532 нм составляет около 1,0 [33]. Это значение A_α было использовано при анализе данных в диссертационном исследовании. Как отмечалось в разделе 2.4 для расчета $\beta_{F\lambda}$ также необходимо знать дифференциальное сечение рамановского рассеяния азота σ_R . Значение $\sigma_R=2,744 \cdot 10^{-30} \text{ см}^2 \text{ ср}^{-1}$ для 355 нм было взято из [89].

Для характеристики флуоресцентных свойств частиц измеряются коэффициенты обратного флуоресцентного рассеяния ($\beta_{F\lambda}$) и эффективности флуоресценции ($G_{F\lambda}$) для каждого канала с центром на длине волны λ . $G_{F\lambda}$ представляет собой отношение $\beta_{F\lambda}$ к коэффициенту обратного аэрозольного рассеяния β_{355} . Эти параметры использовались в исследованиях с одноканальным флуоресцентным лидаром (раздел 3) и соответствуют значениям, интегрированным по полосе пропускания канала. Однако для анализа многоканальных наблюдений, где ширина полосы пропускания (D_λ) варьируется от канала к каналу, значения $G_{F\lambda}$ и $\beta_{F\lambda}$ должны быть нормированы на D_λ . Таким образом, в данной работе мы используем параметры «коэффициент спектрального обратного флуоресцентного рассеяния» $V_\lambda = \frac{\beta_{F\lambda}}{D_\lambda}$ и «спектральная эффективность флуоресценции» $G_\lambda = \frac{V_\lambda}{\beta_{355}}$. Данные параметры измеряются в следующей единицах измерения: $\text{Тм}^{-1} \text{ ср}^{-1} \text{ нм}^{-1}$ и нм^{-1} соответственно. Все профили $\beta_{F\lambda}$, G_λ и V_λ , представленные в этом исследовании, были сглажены методом Савицкого-Голея с использованием

полинома второго порядка с семью точками. В дальнейшем, в данной главе, параметры G_λ и B_λ означают «эффективность флуоресценции» и «коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния» соответственно.

Для описания содержания дыма в атмосфере, важно знать объемную (V_S) и массовую (M_S) концентрацию частиц дыма. Одним из самых простых способов оценки объема частиц на основе лидарных измерений является использование коэффициента преобразования экстинкции в объем C_V^i для конкретного типа аэрозоля i , как предложено [82] – [85]. Эти коэффициенты для дыма, пыли и городского аэрозоля на длине волны 532 нм получены на основе измерений AERONET.

$$V_i = \alpha_{532} \cdot C_V^i \quad (52)$$

В верхней тропосфере профили коэффициентов экстинкции не могут быть рассчитаны для слабых слоев дыма, но объем дыма V_S все же можно оценить из коэффициента обратного аэрозольного рассеяния, используя лидарное отношение S_{532}^S :

$$V_S = \beta_{532} \cdot S_{532}^S \cdot C_V^i \quad (53)$$

Во время сезона лесных пожаров 2023 года, имело место множество эпизодов, когда дым, переносимый через Атлантику, опускался до пограничного слоя и смешивался с городским аэрозолем. Как уже упоминалось, флуоресцентные измерения позволяют разделить фракции, соответствующие дыму и городскому аэрозолю. Такое разделение может быть проведено с использованием эффективности флуоресценции, поскольку у дыма эта эффективность почти на порядок превосходит соответствующую величину для городского аэрозоля [10]. Кроме того, как будет показано в главе 5.6, для разделения оказывается возможным использовать различие в их спектрах флуоресценции.

На основании результатов, представленных в публикациях [82] и [85] в наших оценках мы будем использовать коэффициент пересчета $C_V^S=0,13$ $\text{мкм}^3\text{см}^{-3}/\text{Мм}^{-1}$ для дыма и $C_V^U=0,35$ $\text{мкм}^3\text{см}^{-3}/\text{Мм}^{-1}$ для городского аэрозоля.

Средние значения лидарных отношений составляют $S_{532}^S=64$ ср и $S_{532}^U=62$ ср [12, 33]. Используемый лидар измеряет коэффициент обратного рассеяния на длине волны 355 нм. Величину β_{355} можно пересчитать в β_{532} , используя отношение $CR=\beta_{355}/\beta_{532}$ (в англоязычной литературе – color ratio). В частности, для дыма в верхней тропосфере, CR составляет около 2,2. Объемную концентрацию можно преобразовать в массовую, используя плотность $\rho_S=1,15$ г/см³ для дыма [85] и плотность сульфатных частиц $\rho_U=1,5$ г/см³ для городского аэрозоля. Таким образом, объемную концентрацию (в мкм³/см³) и массовую концентрацию (в мкг/м³) дыма можно оценить, умножив β_{355} (в Мм⁻¹ср⁻¹) на коэффициенты 3,8 и 4,4 соответственно.

Чувствительность фотокатода R9880U-01 в диапазоне 387–438 нм изменяется менее чем на 10 %, поэтому мы пренебрегаем этим изменением и рассчитываем относительную чувствительность ФЭУ, как описано в главе 1.4. Относительная чувствительность остальных каналов флуоресценции по отношению к каналу 438 нм была рассчитана на основе лабораторных измерений с использованием вольфрамо-галогенной лампы Thorlabs QTH10/M с цветовой температурой 2800 К. Предполагалось, что спектр лампы соответствует излучению черного тела. Излучательная способность лампы рассчитывалась по формуле Планка. Соответствующий график для температуры 2800 К представлен на рисунке 36. Как следует из рисунка, максимальное значение излучательной способности происходит на длине волны примерно 1000 нм.

Для калибровки телескоп был установлен горизонтально, а лампа была размещена на расстоянии 4 м от входной апертуры телескопа. Экран, установленный перед источником, выделял центральную часть излучения лампы. Данная процедура была проведена 5 раз в течение года. Вариации калибровочных коэффициентов составили менее 15% для канала 614 нм и менее 10% для остальных каналов. Таким образом, к погрешностям расчета β_{Fl} относятся систематические погрешности процедуры калибровки (ϵ_{cal}), и

статистические погрешности лидарных измерений (ϵ_{st}). Для вертикальных профилей обратного флуоресцентного рассеяния мы не приводим систематические погрешности калибровки, при этом значения ϵ_{cal} учитываются при анализе спектров обратного флуоресцентного рассеяния.

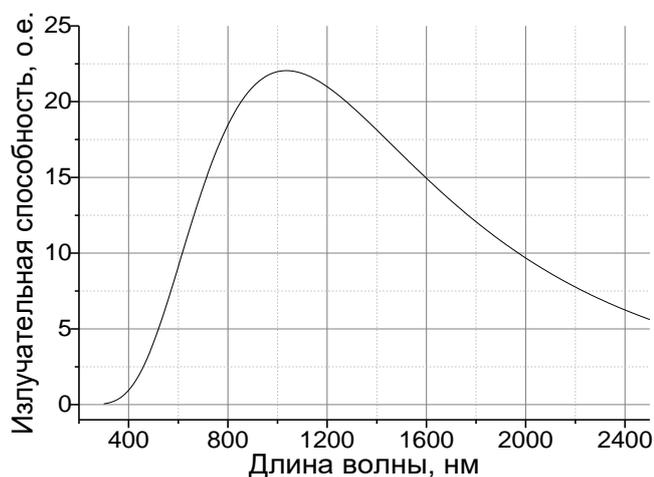


Рисунок 36 – Излучательная способность чёрного тела с цветовой температурой 2800 К.

5.2 Исследование спектра флуоресценции дымовых шлейфов во время лесных пожаров в Рязанской области в 2022 году

В августе 2022 года имели место интенсивные лесные пожары в Рязанской области (около 160 км к юго-востоку от Москвы) и соответствующие дымовые шлейфы наблюдались над Москвой. Время переноса шлейфов составляло менее 2 суток; таким образом, дым можно считать свежим.

5.2.1 27-28 августа 2022

Обратные 2-дневные траектории рассчитанные в рамках модели NOAA HYSPLIT над Троицком 28 августа в 03:00, приведены на рисунке 37. Воздушные массы на высоте 1500 м, переносились над областью пожаров и, таким образом, должны содержать продукты горения биомассы. Относительная влажность, измеренная радиозондом в 00:00 UTC, составляла около 35% на высоте 1000 м и увеличивалась до 70% на высоте 3000 м.

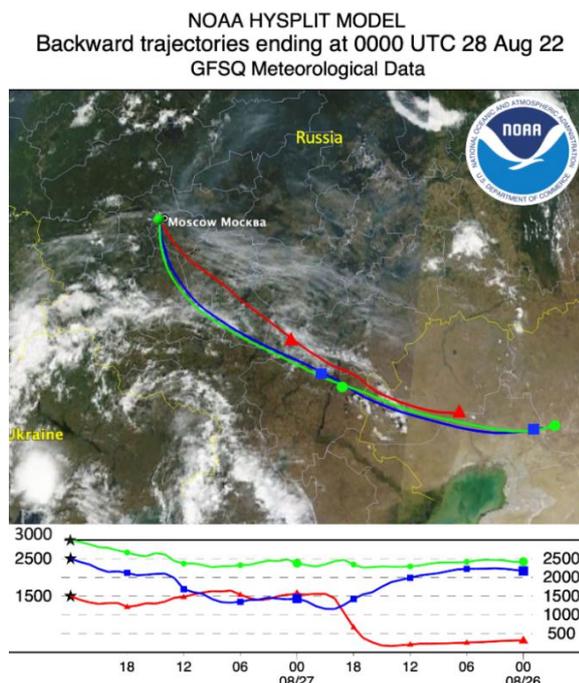


Рисунок 37 – 48-часовые обратные траектории рассчитанные в рамках модели NOAA HYSPLIT для воздушной массы над Троицком 28 августа в 00:00 UTC. Цветная карта представляет собой спутниковое изображение (MODIS Terra) земной поверхности для этого же периода времени.

Высотно-временная эволюция коэффициентов, обратного аэрозольного и флуоресцентного рассеяния (β_{355} и β_{F472}), а также эффективности флуоресценции G_{472} показаны на рисунке 38. Аэрозоль локализован ниже 3000 м, а выше 4000 м присутствуют облака. Максимальные значения обратного флуоресцентного рассеяния наблюдались внутри пограничного слоя до 23:30. Эффективность флуоресценции при этом превышала $2,5 \cdot 10^{-4}$. После 23:30 G_{472}

снижается, но остается выше $1 \cdot 10^{-4}$, что может быть связано со смешиванием дыма с городским аэрозолем.

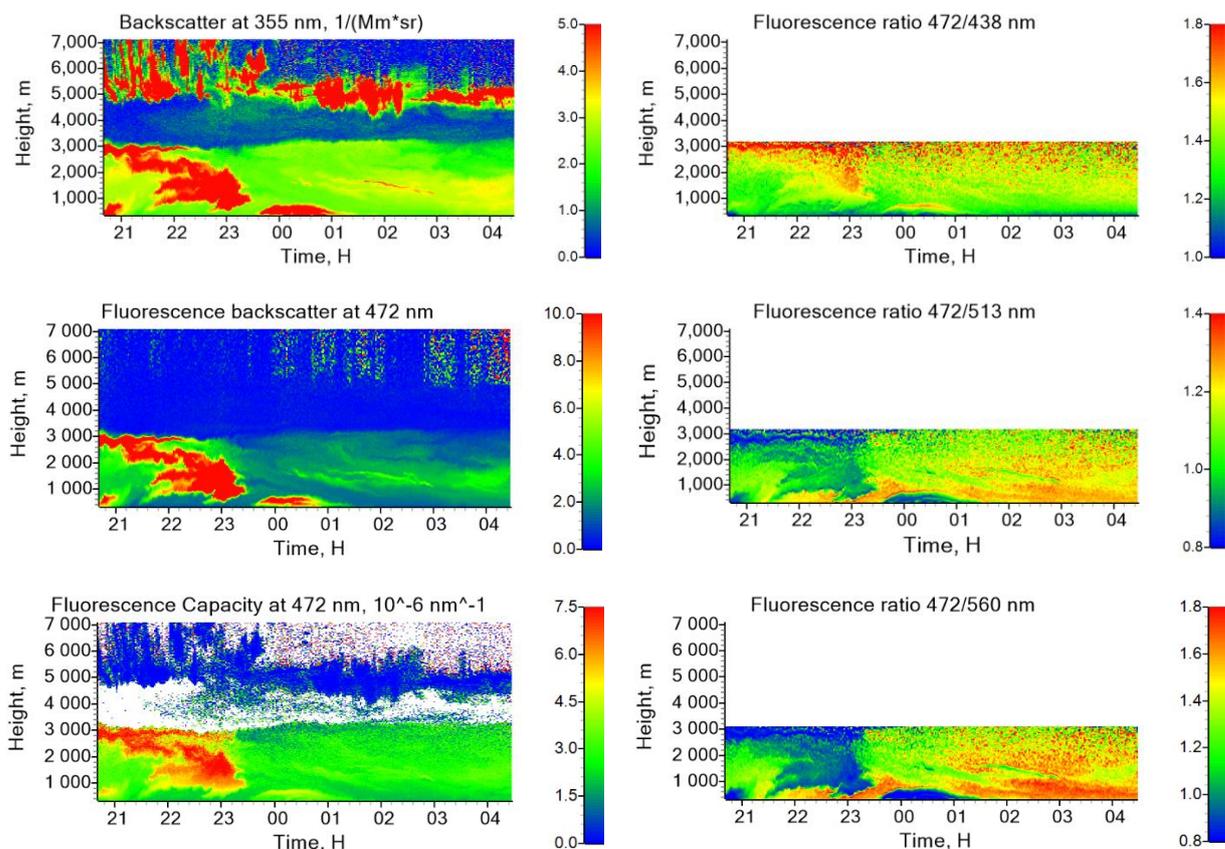


Рисунок 38 – Измерения в ночь с 27 на 28 августа 2022 г. (левая колонка) Высотно-временные распределения коэффициента обратного аэрозольного и флуоресцентного рассеяния (β_{355} и β_{F472}), а также и эффективности флуоресценции G_{438} нм. (правая колонка) Отношения коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния V_{472}/V_{438} , V_{472}/V_{513} , V_{472}/V_{560} .

Вертикальные профили коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния V_{λ} показаны на рисунке 39 для периода, соответствующего максимальной эффективности флуоресценции (19:00-20:00 UTC). Профили V_{472} , V_{513} , V_{560} схожи, что указывает на то, что спектр флуоресценции не демонстрирует значительных изменений в диапазоне 472-560 нм. Эффективность флуоресценции G_{472} превышает $2,0 \cdot 10^{-4}$ в интервале высот 1,0–2,5 км, где β_{355} и V_{λ} максимальны. Отношения V_{472}/V_{438} , V_{472}/V_{513} , V_{472}/V_{560} , V_{472}/V_{614} не демонстрируют высотной зависимости в диапазоне 1000-2500 м, следовательно, спектр флуоресценции в этом интервале не изменяется. На рисунке 40 показаны спектры флуоресценции для двух различных временных

интервалов. В интервале, соответствующем высокой эффективности флуоресценции (19:00-20:00 UTC), максимальное обратное флуоресцентное рассеяние измерено в канале 513 нм, что согласуется со спектром флуоресценции дыма, приведенным в [44]. Во втором интервале (23:00-01:00 UTC), когда эффективность флуоресценции ниже, флуоресценция максимальна при 472 нм, а на более длинных волнах она быстро убывает. На рисунке 40 показаны лидарные отношения (S_{355}) для обоих временных интервалов. Для первого интервала (с максимумом на длине волны 472 нм) S_{355} составляет около 60 ср, а для второго интервала S_{355} уменьшается примерно до 40 ср. Измеренное лидарное отношение 60 ср согласуется с типичными величинами для свежего дыма из работы [34], тогда как значения около 40 ср обычно характерны для городского аэрозоля при низкой относительной влажности. Максимальная эффективность флуоресценции дыма, показанная в работе [44] для диапазона 455–535 нм составляет около $8 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$. Это сопоставимо с нашим значением ($11 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$), рассчитанным по данным, представленным на рисунках 39 и 40, на длине волны 472 нм за период времени 19:00-20:00 UTC.

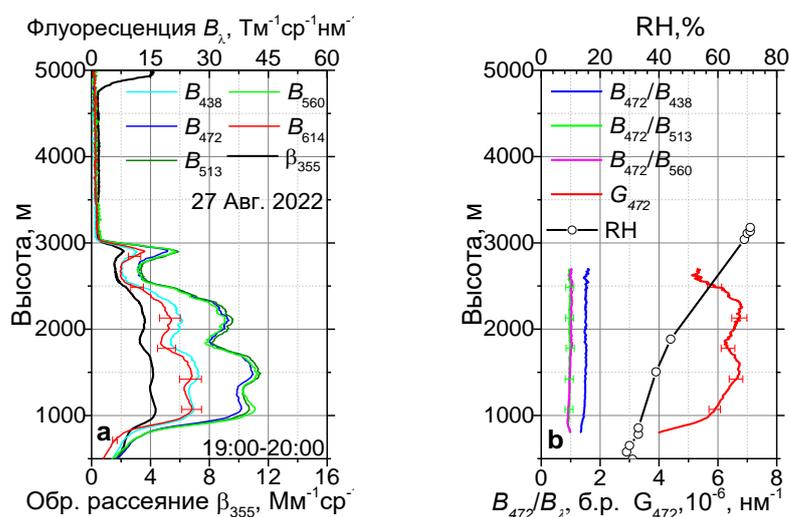


Рисунок 39 – Измерения 27 августа 2022 года за период 19:00-20:00 UTC. Коэффициенты обратного флуоресцентного рассеяния B_{λ} для 438, 472, 513, 560, 614 нм и коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (а). Отношения B_{472}/B_{438} , B_{472}/B_{513} , B_{472}/B_{560} , B_{472}/B_{614} и эффективность флуоресценции G_{472} (б). Символы показывают относительную влажность (RH), измеренную радиозондом в 00:00 UTC 28 августа.

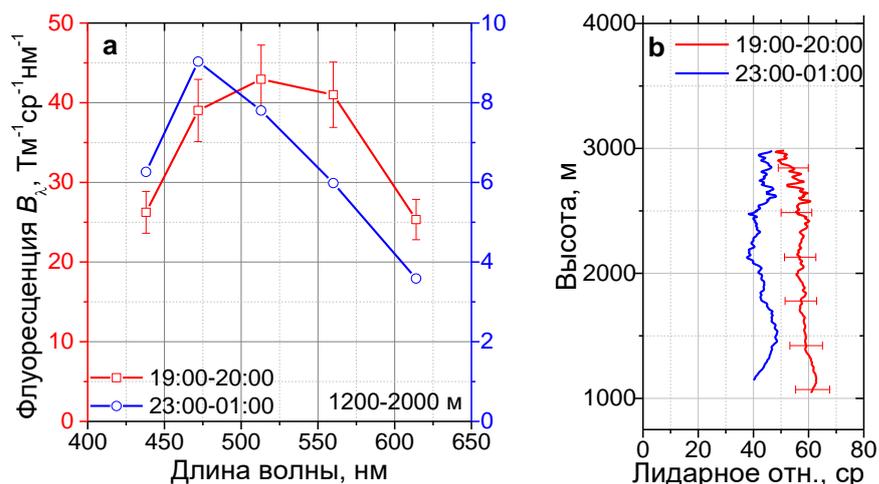


Рисунок 40 – Спектр обратного флуоресцентного рассеяния V_λ в ночь с 27 на 28 августа 2022 г. для интервалов 19:00-20:00 и 23:00-01:00 UTC. Результаты усреднены в интервале высот 1200-2000 м (а). Профили лидарных отношений на длине волны 355 нм для тех же временных интервалов (б).

Удобным индикатором изменения спектра флуоресценции с высотой является отношение коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния на разных длинах волн (например, V_{472}/V_λ). В частности, как показано на рисунке 38, отношения V_{472}/V_{513} , V_{472}/V_{560} близки к 1,0 внутри аэрозольного шлейфа (1000-3000 м). из этого можно сделать вывод, что спектр флуоресценции существенно не меняется в диапазоне 472 – 560 нм. Видно, что область с максимальной эффективностью флуоресценции G_{472} соответствует минимальным значениям отношений V_{472}/V_{513} и V_{472}/V_{560} . В то же время, отношение V_{472}/V_{438} оказывается менее чувствительным к изменениям G_{472} . Фактически внутри аэрозольного шлейфа это отношение увеличивается. Таким образом, можно выделить два типа частиц. Первый тип, имеющий высокую эффективность флуоресценции ($G_{472} > 2,0 \cdot 10^{-4}$) и лидарное отношение, близкое к 60 ср, можно отнести к «чистому» дыму. Второй тип, с более низкой эффективностью флуоресценции ($G_{472} \sim 1 \cdot 10^{-4}$) и меньшим лидарным отношением, может представлять собой смесь дыма и городского аэрозоля.

Лесные пожары прекратились в начале сентября, поэтому в течение сентября-октября преобладали городские аэрозоли. На рисунке 41 показаны соответствующие спектры флуоресценции, нормированные на B_{472} . Измерения проводились в период с 07:00 до 09:00 UTC и усреднялись в пределах пограничного слоя между 500 и 1000 м. Для городских аэрозолей флуоресценция на длинах волн более 472 нм быстро снижается, но наличие остаточного дыма может привести к некоторому увеличению B_λ в интервале 513–614 нм. Для городского аэрозоля эффективность флуоресценции G_{472} варьировалась в пределах $(0,1-0,4) \cdot 10^{-4}$, а лидарные отношения - в интервале 30-50 ср. Таким образом, смесь дыма и городского аэрозоля может объяснить измеренную изменчивость спектра флуоресценции на рисунке 40.

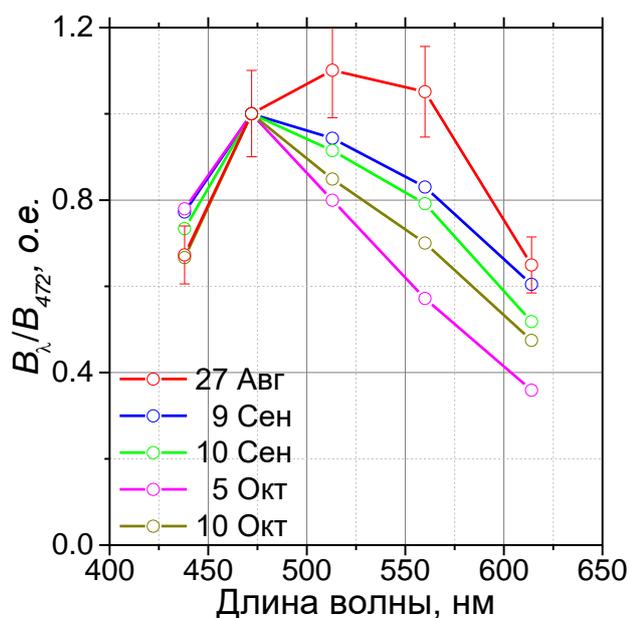


Рисунок 41 – Спектры флуоресценции, измеренные в сентябре – октябре 2022 г., когда лесные пожары уже закончились. Коэффициенты обратного флуоресцентного рассеяния B_λ были усреднены в интервале высот 500 – 1000 м и нормированы на B_{472} . Для сравнения также представлен спектр флуоресценции в дымовом шлейфе 27 августа.

5.2.2 17 августа 2022

Пространственно-временные интервалы, соответствующие высокой эффективности флуоресценции, анализировались для различных эпизодов. 17-18 августа 2022 г. с 18:00 до 19:00 UTC эффективность флуоресценции на длине волны G_{472} в аэрозольном шлейфе достигла значения выше $1,0 \cdot 10^{-4}$ (рисунок 42). В этот же промежуток времени отношение B_{472}/B_{560} снижается до 0,8. Вне шлейфа эффективность флуоресценции составляет $(0,4-0,7) \cdot 10^{-4}$, а отношение B_{472}/B_{560} возрастает до 1,5. Соответствующие спектры флуоресценции показаны на рисунке 43. Внутри шлейфа флуоресценция максимальна в канале 560 нм, а снаружи максимум сдвинут к 472 нм. Как и в случае с эпизодом от 27-28 августа (рисунок 40), лидарное отношение S_{355} составляет около 60 ср внутри шлейфа и уменьшается примерно до 30 ср вне шлейфа. Таким образом, мы снова приходим к выводу, что в интервале с самым высоким G_{472} преобладают частицы дыма, тогда как снаружи мы, скорее всего, имеем дело со смесью дыма и городского аэрозоля.

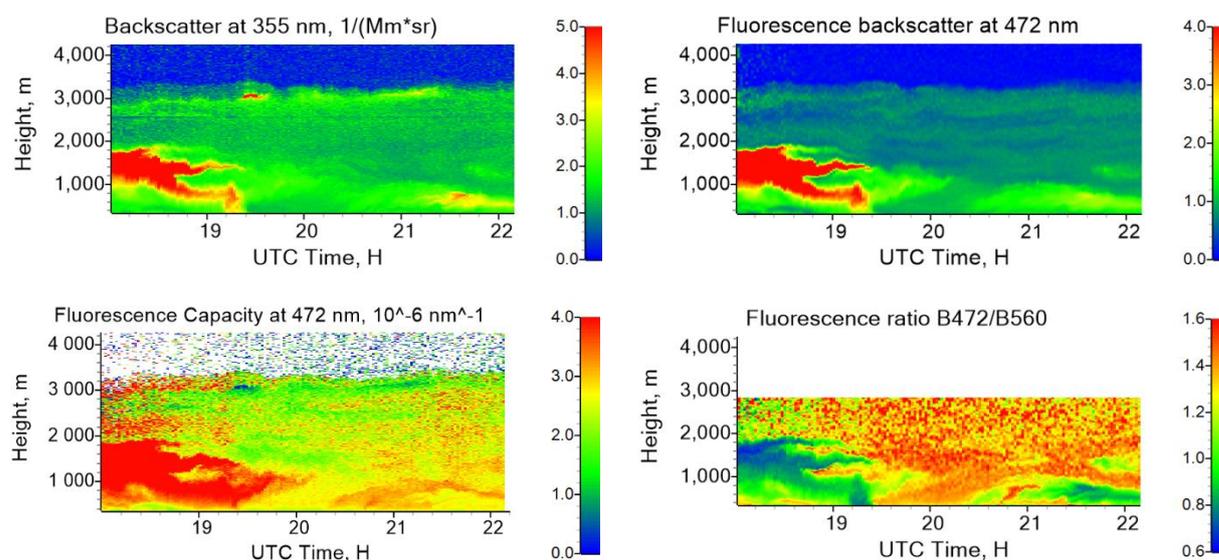


Рисунок 42 – Измерения 17 августа 2022 г. (левый столбец) Коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} и эффективность флуоресценции G_{472} . (правый столбец) Коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния β_{F472} (в $10^{-4} \text{ Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1}$) и отношение коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния B_{472}/B_{560} .

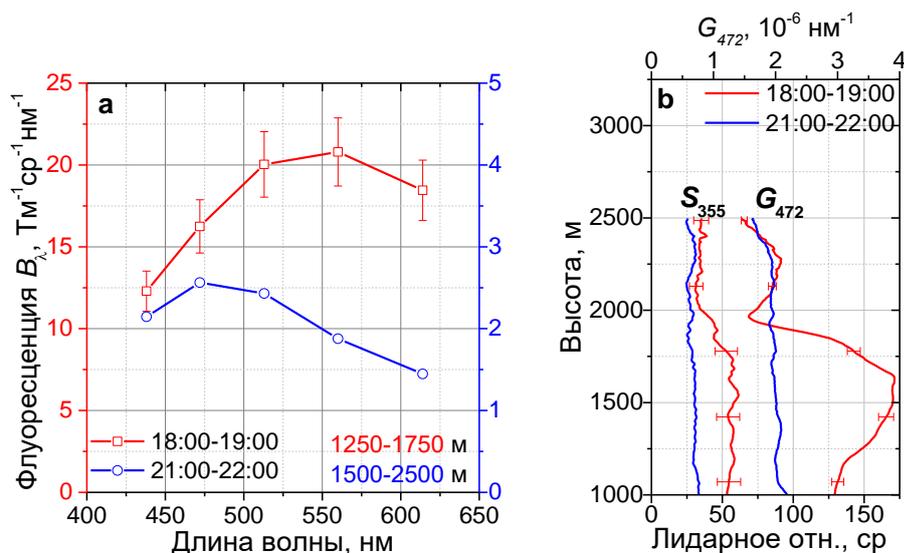


Рисунок 43 – Спектры обратного флуоресцентного рассеяния B_λ 17 августа 2022 г. для периодов 18:00–19:00 UTC и 21:00–22:00 UTC. Результаты усреднены в интервалах высот 1250–1750 м и 1500–2500 м соответственно (а). Профили лидарного отношения S_{355} и эффективности флуоресценции G_{472} за те же временные периоды (б).

5.3 Анализ влияния гигроскопического роста аэрозоля на сигнал флуоресценции

Исследования проведенные с использованием одноканального флуоресцентного лидара показали, что гигроскопический рост аэрозоля снижает эффективность флуоресценции [50]. Однако, можно ожидать, что спектральная зависимость коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния сохранит информацию о типе частиц даже в условиях гигроскопического роста. Ниже мы приводим результаты измерений, проведенных 21-22 и 23-24 августа 2022 года. В обоих случаях относительная влажность увеличивалась с высотой, и гигроскопический рост приводил к увеличению коэффициента аэрозольного обратного рассеяния.

На рисунке 44 показаны вертикальные профили B_λ и β_{355} , вместе с эффективностью флуоресценции G_{472} и отношениями B_{472}/B_{438} , B_{472}/B_{513} ,

B_{472}/B_{560} измеренные 21 августа 2022 г. Профили отношения B_{472}/B_{614} не используется для анализа вследствие низкого отношения сигнал/шум. Профиль относительной влажности, измеренный радиозондом в ЦАО, показывает увеличение относительной влажности с высотой от 30% до 80% в интервале высот 1000-4500 м. Обратное флуоресцентное рассеяние не демонстрирует существенных изменений в диапазоне высот 3000-4000 м., в то время, как упругое обратное рассеяние, вследствие гигроскопического роста аэрозоля, увеличивается на два порядка (примерно от $1 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$ до $100 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$). Эффективность флуоресценции G_{472} снижается до $0,01 \cdot 10^{-4}$ на высоте 4000 м, при этом отношения B_{472}/B_{438} , B_{472}/B_{513} , B_{472}/B_{560} не меняются с высотой. Это означает, что спектр флуоресценции остается постоянным.

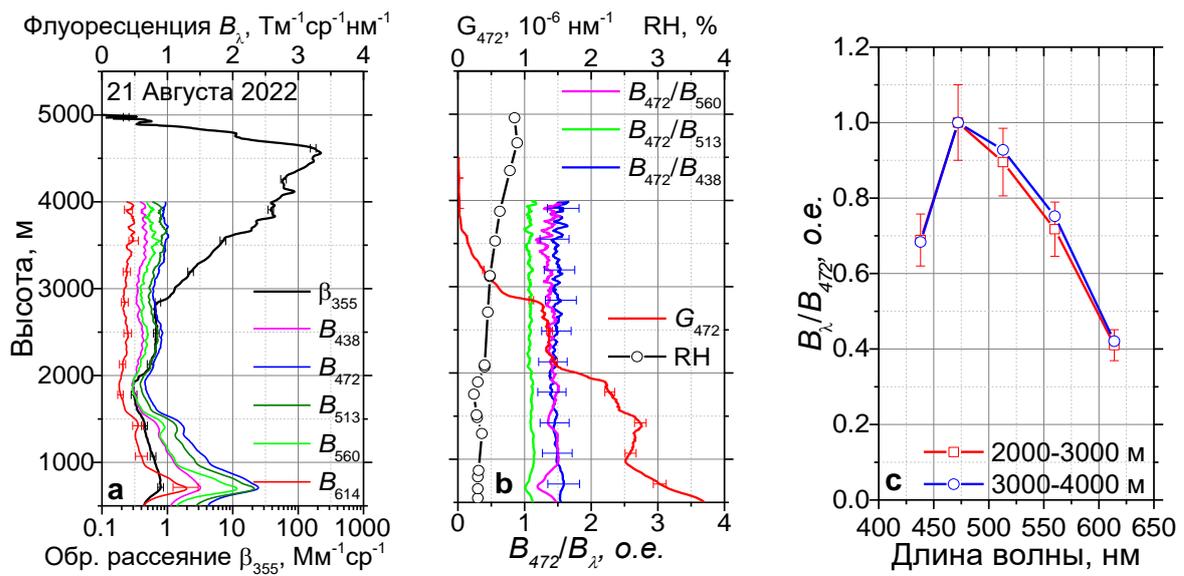


Рисунок 44 – Вертикальные профили параметров частиц 21 августа 2022 года за период 22:00-24:00 UTC. Коэффициенты обратного флуоресцентного рассеяния B_λ при длинах волн 438, 472, 513, 560, 614 нм и коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (a).

Отношения B_{472}/B_{438} , B_{472}/B_{513} , B_{472}/B_{560} и эффективность флуоресценции G_{472} .

Относительная влажность (RH) измерялась радиозондом в 00:00 UTC 22 августа (b).

Спектр коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния B_λ для интервалов высот 2000–3000 м и 3000–4000 м. Значения B_λ нормированы на B_{472} (c).

Временные изменения параметров частиц в ночь с 23 на 24 августа представлены на рисунке 45. Относительная влажность увеличивается с

высотой, и в интервале времени 18:00-20:00 наблюдается облако на высоте ~ 3000 м. После 20:00 эффективность флуоресценции в интервале высот 2000-3000 м мала (менее $0,2 \cdot 10^{-4}$). Малые значения G_{472} могут быть связаны, как с гигроскопическим ростом частиц, так и изменением их состава. При этом, отношение B_{472}/B_{560} выше 2000 м снижается, что свидетельствует об изменении состава аэрозоля.

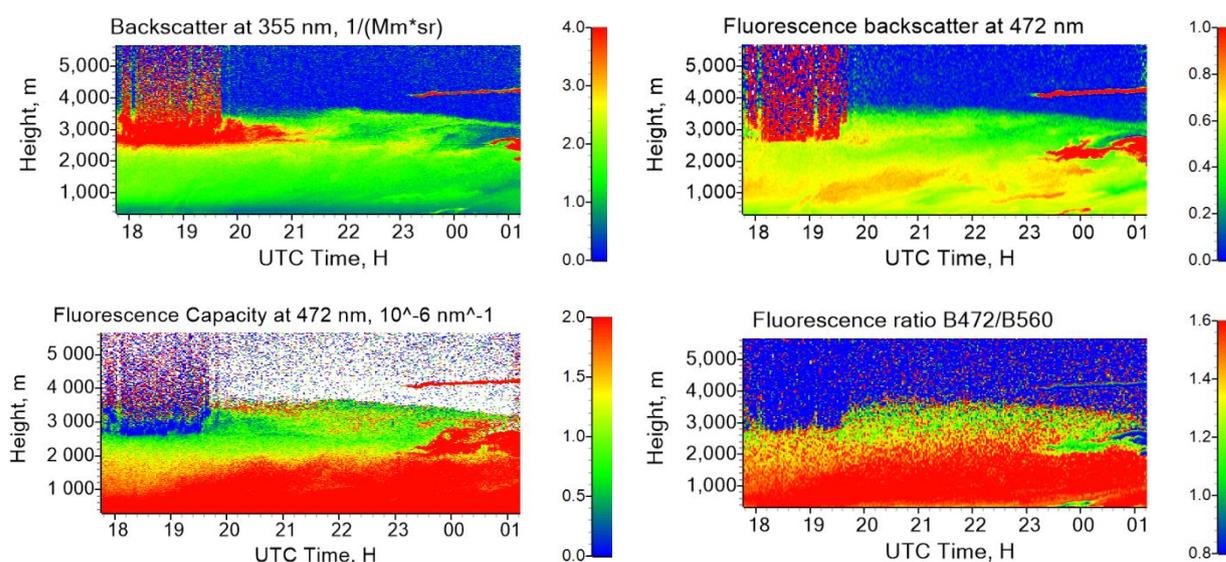


Рисунок 45 – Пространственно-временные распределения параметров частиц в ночь с 23 на 24 августа 2022 г. (левый столбец) Коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} и эффективность флуоресценции G_{472} . (правый столбец) Коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния β_{F472} (в $10^{-4} \text{ Мм}^{-1} \text{ ср}^{-1}$) и отношение B_{472}/B_{560} .

Профили параметров аэрозоля для временного интервала 20:30-23:30 показаны на рисунке 46. По данным радиозондовых измерений, относительная влажность достигает 80% на высоте 3000 м в 00:00 UTC. На высоте 1000 м, где относительная влажность низкая ($\sim 35\%$), G_{472} составляет около $0,4 \cdot 10^{-4}$, следовательно, преобладает городской аэрозоль. Отношения B_{472}/B_{513} и B_{472}/B_{560} уменьшаются выше 2000 м, а B_{472}/B_{438} увеличиваются. Как упоминалось выше, такое поведение может указывать на то, что вклад дыма увеличивается с высотой.

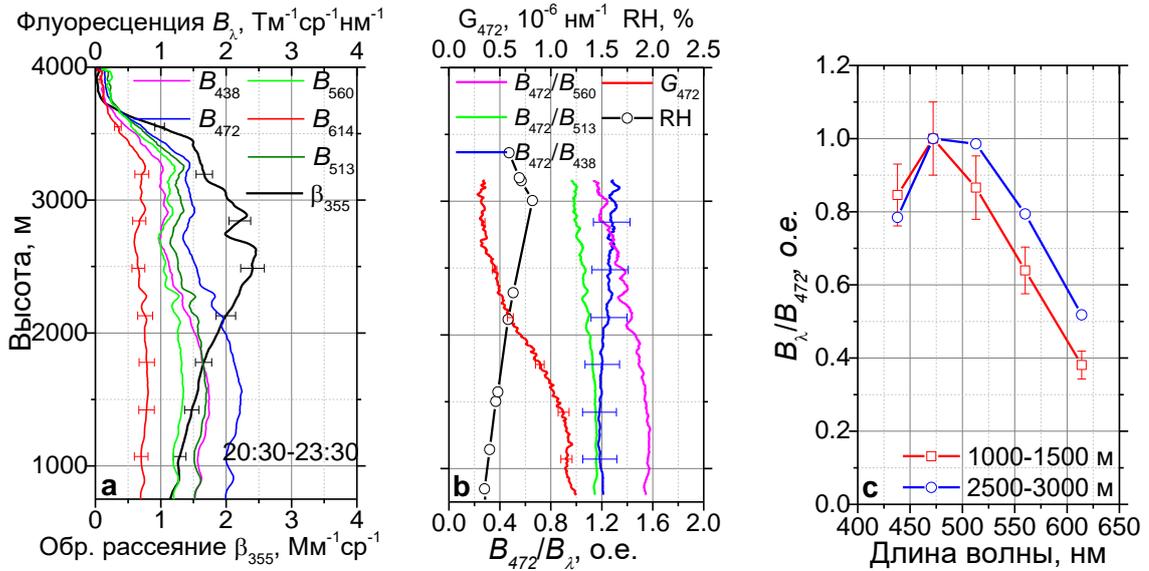


Рисунок 46 – Вертикальные профили параметров частиц 23 августа 2022 года за период 20:30–23:30 UTC. Коэффициенты обратного флуоресцентного рассеяния B_λ для длин волн 438, 472, 513, 560, 614 нм и коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (a). Отношения B_{472}/B_{438} , B_{472}/B_{513} , B_{472}/B_{560} и эффективность флуоресценции G_{472} . Символы соответствуют относительной влажности (RH), измеренной радиозондом в 00:00 UTC 24 августа (b). Спектр коэффициента обратного рассеяния флуоресценции B_λ для интервалов высот 1000–1500 м и 2500–3000 м. Значения B_λ нормированы на B_{472} (c).

5.4 Исследование спектра флуоресценции аэрозоля в пограничном слое и в дымовых шлейфах в период интенсивных лесных пожаров в Северной Америке и Сибири

Дым от сезонных лесных пожаров в Северной Америке оказывает существенное воздействие на процесс формирования облаков и, как следствие, на радиационный поток. Пожары наблюдаются в летние месяцы, вследствие повышения температуры, снижения влажности и увеличения количества сухой растительности.

В мае–сентябре 2023 года над Москвой регулярно наблюдались слои дыма в широком диапазоне высот, от пограничного слоя до тропопаузы. За этот период флуоресцентным лидаром ЦФП ИОФ РАН было

зарегистрировано свыше 40 эпизодов, характеризующихся наличием интенсивных дымовых шлейфов. Типичные профили флуоресценции дыма в тропосфере приведены на рисунке 47.

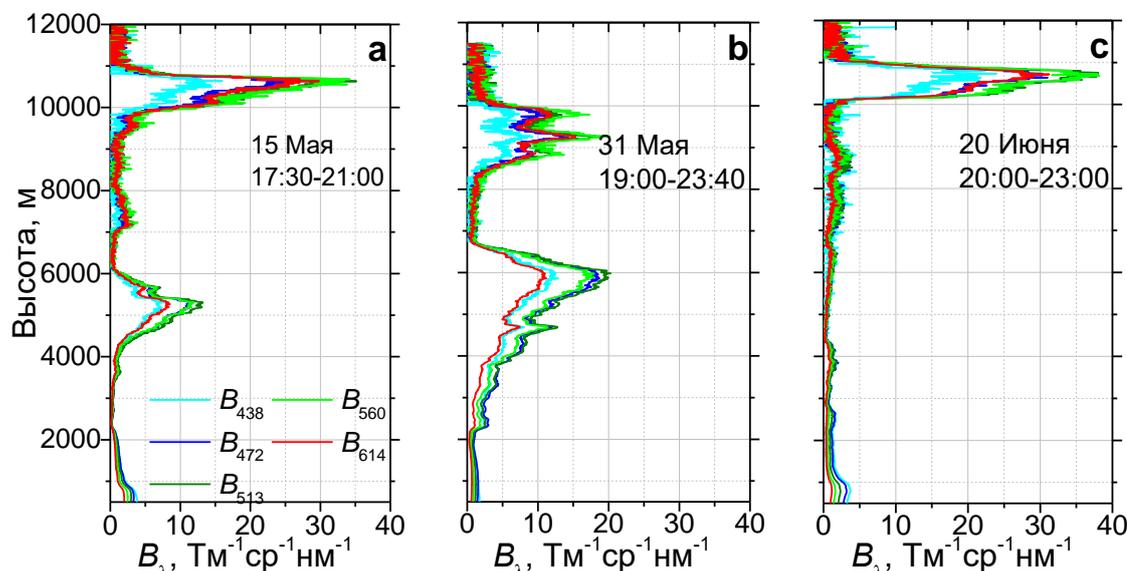


Рисунок 47 – Вертикальные профили обратного флуоресцентного рассеяния на длинах волн 438, 472, 513, 560 и 614 нм. Измерения проводились над Москвой 15 мая, 31 мая и 20 июня 2023 г.

Флуоресцентные свойства дыма меняются с высотой, и при анализе выделялись три диапазона: пограничный слой, средняя тропосфера (4-8 км) и верхняя тропосфера (8-12 км). Следует отметить, что в процессе измерений имели место эпизоды, в которых слои дыма из верхней тропосферы спускались к пограничному слою и смешивались с ним.

Основным типом аэрозоля внутри пограничного слоя являлся «городской аэрозоль». В нашей схеме классификации «городской» тип включает как континентальный, так и антропогенный аэрозоль.

На рисунке 48 приведен пример измерения дымового шлейфа в верхней тропосфере в ночь с 6 на 7 сентября 2023 г. На рисунке представлены пространственно-временные распределения коэффициентов аэрозольного и флуоресцентного обратного рассеяния (β_{355} и B_{513}). В диапазоне высот 8-10 км коэффициент флуоресцентного рассеяния дыма, B_{513} , достигает величины $10 \text{ Tm}^{-1}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}$ в максимуме. Среднее значение эффективности флуоресценции

$\frac{B_{513} \cdot D_{513}}{\beta_{355}}$ в этом диапазоне высот составляет около $2,7 \cdot 10^{-4}$. Таким образом, флуоресцентное рассеяние почти на 4 порядка ниже упругого. Однако, флуоресцентный сигнал на рисунке 48 оказывается более контрастным. Высокая контрастность флуоресценции связана с тем, что β_{355} вычисляется в присутствии сильного рэлеевского рассеяния. В частности, на высоте 10 км молекулярное обратное рассеяние составляет $2,8 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$, а β_{355} для рассматриваемого случая составляет около $0,5 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$. Сигнал флуоресценции спектрально сдвинут относительно длины волны лазера, что исключает влияние рэлеевского рассеяния на измерения.

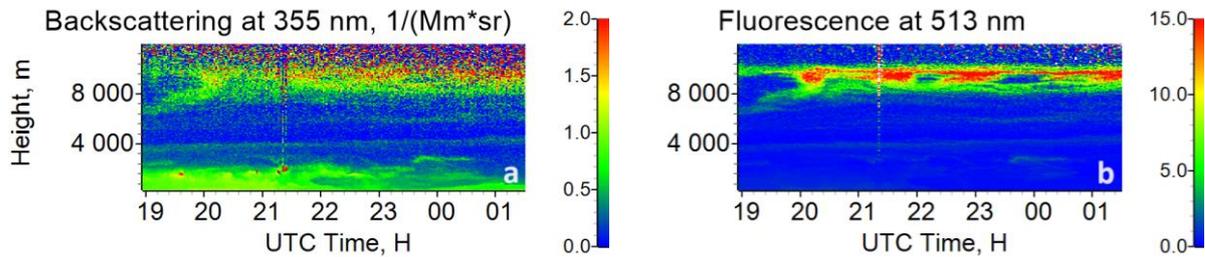


Рисунок 48 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (a) и коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния B_{513} (в $\text{Tm}^{-1}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}$) (b) в ночь с 6 на 7 сентября 2023 г.

На рисунке 49 приведены вертикальные профили B_λ , β_{355} и спектры эффективности флуоресценции G_λ для трех высотных интервалов. Городской аэрозоль внутри пограничного слоя является преобладающим, и эффективность флуоресценции уменьшается с длиной волны. Второй интервал (5,5-6,5 км) включает слабый слой дыма в средней тропосфере. Эффективность флуоресценции на всех длинах волн увеличивается, а максимум флуоресценции наблюдается в канале 513 нм. Третий интервал (8-10 км) соответствует слою дыма в верхней тропосфере. Максимум флуоресценции в этом слое смещается в канал 560 нм, а эффективность флуоресценции G_{560} увеличивается примерно в 3 раза по сравнению со средней тропосферой. Из спектров на рисунке 49с следует, что городской аэрозоль и дым можно разделить по величине эффективности флуоресценции. Такое

разделение наиболее результативно для каналов 513 нм и 560 нм. Однако, как уже упоминалось, гигроскопический рост частиц уменьшает эффективность флуоресценции, и вносит погрешности в соответствующее разделение. В альтернативном подходе, дым и городской аэрозоль можно разделить по спектрам флуоресценции. В частности, в качестве критерия можно использовать, например, отношение B_{560}/B_{438} . Это отношение, показано на рисунке 49а. Оно составляет около 0,4 в пределах пограничного слоя и увеличивается до 1,6 в верхней тропосфере.

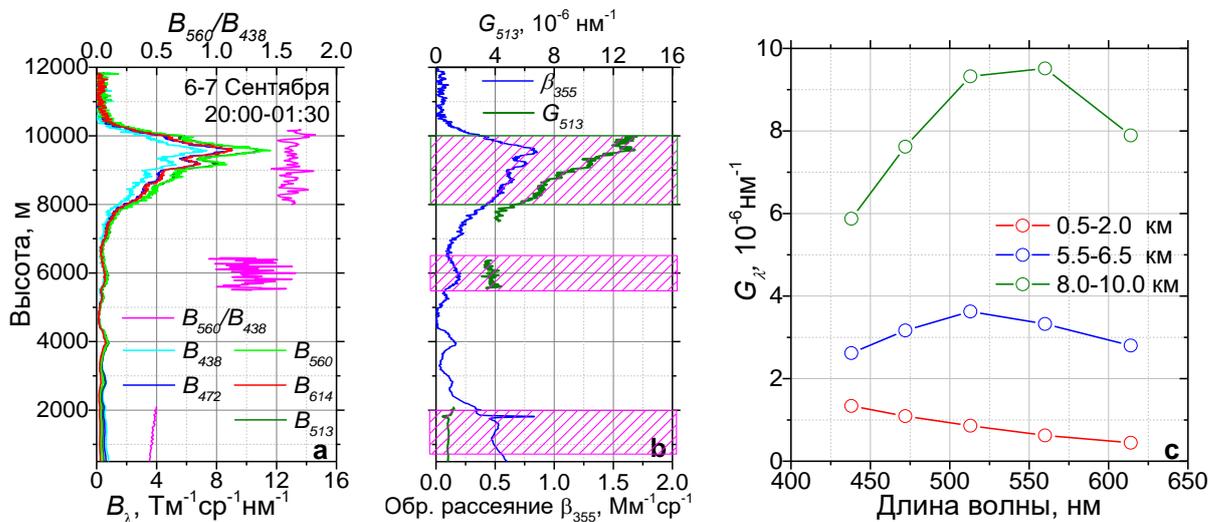


Рисунок 49 – Вертикальные профили коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния B_λ на длинах волн 438, 472, 513, 560, 614 нм вместе с отношением B_{560}/B_{438} (а); коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} вместе с эффективностью флуоресценции G_{513} (б); спектр эффективности флуоресценции G_λ в трех диапазонах высот (с). Диапазоны отмечены на графике (б) пурпурными прямоугольниками. Результаты приведены для временного интервала 20:00-01:30 UTC 6-7 сентября 2023 года.

Основной вклад во флуоресценцию дыма вносит его органическая фракция, в то время как упругое рассеяние содержит вклады как органических, так и неорганических соединений. Таким образом, профиль эффективности флуоресценции должен содержать информацию об изменении состава дыма. Эффективность флуоресценции G_{513} на рисунке 49б увеличивается с высотой в диапазоне 8-10 км от $4 \cdot 10^{-6}\text{nm}^{-1}$ до $13 \cdot 10^{-6}\text{nm}^{-1}$ в максимуме, что может свидетельствовать о том, что доля органических соединений выше в центре слоя дыма. Среднее значение β_{355} в интервале 8-10 км составляет $0,62\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$

¹. Объемную и массовую концентрацию дыма в этом слое можно оценить, как $V_S=2,4 \text{ мкм}^3\text{см}^{-3}$ и $m_S=2,8 \text{ мкг/м}^3$, используя соответствующие коэффициенты пересчета из раздела 5.1.

Для сравнения, на рисунках 50 и 51 показаны результаты измерений дыма в средней тропосфере 16 июня 2023 г. Сильный слой дыма с коэффициентом обратного флуоресцентного рассеяния V_{513} до $5 \text{ Тм}^{-1}\text{ср}^{-1}\text{нм}^{-1}$ наблюдается в диапазоне высот 5,0-8,5 км. В пограничном слое интенсивные параметры аэрозоля аналогичны параметрам 6 сентября. В частности, V_λ уменьшается с длиной волны, а отношение V_{560}/V_{438} составляет около 0,4. Однако внутри слоя дыма параметр G_{513} составляет около $4 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$ и в отличие от рисунка 49b, здесь не наблюдается изменений параметров аэрозоля от высоты, что указывает на стабильный состав дыма. Напомним, что 6 сентября (рисунок 49b) значение $G_{513}=4 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$ наблюдалось в пределах средней тропосферы и у основания слоя дыма (8 км). На больших высотах коэффициент G_{513} увеличивался до максимального значения $12 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$.

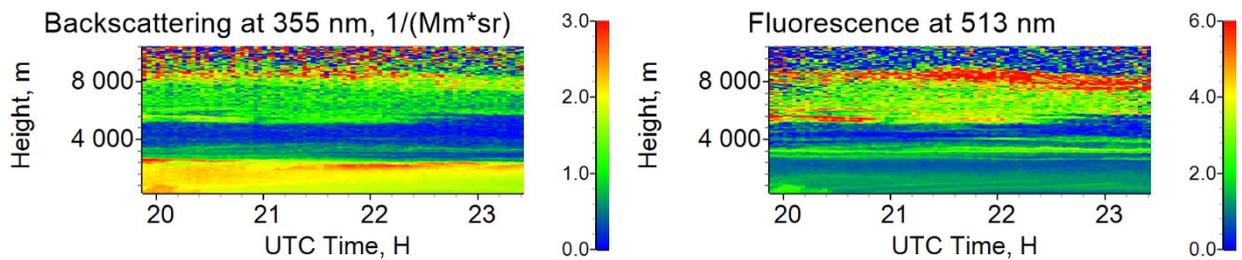


Рисунок 50 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (a) и коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния V_{513} (в $\text{Тм}^{-1}\text{ср}^{-1}\text{нм}^{-1}$) (b) в ночь с 16 на 17 июня 2023 года

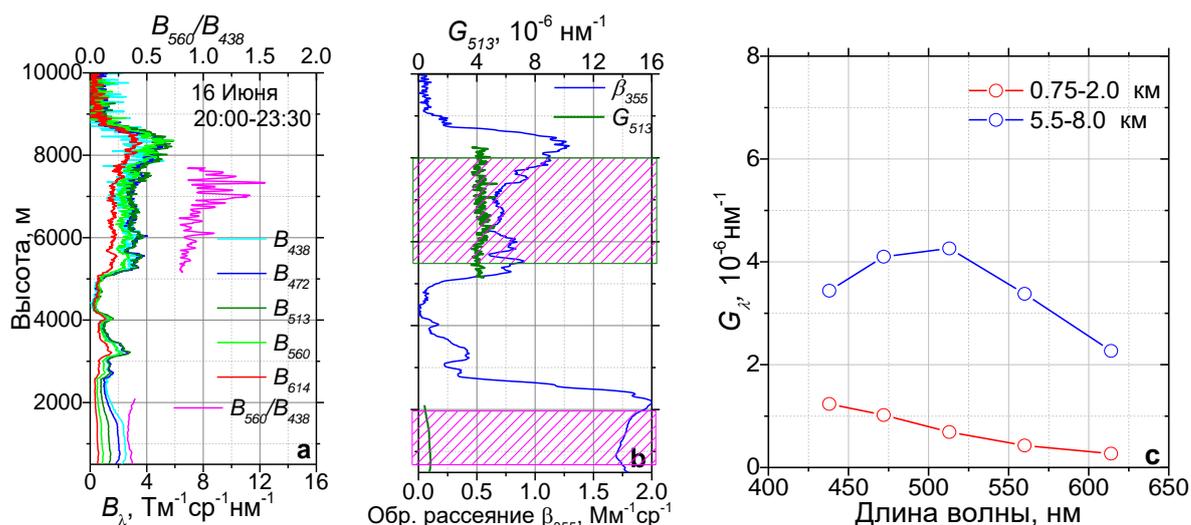


Рисунок 51 – Вертикальные профили коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния B_λ на длинах волн 438, 472, 513, 560, 614 нм вместе с отношением B_{560}/B_{438} (a); коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} вместе с эффективностью флуоресценции G_{513} (b); спектр эффективности флуоресценции G_λ в трех диапазонах высот (c). Диапазоны отмечены на графике (b) пурпурными прямоугольниками. Результаты приведены для временного интервала 20:00-23:30 UTC 16 июня 2023 года.

Из результатов, представленных в этом разделе, можно сделать вывод, что городской аэрозоль и дым имеют принципиально разные спектры G_λ и что эффективность флуоресценции дыма в верхней тропосфере выше, чем в средней тропосфере. Для подтверждения этих выводов необходимо провести анализ имеющихся измерений дыма в период с мая по сентябрь 2024 года. Соответствующие результаты представлены в следующем разделе.

5.5 Вариации флуоресцентных характеристик городского аэрозоля и дыма в период с мая по сентябрь 2023 г. над Москвой

Дым от североамериканских лесных пожаров, переносимый над Атлантикой, регулярно измерялся над Москвой в мае-сентябре 2023 года в средней и верхней тропосфере. Результаты соответствующих измерений обобщены на рисунке 52, на котором показаны высота слоя дыма (центр слоя)

H_{sm} , усредненный в слое коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} и усредненные значения эффективностей флуоресценции G_{513} и G_{560} . Значения, полученные в средней и верхней тропосфере, обозначены открытыми и сплошными символами соответственно. Максимальный коэффициент обратного аэрозольного рассеяния в верхней тропосфере $\beta_{355}=3,2 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$ был измерен 20 июня на высоте 10,5 км. Соответствующая массовая концентрация дыма может быть оценена как 14 мкг/м^3 .

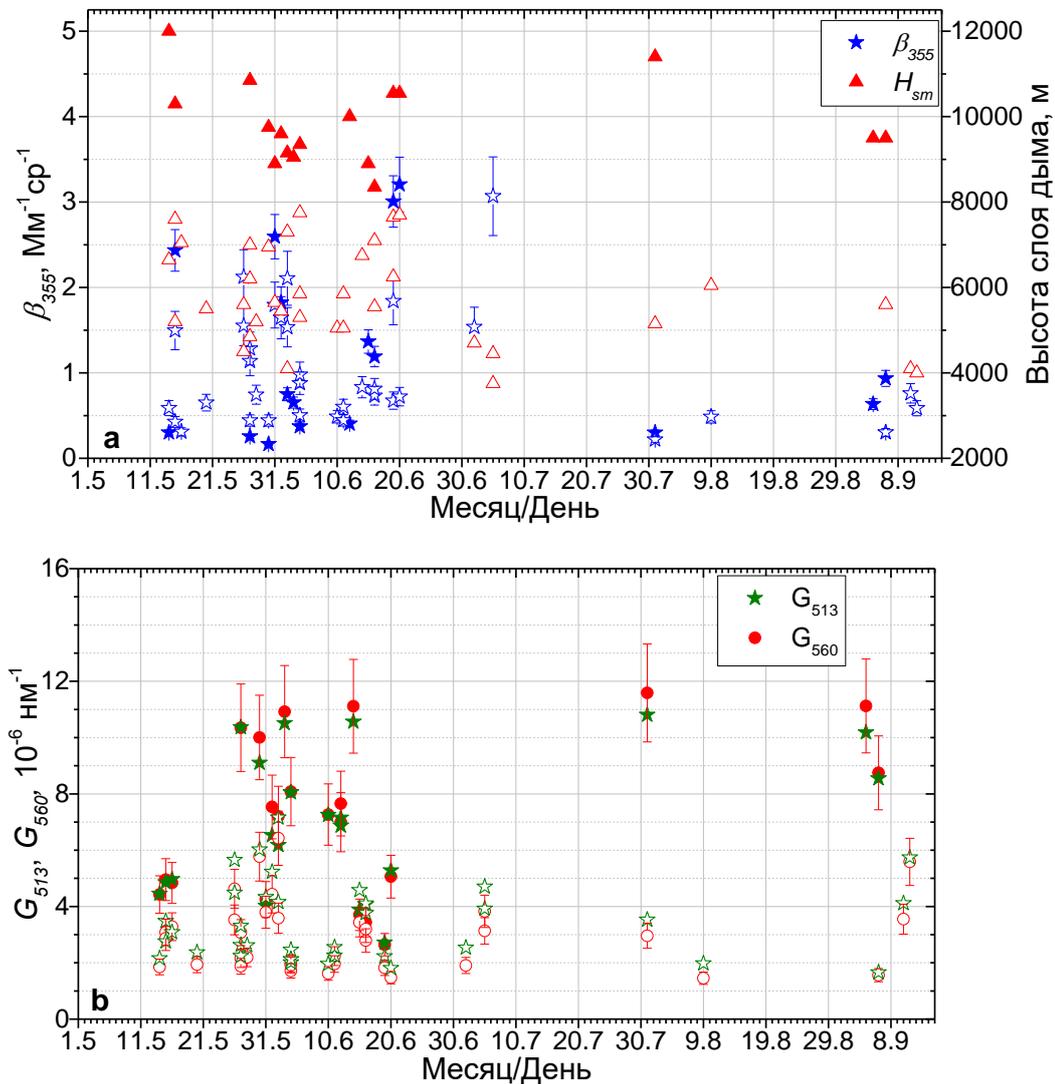


Рисунок 52 – Результаты зондирования слоев дыма в средней (открытые символы) и верхней тропосфере (сплошные символы) над Москвой в мае-сентябре 2023 г. Высота центра слоя дыма H_{sm} и средний коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} внутри слоя (a). Эффективности флуоресценции дыма G_{513} и G_{560} (b).

Из рисунка 52b можно сделать вывод, что спектральные эффективности флуоресценции G_{513} и G_{560} в верхней тропосфере выше, чем в средней тропосфере, и что G_{560} в верхней тропосфере обычно превышает G_{513} . Кроме того, эффективности флуоресценции варьируются в широком диапазоне. В частности, для G_{560} этот диапазон в верхней тропосфере составляет $(2,5-11,0) \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$. Для анализа влияния возможного гигроскопического роста частиц на наблюдаемый разброс данных, эффективность флуоресценции G_{560} на рисунке 53 отображена, как функция относительной влажности. Значения относительной влажности взяты из измерений радиозонда в ЦАО, Долгопрудный. Относительная влажность внутри слоев дыма обычно ниже 55%, и на графике не видно тренда уменьшения G_{560} с ростом относительной влажности. Таким образом, наблюдаемые изменения эффективности флуоресценции, вероятно, связаны с изменением состава дыма, а именно, с изменением относительного содержания органических соединений.

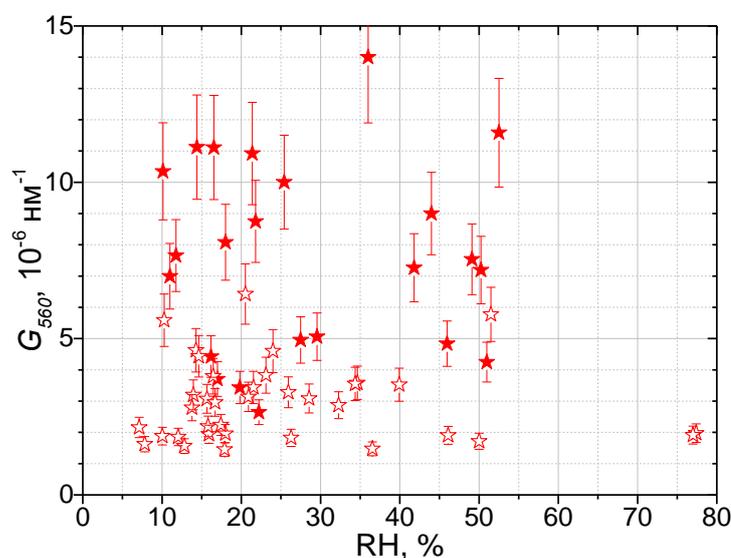


Рисунок 53 – Эффективность флуоресценции дыма G_{560} как функция относительной влажности (RH) для эпизодов в период с мая по сентябрь 2023 г. Открытые и сплошные символы соответствуют слоям дыма в средней и верхней тропосфере.

На рисунке 54 представлена высотная зависимость эффективности флуоресценции G_{560} и отношения G_{560}/G_{513} для измерений дыма в период с мая по сентябрь 2023 г. В средней тропосфере эффективность флуоресценции G_{560}

не демонстрирует какой-либо закономерности, но выше 8 км виден тренд к увеличению G_{560} с высотой. Несмотря на сильный разброс данных, среднее значение G_{560} в верхней тропосфере в 2,7 раза выше, чем в средней тропосфере. Это может указывать на то, что относительное содержание органических соединений в верхней тропосфере увеличивается. Среднее значение отношения G_{560}/G_{513} в средней и верхней тропосфере составляет 0,85 и 1,03 соответственно. Это указывает на тенденцию к смещению максимума спектра флуоресценции в сторону канала 560 нм с высотой.

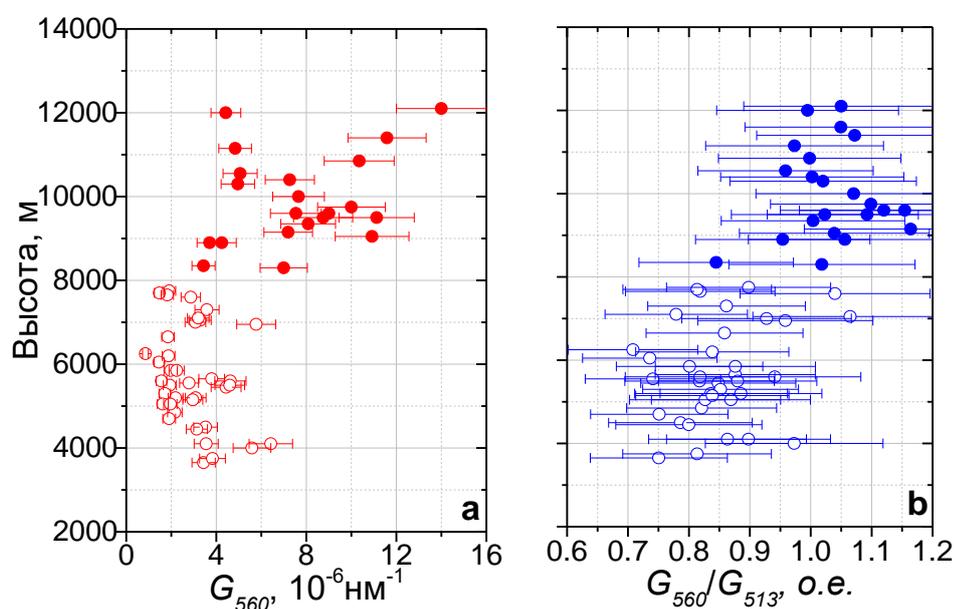


Рисунок 54 – Зависимость от высоты (а) эффективности флуоресценции G_{560} и (б) отношения G_{560}/G_{513} измерений в мае-сентябре 2023 г. Открытые и сплошные символы соответствуют слоям в средней и верхней тропосфере.

Городской аэрозоль и дым демонстрировали принципиально разные спектры флуоресценции во всех проводимых измерениях. На рисунке 55 показаны спектры V_λ и G_λ , измеренные в период с мая по сентябрь 2023 г. Результаты представлены для трех высотных интервалов: пограничный слой, средняя тропосфера и верхняя тропосфера. Для сравнения «формы» спектров в разные дни, величины V_λ нормировались на сумму $\sum_{i=1}^5 V_{\lambda i}$. Средние значения нормированных V_λ и стандартные отклонения приведены на рисунке 56. В пограничном слое, где преобладает городской аэрозоль, V_λ

демонстрирует значительные отклонения от среднего значения (около 10% для 438 нм), но во всех измерениях обратное флуоресцентное рассеяние уменьшалось с увеличением длины волны. Однако, в слоях дыма в средней тропосфере, максимум флуоресценции соответствует каналу 513 нм. Наибольшие отклонения заметны в канале 438 нм (около 20%), что может быть связано с возможным смешиванием дыма с городским аэрозолем в процессе переноса. В верхней тропосфере отклонение от среднего значения меньше (около 15% для 438 нм), а максимум флуоресценции смещается к каналу 560 нм.

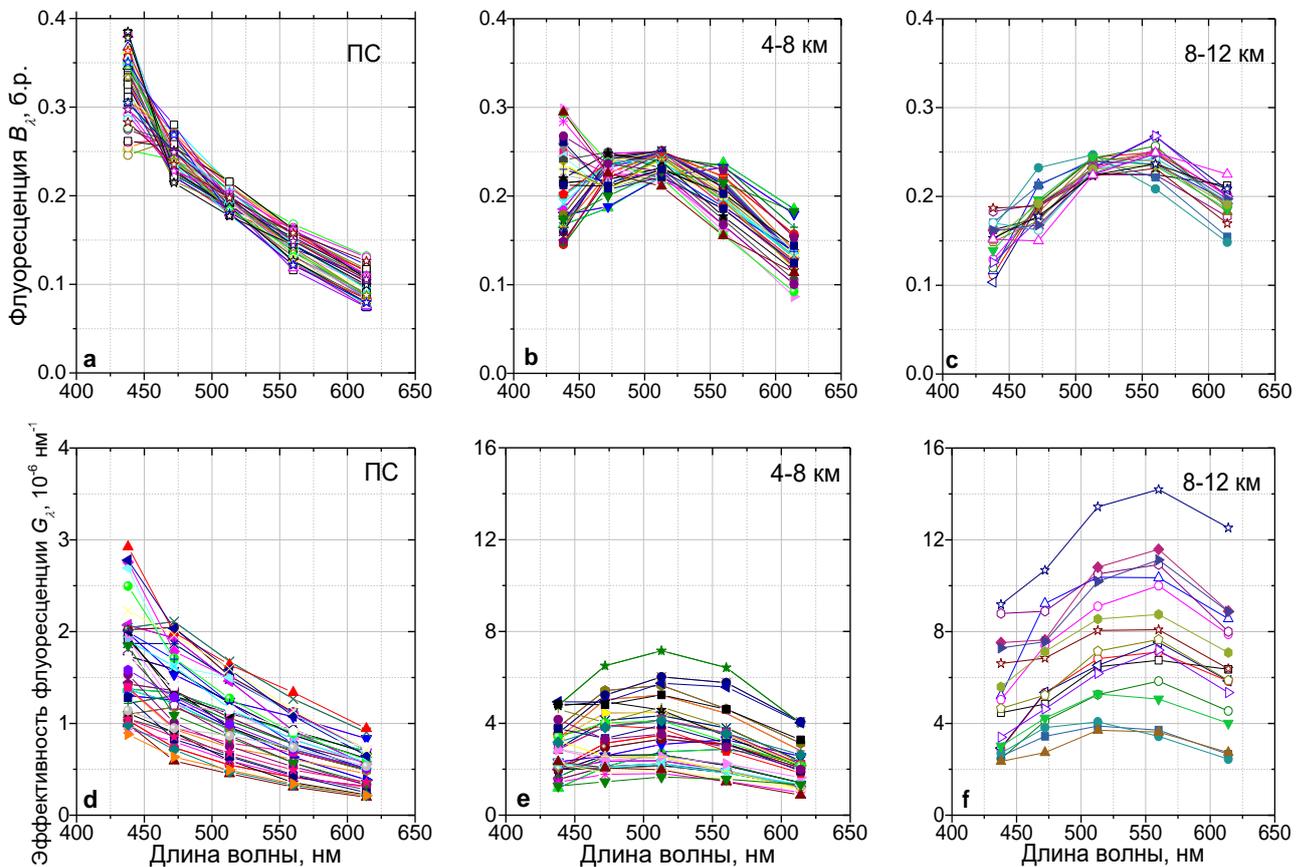


Рисунок 55 – Спектры обратного флуоресцентного рассеяния V_λ (a-c) и эффективности флуоресценции G_λ (d-f), измеренные над Москвой в мае-сентябре 2023 г. Результаты приведены для трех высотных интервалов: пограничный слой (ПС), средняя тропосфера (4-8 км) и верхняя тропосфера (8-12 км). Коэффициенты обратного флуоресцентного рассеяния нормированы на сумму $\sum_{i=1}^5 V_{\lambda i}$.

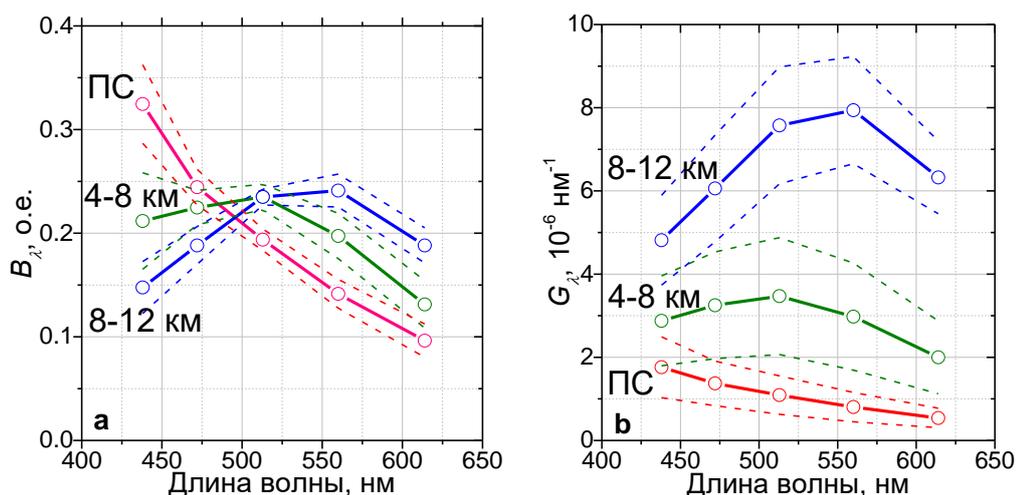


Рисунок 56 – Усредненные значения (сплошные линии) и стандартные отклонения (пунктирные линии) обратного флуоресцентного рассеяния V_λ (а) и эффективности флуоресценции G_λ (б), измеренные над Москвой в мае-сентябре 2023 г. Результаты приведены для пограничного слоя, средней тропосферы и верхней тропосферы.

Отклонения G_λ превосходят соответствующие отклонения для V_λ , как следует из рисунка 55d-f. Вариации G_λ внутри пограничного слоя, с одной стороны, могут быть вызваны гигроскопическим ростом городского аэрозоля. С другой стороны, эффективность флуоресценции может увеличиваться за счет присутствия дыма в пограничном слое. Изменение G_λ в средней тропосфере, в свою очередь, может быть вызвано возможным смешиванием с городским аэрозолем, а также вторжением слоев дыма из верхней тропосферы. Но даже в верхней тропосфере, где эти факторы можно исключить, G_{560} изменяется в пределах $(3,8-11,5) \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$, что, вероятно, следует объяснить вариациями химического состава дыма. Как уже упоминалось, сигнал флуоресценции обусловлен, главным образом, органической фракцией дыма, поэтому изменения G_λ могут быть связаны с вариациями ее относительного содержания.

Подход к разделению городского аэрозоля и дыма, описанный в разделе 3.1, основан на различии их эффективности флуоресценции на длине волны 466 нм. Это, так называемый, «пороговый алгоритм»: частицы с эффективностью флуоресценции выше некоторого порогового значения

классифицируются, как дым. Однако, как следует из рисунка 56, сильные вариации G_λ в средней тропосфере ограничивают точность такого разделения. Другой подход к идентификации этих типов аэрозолей может быть основан на их спектрах флуоресценции. Спектральный подход дает определенное преимущество, поскольку на спектр флуоресценции не влияет относительная влажность. Это утверждение подтверждается рисунком 57, на котором показаны коэффициент обратного аэрозольного рассеяния β_{355} и обратное флуоресцентное рассеяние, измеренные в присутствии гигроскопического роста частиц. Относительная влажность, измеряемая радиозондом, увеличивается с высотой от 40% м до 80% на высоте 2250 м. Обратное рассеяние аэрозоля так же увеличивается с высотой и на высоте 2,2 км наблюдается облако. Однако, отношения коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния (например, B_{513}/B_{438} и B_{560}/B_{438} на рисунке 57b) остаются постоянными даже внутри облака, что указывает на неизменность спектра флуоресценции.

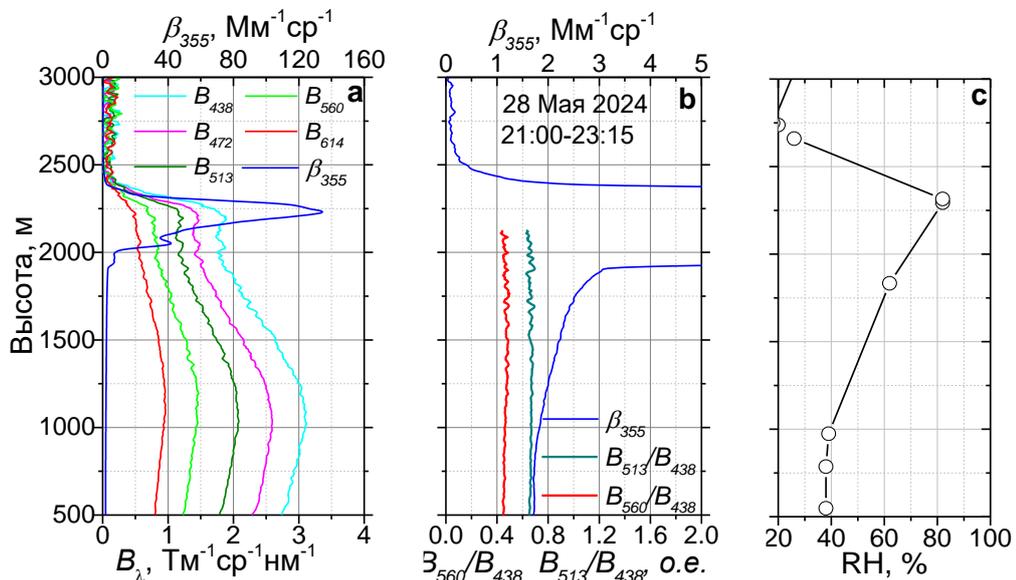


Рисунок 57 – Измерения флуоресценции в присутствии гигроскопического роста аэрозоля 28 мая 2024 г. Вертикальные профили коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния B_λ на длинах волн 438, 472, 513, 560, 614 нм и коэффициента обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (a). Масштабированный β_{355} и соотношения B_{513}/B_{438} , B_{560}/B_{438} (b). Профиль относительной влажности (RH), измеренный радиозондом 29 мая в 00:00 UTC (c).

5.6 Вычисление вклада дыма и городского аэрозоля в полный коэффициент флуоресцентного рассеяния

5.6.1 Подход к разделению

Как показано в разделе 5.5, дым и городской аэрозоль характеризуются различными спектральными зависимостями B_λ . Таким образом, если преобладающими компонентами аэрозольной смеси являются дым и городской аэрозоль, измеренный спектр флуоресценции можно представить, как комбинацию этих двух эталонных спектров. В качестве эталонных спектров можно принять усредненные спектры флуоресценции на рисунке 56а. Таким образом, для рассматриваемого лидара может быть записана система из пяти уравнений с двумя неизвестными (а и b), которая решается методом наименьших квадратов.

$$B_\lambda = B_\lambda^U + B_\lambda^S = aB_\lambda^{Uref} + bB_\lambda^{Sref}, \quad (54)$$

где B_λ^{Uref} и B_λ^{Sref} – спектры городского аэрозоля и дыма соответственно. Для городского аэрозоля в качестве эталонного спектра используется спектр флуоресценции в пределах пограничного слоя. Для дыма рассматриваются два эталонных спектра: спектры средней и верхней тропосферы. Отношения $\frac{B_{\lambda i}}{B_{438}}$, рассчитанные из эталонных спектров флуоресценции сведены в таблицу 4. Используя эти значения, полученные значения B_λ^U и B_λ^S можно пересчитать с одной длины волны на другую.

Таблица 4. Усредненные отношения B_λ/B_{438} для пограничного слоя, средней и верхней тропосферы.

	B_{472}/B_{438}	B_{513}/B_{438}	B_{560}/B_{438}	B_{614}/B_{438}
Пограничный слой	0,75	0,60	0,44	0,30
Средняя тропосфера	1,06	1,11	0,93	0,62
Верхняя тропосфера	1,28	1,59	1,63	1,28

В течение сезона лесных пожаров 2023 года имели место многочисленные эпизоды, когда дым из верхней тропосферы опускался к пограничному слою и смешивался с городским аэрозолем. Подход, описанный в этом разделе, был использован для анализа таких эпизодов, чтобы разделить вклад городского аэрозоля и частиц дыма в полный коэффициент флуоресцентного рассеяния.

5.6.2 Дым на вершине пограничного слоя 25-26 сентября 2023 года

В ночь с 25 на 26 сентября 2023 г. воздушные массы над на высотах свыше 2000 м были перенесены над Атлантикой из районов североамериканских лесных пожаров, как это следует из анализа обратных траекторий модели HYSPLIT [90], показанного на рисунке 58. Пространственно-временные распределения ключевых параметров аэрозоля, таких как коэффициенты аэрозольного и флуоресцентного рассеяния (β_{355} и β_{513}), эффективности флуоресценции G_{513} и отношения B_{560}/B_{438} , приведены на рисунке 59. Эти параметры позволяют различить два слоя аэрозоля. В первом слое, простирающемся от поверхности до высоты примерно 1500 м, значение G_{513} мало (около $1 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$), а отношение B_{560}/B_{438} составляет примерно 0,4. Обе эти параметра указывают на то, что аэрозоль в этом слое имеет городское происхождение. Выше 1500 м как эффективность флуоресценции, так и отношение B_{560}/B_{438} увеличиваются, при этом G_{513} превышает $6 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$, а B_{560}/B_{438} достигает примерно 1,6. Эти характеристики позволяют идентифицировать аэрозоль, как дым. Радиозондовые измерения показывают наличие температурной инверсии на высоте 1500 м. Таким образом, нижний слой представляет собой пограничный слой, а дым находится на его вершине.

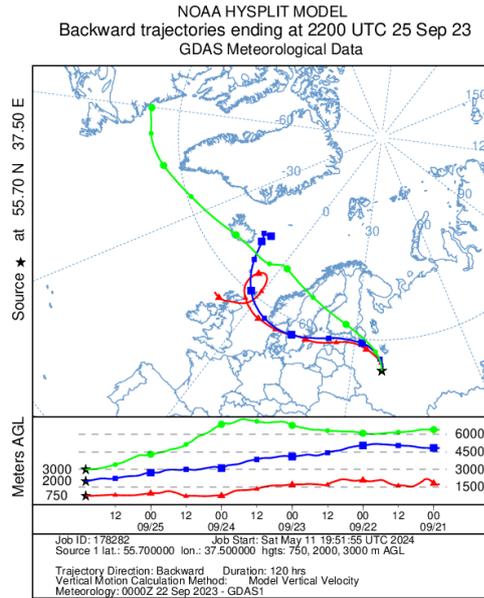


Рисунок 58 – Пятидневные обратные траектории рассчитанные в рамках модели NOAA HYSPLIT для воздушной массы над Троицком на высотах 750 м, 2000 м и 3000 м 25 сентября 2023 г. в 22:00 UTC.

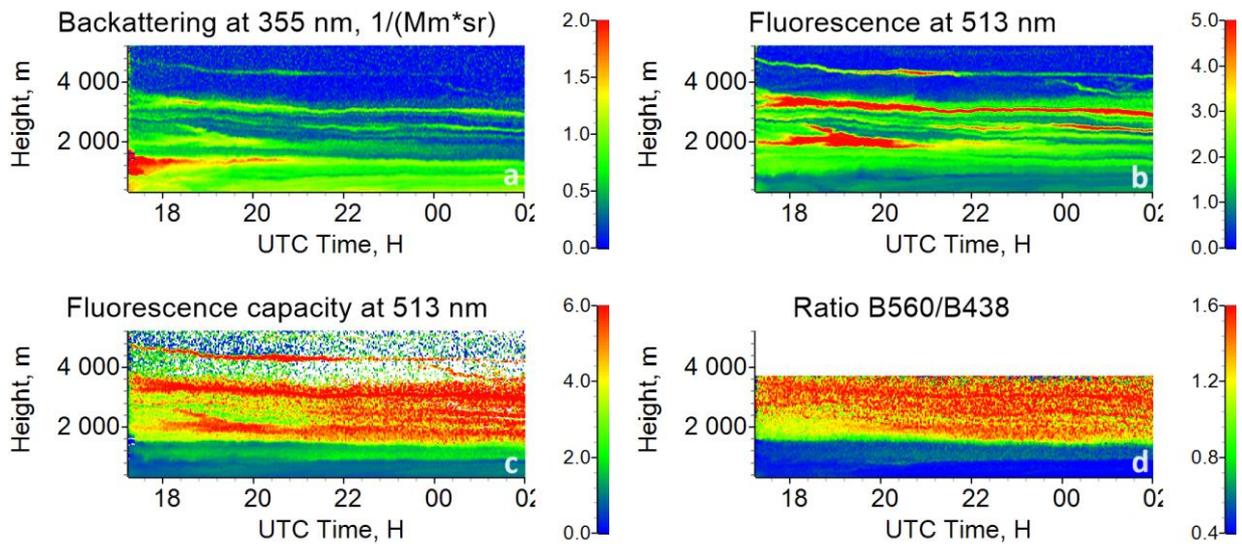


Рисунок 59 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (a), коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния B_{513} (в $Tm^{-1}sr^{-1}nm^{-1}$) (b), эффективности флуоресценции G_{513} (в $10^{-6} nm^{-1}$) (c), и отношения B_{560}/B_{438} (d) в ночь с 25 на 26 сентября 2023 г.

При анализе использовалась методика разделения вкладов дыма и городского аэрозоля в общий коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния, описанная в разделе 5.6.1. Коэффициенты для средней тропосферы были взяты из таблицы 4, а полученные пространственно-временные

распределения V_{438}^U и V_{438}^S показаны на рисунке 60. Дым и городской аэрозоль хорошо разделены, и их смешивание происходит лишь внутри тонкого слоя толщиной в несколько сотен метров. Вертикальные профили параметров частиц, усредненные в интервале 17:15-02:15 UTC, представлены на рисунке 61. Обратное аэрозольное рассеяние β_{355} максимально в пограничном слое, тогда как обратное рассеяние в слое дыма (выше 1500 м) примерно в 2 раза ниже. Как следует из таблицы 4, соотношение V_{560}/V_{438} является удобным параметром для различения дыма и городского аэрозоля. Это отношение на рисунке 61a возрастает с высотой от 0,4 до 1,6 из-за увеличения вклада дыма в флуоресценцию. Профили V_{513}^U и V_{513}^S изображены на рисунке 61b. Ниже 1000 м преобладает городской аэрозоль, а на высоте выше 1600 м преобладает дым. В диапазоне 1000-1600 м частицы перемешиваются, что приводит к изменению спектра флуоресценции с высотой. Расчет V_{513}^U и V_{513}^S проводился с использованием коэффициентов для средней тропосферы (сплошные линии) и для верхней тропосферы (пунктирные линии). Результаты близки, а максимальная разница между полученными с этими двумя наборами коэффициентов наблюдается на высоте 2000 м, где она составляет менее 25%.

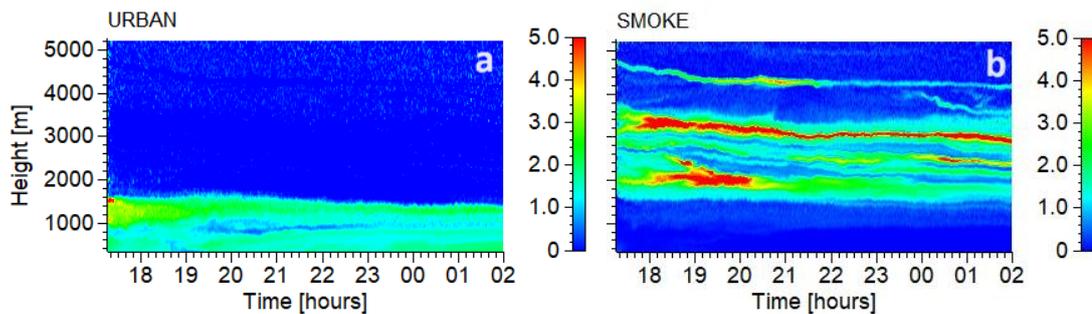


Рисунок 60 – Коэффициенты обратного флуоресцентного рассеяния (в $\text{Tm}^{-1}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}$) на длине волны 438 нм, отнесенные к городскому аэрозолю (а) и к дыму (б) 25-26 сентября 2023 г.

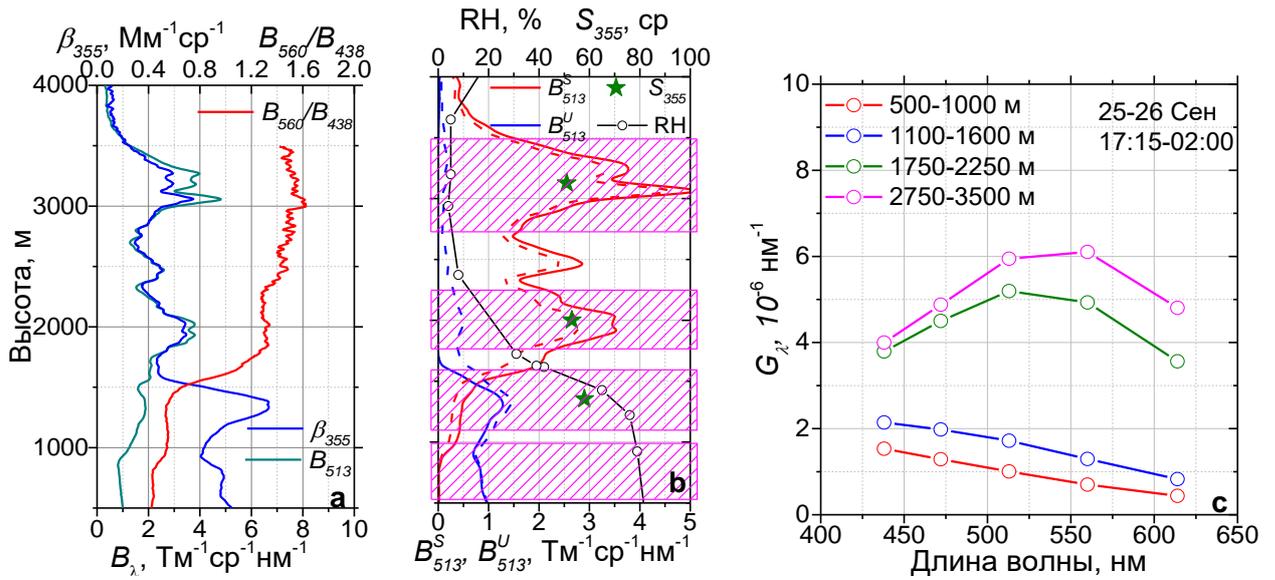


Рисунок 61 – Вертикальные профили коэффициента обратного аэрозольного и флуоресцентного рассеяния β_{355} и B_{513} и отношения B_{560}/B_{438} (a). Вклад дыма и городского аэрозоля в общий коэффициент обратного флуоресцентного рассеяния B_{560}/B_{438} , а также относительная влажность (RH), измеренная радиозондом. Величины B_{513}^U и B_{513}^S рассчитываются с использованием коэффициентов из таблицы 4 для средней (сплошные линии) и верхней тропосферы (штриховые линии). Звездочки обозначают усредненные лидарные отношения S_{355} (b). Спектры эффективности флуоресценции G_λ в разных диапазонах высот (c). Эти диапазоны отмечены на графике b пурпурными прямоугольниками.

На рисунке 61b также представлены лидарные отношения S_{355} , усредненные в пределах отмеченных интервалов высот. Значения S_{355} внутри слоя дыма составляют около 50 ср, что согласуется с диапазоном значений S_{355} (20-50 ср), в публикациях [33] и [84] для североамериканского дыма. В пределах 1100-1600 м S_{355} выше (около 60 ср) за счет присутствия городского аэрозоля.

Спектры эффективности флуоресценции для четырех диапазонов высот представлены на рисунке 61c. Ниже 1000 м спектр демонстрирует характеристики, типичные для городского аэрозоля: значение G_λ уменьшается с длиной волны и G_{513} составляет около $1,0 \cdot 10^{-6} \text{ nm}^{-1}$, что близко к соответствующему значению на рисунке 56b. В диапазоне высот 1100-1600 м G_{513} увеличивается до $1,8 \cdot 10^{-6} \text{ nm}^{-1}$ из-за присутствия дыма. Максимум спектра флуоресценции дыма в диапазоне высот 1750-2250 м приходится на канал 513

нм, а для диапазона 2750-3500 м этот максимум смещается в канал 560 нм. Значение G_{513} возрастает (до $6 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$), указывая, что слой на высоте 3000 м может содержать дым, спускающийся из верхней тропосферы. Это согласуется с результатами анализа обратных траекторий на рисунке 58.

Чтобы проверить, насколько полученный спектр обратного флуоресцентного рассеяния ($B_{\lambda}^U + B_{\lambda}^S$) соответствует значениям B_{λ} , на рисунке 62 показаны эти спектры для интервала высот 1400-1600 м, где городской аэрозоль смешиваются с дымом. Расчеты проводились с использованием коэффициентов для средней и верхней тропосферы из таблицы 4. Коэффициенты для средней тропосферы обеспечивают лучшее соответствие измерениям, и их использование, вероятно, более целесообразно.

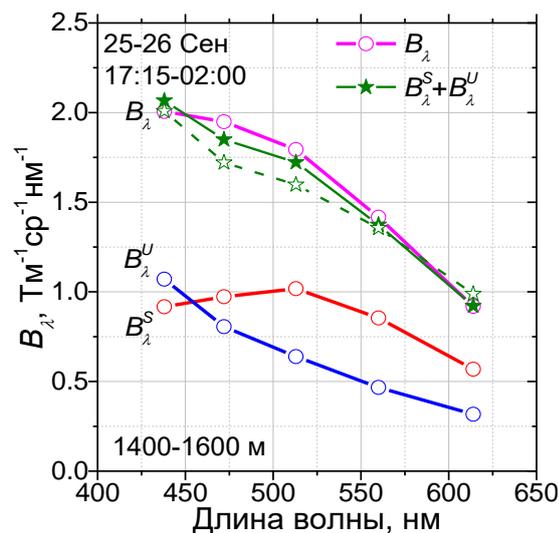


Рисунок 62 – Спектры обратного флуоресцентного рассеяния B_{λ} вместе с расчетными вкладами дыма (B_{λ}^S), городского аэрозоля (B_{λ}^U), и их суммой ($B_{\lambda}^U + B_{\lambda}^S$), в интервале высот 1400-1600 м 25-26 сентября 2023 г. Расчеты проводились с использованием коэффициентов для средней (сплошные символы) и для верхней тропосферы (открытые символы).

5.6.3 Смесь дыма и городского аэрозоля внутри пограничного слоя 26-27 сентября 2023 г

В ночь с 26 на 27 сентября 2023 г. воздушные массы, перенесенные из Северной Америки, опускались с высоты 7000 м до 2000 м, как это следует из анализа обратных траекторий на рисунке 63. Таким образом, дым может смешиваться с городским аэрозолем внутри пограничного слоя. Пространственно-временные распределения параметров аэрозоля, таких как β_{355} , V_{513} , G_{513} и V_{560}/V_{438} , показаны на рисунке 64. Обратное аэрозольное рассеяние быстро убывает выше 1200 м, и радиозондовые измерения показывают температурную инверсию на той же высоте. Как и в измерениях 25 сентября (рисунок 59), эффективность флуоресценции и отношение V_{560}/V_{438} ниже 1200 м ниже соответствующих величин над пограничным слоем. Из пространственно-временных распределений V_{438}^U и V_{438}^S на рисунке 65 можно сделать вывод, что 26-27 сентября, как и в предыдущую ночь, дым располагался, главным образом, над пограничным слоем. Вместе с тем, наблюдалось присутствие дыма и внутри пограничного слоя.

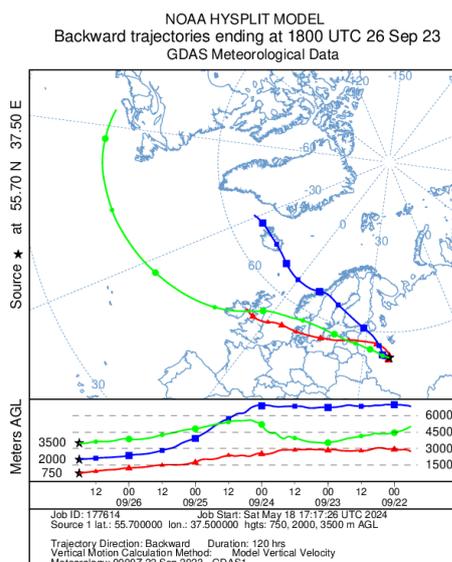


Рисунок 63 – Обратные траектории воздушных масс над Москвой рассчитанные в рамках модели NOAA HYSPLIT для воздушных масс на высотах 750 м, 2000 м и 3500 м 26 сентября 2023 г. в 18:00 UTC.

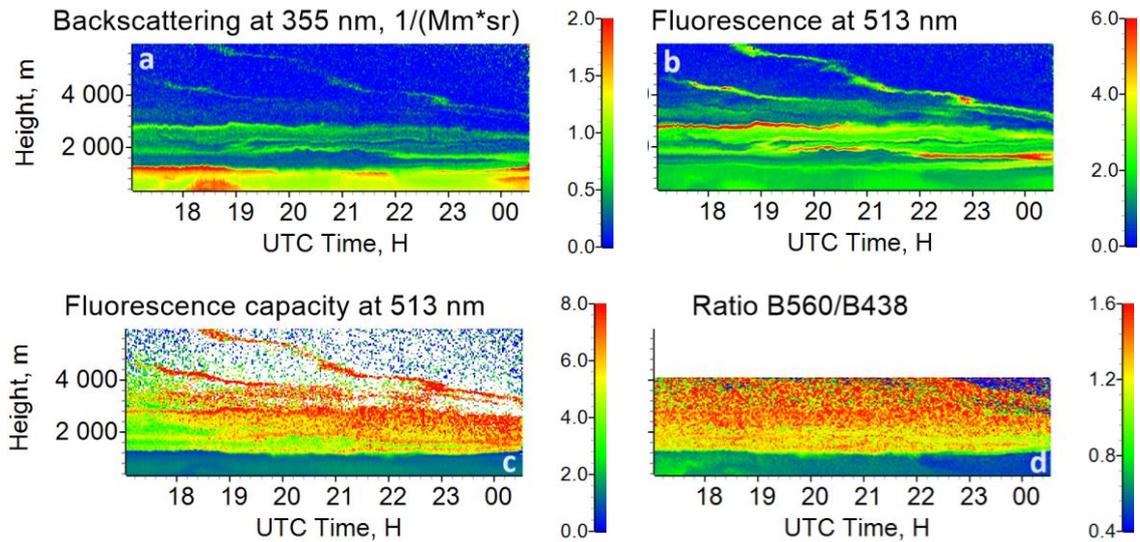


Рисунок 64 – Пространственно-временные распределения коэффициента обратного аэрозольного рассеяния β_{355} (a), коэффициента обратного флуоресцентного рассеяния B_{513} (в $\text{Tm}^{-1}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}$) (b), эффективности флуоресценции G_{513} (в 10^{-6}nm^{-1}) (c), и отношение B_{560}/B_{438} (d) в ночь с 26 на 27 сентября 2023 г.

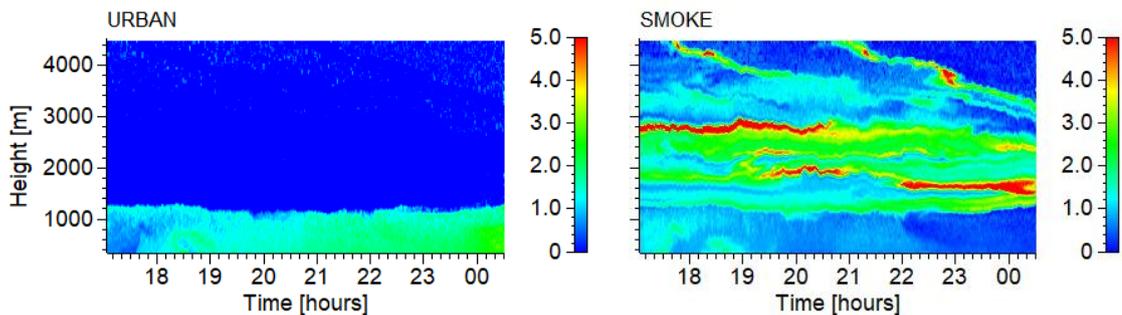


Рисунок 65 – Обратное рассеяние флуоресценции (в $\text{Tm}^{-1}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}$) на длине волны 438 нм, соответствующее городскому аэрозолю (B_{438}^U) (a) и дыму (B_{438}^S) (b) 26-27 сентября 2023 г. Распределения получены с использованием коэффициентов для средней тропосферы.

Вертикальные профили параметров частиц, усредненные в интервале 17:10-23:00 UTC, представлены на рисунке 66. Измеренная радиозондом относительная влажность увеличивается с высотой, достигая 80% на высоте 1400 м, а увеличение β_{355} вблизи вершины пограничного слоя, вероятно, связано с гигроскопическим ростом аэрозоля. Отношение B_{560}/B_{438} в пределах пограничного слоя составляет около 0,65, что выше, чем в предыдущую ночь, и может быть связано с наличием дыма. Выше пограничного слоя, где преобладают слои дыма, это соотношение увеличивается примерно до 1,4.

Профили B_{513}^U и B_{513}^S рассчитываются с использованием коэффициентов для средней тропосферы. В пределах пограничного слоя коэффициенты обратного рассеяния флуоресценции дыма и городского аэрозоля примерно равны: $B_{513}^U \approx B_{513}^S \approx 0,9 \text{ Тм}^{-1}\text{ср}^{-1}\text{нм}^{-1}$.

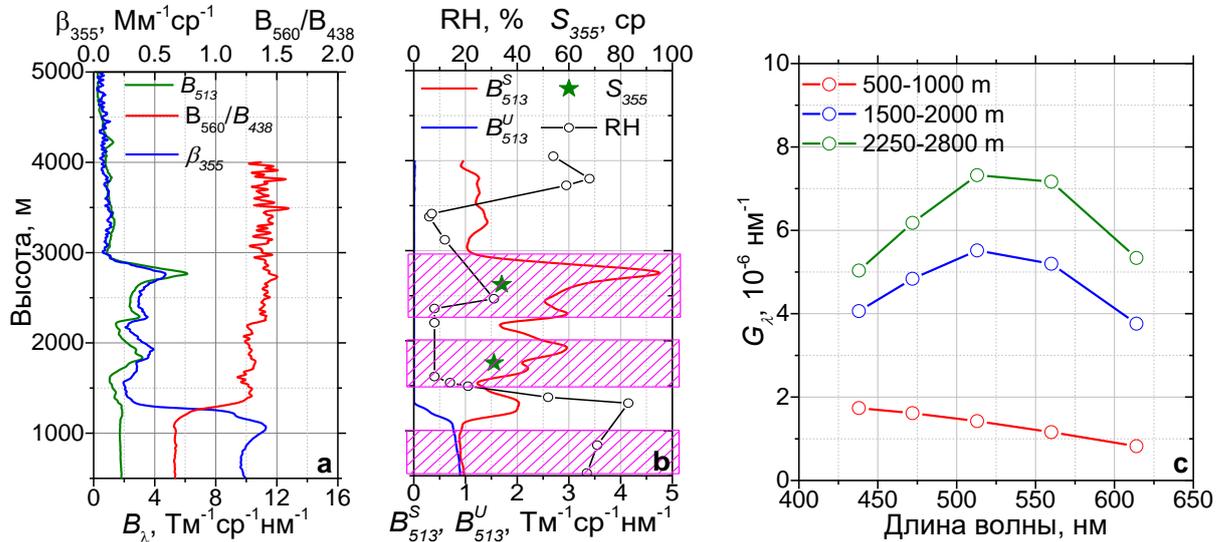


Рисунок 66 – Вертикальные профили коэффициента обратного аэрозольного и флуоресцентного рассеяния β_{355} и B_{513} , обратного флуоресцентного рассеяния и отношения B_{560}/B_{438} (а). Вклад дыма и городского аэрозоля в общий коэффициент обратного рассеяния флуоресценции B_{513} , а также относительная влажность (RH), измеренная радиозондом. Звездочки обозначают усредненные лидарные отношения S_{355} (б). Спектры эффективности флуоресценции G_λ в разных диапазонах высот (с). Эти диапазоны отмечены на графике б пурпурными прямоугольниками.

Спектры эффективности флуоресценции для трех диапазонов высот показаны на рисунке 66с. В пределах пограничного слоя G_λ уменьшается с длиной волны и $G_{513}=1,4 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$. Это значение выше, чем в предыдущую ночь, что может быть связано с наличием дыма. Выше пограничного слоя максимумы спектра соответствуют 513 нм, а $G_{513} \approx 7,2 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$ для интервала высот 2250-2800 м. Такая высокая эффективность флуоресценции обычно наблюдается в верхней тропосфере, что согласуется с результатами анализа обратных траекторий. Спектры коэффициентов обратного флуоресцентного рассеяния, соответствующие дыму и городскому аэрозолю в пограничном

слое, показаны на рисунке 67. Видно, что вычисленный и измеренный спектры практически совпадают.

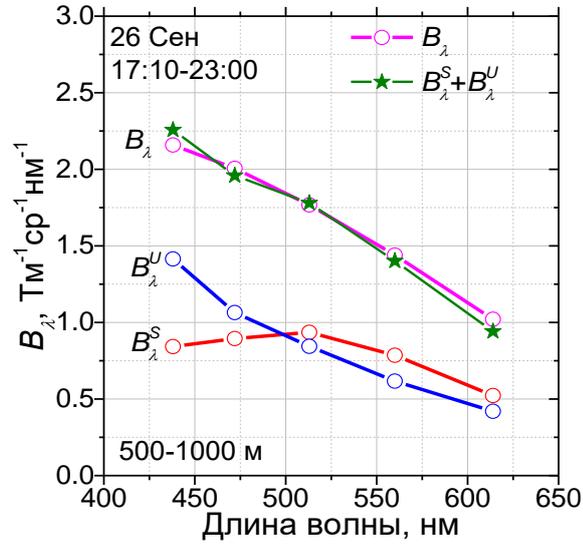


Рисунок 67 – Спектры обратного рассеяния флуоресценции B_{λ} вместе с расчетными вкладами дыма (B_{λ}^S), городского аэрозоля (B_{λ}^U), и их суммой ($B_{\lambda}^U + B_{\lambda}^S$), в интервале высот 500-1000 м. В расчетах использовались коэффициенты α_i^S и α_i^U для средней тропосферы.

Как обсуждалось в разделе 5.1, массовую концентрацию дыма внутри пограничного слоя можно оценить из β_{355}^S , если известен вклад дыма в общее обратное рассеяние. Этот вклад можно рассчитать как $\beta_{355}^S = \frac{B_{513}^S}{G_{513}}$. Эффективность флуоресценции дыма варьируется в широких пределах, но если предположить, что в интервале 500-2000 м она не меняется, то используя $G_{513} = 5,5 \cdot 10^{-6} \text{ нм}^{-1}$, получим $\beta_{355}^S = 0,16 \text{ Мм}^{-1}\text{ср}^{-1}$. Таким образом, массовую концентрацию дыма в пограничном слое можно ориентировочно оценить как $0,8 \text{ мкг/м}^3$.

5.7 Выводы к разделу 5

1. Наблюдения, проводимые в сезон лесных пожаров с использованием пятиканального флуоресцентного лидара, выявили различие между спектрами флуоресценции дыма и городского аэрозоля. Спектр флуоресценции городского аэрозоля уменьшается с длиной волны. Флуоресценция дыма, напротив, демонстрирует максимум в канале 513 нм или 560 нм. Это различие в спектрах можно эффективно использовать для разделения соответствующих типов аэрозоля.

2. Анализ данных выявил зависимость эффективности флуоресценции дыма от высоты. Несмотря на сильные вариации, наблюдается тенденция к увеличению эффективности флуоресценции на всех длинах волн с высотой. Максимум спектра флуоресценции дыма сдвигается с высотой в длинноволновую область.

3. Использование спектров флуоресценции позволяет разделять фракции городского аэрозоля и дыма, а также оценивать их массовые концентрации.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключении приведены 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/м^3 .

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 в средней тропосфере до 7,6 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.

Результаты диссертационной работы могут быть использованы при решении широкого класса фундаментальных и прикладных задач, связанных с исследованием атмосферного переноса различных типов аэрозоля, таких как продукты горения биомассы, пустынная пыль, растительная пыльца и анализом их влияния на радиационный баланс и воздействия на окружающую среду.

Проведенные исследования показывают, что возможности флуоресцентных лидаров по идентификации типов аэрозоля могут быть расширены при использовании дополнительных длин волн возбуждающего лазерного излучения. Особенно перспективно использование ХеСІ лазера с длиной волны 308 нм. Излучение ХеСІ лазера достаточно слабо поглощается озоном и может быть использовано вплоть до нижней стратосферы. В то же время, сечение флуоресценции многих органических соединений на порядок превосходит сечение флуоресценции, соответствующее длине волны 355 нм, использованной в диссертационной работе. Очень важным оказывается также

проведение флуоресцентных измерений в коротковолновой области, соответствующей рамановским линиям метана и углекислого газа, поскольку флуоресценция аэрозоля вносит погрешности в рамановские измерения и должна корректироваться.

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. Веселовский, И.А. Дистанционная лазерная диагностика аэрозольных и газовых составляющих атмосферы методами рамановского и упругого рассеяния: дис. ... док. физ.-мат. наук 01.04.21 / И.А. Веселовский – Москва, 2005. – 390 с.

3. Lidar. Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere // ed. Weitkamp C. – Springer. – N.Y. – 2005. – 466 p.

4. Зуев, В.Е. Лазерное зондирование тропосферы и поверхности Земли / В. Е. Зуев // Новосибирск: Наука. – 1987. – 321с.

5. Бункин, А.Ф. Физические основы лазерного аэрозондирования поверхности земли / А.Ф. Бункин // Ташкент: издательство Фан. – 1987. – 272 с.

6. Захаров, В.М. Лидары и исследование климата. / В.М. Захаров, О.К. Костко, С.С. Хмелевцов // Ленинград: Гидрометиздат – 1990. – 180 с.

7. Суворина, А.С. Восстановление физических параметров атмосферного аэрозоля из многоволновых лидарных измерений: дис. ... канд. физ.-мат. наук 01.04.21 / А.С. Суворина – Москва, 2016. – 164 с.

8. Klett, D. Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios / D. Klett // Appl. Opt. – 1985. – V.24 - № 11. – P.1638-1643.

9. Depolarization ratio profiling at several wavelengths in pure Saharan dust during SAMUM 2006 / V. Freudenthaler, M. Esselborn, M. Wiegner [et al.] // Tellus B: Chemical and Physical Meteorology. – 2009. – Vol. 61. - № 1. – P. 165-179.

10. 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.

11. The EarthCARE Satellite: The Next Step Forward in Global Measurements of Clouds, Aerosols, Precipitation, and Radiation / A.J. Illingworth, H.W. Barker, A. Beljaars [et al.] // *Bulletin of the American Meteorological Society*. – 2015. – Vol. 96. - № 8. – P. 1311–1332.

12. 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.

13. 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.

14. 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.

15. 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.

16. Remote sensing of cloud, aerosol, and water vapor properties from the moderate resolution imaging spectrometer (MODIS) / M.D. King, Y.J. Kaufman, W.P. Menzel [et al.] // *IEEE Trans. Geosci. Remote Sensing.* – 1992. – Vol. 30. - № 1. – P. 2–27.

17. Global observation of anthropogenic aerosols from satellite / D. Tanré, F.M. Bréon, J.L. Deuzé [et al.] // *Geophysical Research Letters*. – 2001. – V.28. – № 24. – P.4555-4558.

18. Satellite-based estimate of the direct and indirect aerosol climate forcing / J. Quaas, O. Boucher, N. Bellouin [et al.] // *J. Geophys. Res.* – 2008. – Vol. 113. - № D05204.

19. Overview of the CALIPSO Mission and CALIOP Data Processing Algorithms / D.M. Winker, M.A. Vaughan, A. Omar [et al.] // *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology.* – 2009. – Vol. 26. - № 11. – P. 2310–2323.

20. Kaufman, Y.J. A satellite view of aerosols in the climate system / Y.J. Kaufman, D. Tanré, O. Boucher // *Nature*. – 2002. – Vol. 419. - № 6903. – P. 215–223.
21. Mishchenko, M.I. Depolarization of lidar returns by small ice crystals: An application to contrails / M.I. Mishchenko, K. Sassen // *Geophysical Research Letters*. – 1998. – Vol. 25. - № 3. – P. 309–312.
22. Multiangle implementation of atmospheric correction (MAIAC): 2. Aerosol algorithm / A. Lyapustin, Y. Wang, I. Laszlo [et al.] // *J. Geophys. Res.* – 2011. – Vol. 116. - № D03211.
23. AERONET - a federated instrument network and data archive for aerosol characterization / B.N. Holben, T.F. Eck, I. Slutsker [et al.] // *Remote Sens. Environ.* – 1998. – V. 66. – P. 1-16.
24. Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements / O. Dubovik, A. Smirnov, B. N. Holben [et al.] // *J. Geophys. Res.* – 2000. – Vol. 105. - № D8. – P. 9791–9806.
25. Зуев, В.Е. Обратные задачи лазерного зондирования атмосферы / В.Е. Зуев и др. // Изд-во "Наука", Сибирское отд-ние. – 1982. – 288 с.
26. Muller, D. Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion through regularization: simulation / D. Muller, U. Wandinger, A. Ansmann // *Appl. Opt.* – 1999. – V.12. – № 38. – P.2358-2367.
27. Тихонов, А.Н. Методы решения некорректных задач / А.Н. Тихонов, В.Я. Арсенин // М.: Наука. – 1974. – 285 с.
28. 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.
29. Inversion of multiwavelength Raman lidar data for retrieval of bimodal aerosol size distribution / I. Veselovskii, A. Kolgotin, V. Griaznov [et al.] // *Appl. Opt.* – 2004. – V.43. - № 5 – P.1180-1195.

30. EARLINET: towards an advanced sustainable European aerosol lidar network / G. Pappalardo, A. Amodeo, A. Apituley [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2014. – Vol. 7. - № 8. – P. 2389–2409.

31. 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.

32. 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.

33. The characterization of long-range transported North American biomass burning plumes: what can a multi-wavelength Mie–Raman-polarization-fluorescence lidar provide? / Q. Hu, P. Goloub, I. Veselovskii, T. Podvin // *Atmos. Chem. Phys.* – 2022. – Vol. 22. - № 8. – P. 5399–5414.

34. Biomass burning events measured by lidars in EARLINET – Part 2: Optical properties investigation. / M. Adam, I.S. Stachlewska, L. Mona [et al.] // *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2021.

35. 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.

36. Pan, Y.-L. Detection and characterization of biological and other organic-carbon aerosol particles in atmosphere using fluorescence / Y.-L. Pan // *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer.* – 2015. – Vol. 150. – P. 12–35.

37. Ground-based measurement of fluorescent aerosol particles in Tokyo in the spring of 2013: Potential impacts of nonbiological materials on autofluorescence measurements of airborne particles / T. Miyakawa, Y. Kanaya, F. Taketani [et al.] // *JGR Atmospheres.* – 2015. – Vol. 120. - № 3. – P. 1171–1185.

38. 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.

39. Preliminary measurements of fluorescent aerosol number concentrations using a laser-induced fluorescence lidar / Z. Rao, T. He, D. Hua [et al.] // *Appl. Opt.* – 2018. – Vol.57. – № 27. – P.7211–7215.

40. 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.

41. Fluorescent aerosol observation in the lower atmosphere with an integrated fluorescence-Mie lidar / B. Li, S. Chan, Y. Zhang [et al.] // *J. Quant. Spectrosc. Ra.* – 2019. – Vol.227. – P. 211–218.

42. 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.

43. Reichardt, J. Cloud and Aerosol Spectroscopy with Raman Lidar / J. Reichardt // *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*. – 2014. – Vol. 31. - № 9. – P. 1946–1963.

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

45. Reichardt, J. Fluorescence spectra of atmospheric aerosols / J. Reichardt, F. Lauer mann, O. Behrendt // *Atmos. Chem. Phys.* – 2025 [Preprint]

46. Angle- and size-dependent characteristics of incoherent Raman and fluorescent scattering by microspheres 2.: Numerical simulation / I. Veselovskii, V. Griaznov, A. Kolgotin, D.N. Whiteman // *Appl. Optics*. – 2002 – Vol. 41. - №27. – P. 5783–5791.

47. Combined use of Mie–Raman and fluorescence lidar observations for improving aerosol characterization: feasibility experiment / I. Veselovskii, Q. Hu, P. Goloub [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2020. – Vol. 13. - № 12. – P. 6691–6701.

48. 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.

49. Mie–Raman–fluorescence lidar observations of aerosols during pollen season in the north of France / I. Veselovskii, Q. Hu, P. Goloub [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2021. – Vol. 14. - № 7. – P. 4773–4786.

50. Variability in lidar-derived particle properties over West Africa due to changes in absorption: towards an understanding / I. Veselovskii, Q. Hu, P. Goloub [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2020. – Vol. 20. - № 11. – P. 6563–6581.

51. Profiling of Saharan dust from the Caribbean to western Africa – Part 1: Layering structures and optical properties from shipborne polarization. Raman lidar observations / F. Rittmeister, A. Ansmann, R. Engelmann [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2017. – Vol. 17. - № 21. – P. 12963–12983.

52. Cao, X. Lidar polarization discrimination of bioaerosols / X. Cao, G.A. Roy, R. Bernier // *Opt. Eng.* – 2010. – Vol. 49. - №11. – P.116201.

53. Detection and characterization of birch pollen in the atmosphere using a multiwavelength Raman polarization lidar and Hirst-type pollen sampler in Finland / S. Bohlmann, X. Shang, E. Giannakaki [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2019. – Vol. 19 - № 23. – P. 14559–14569.

54. Observations of the spectral dependence of linear particle depolarization ratio of aerosols using NASA Langley airborne High Spectral Resolution Lidar / S.P. Burton, J.W. Hair, M. Kahnert [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2015. – Vol. 15. - № 23. – P. 13453–13473.

55. Depolarization and lidar ratios at 355, 532, and 1064 nm and microphysical properties of aged tropospheric and stratospheric Canadian wildfire

smoke / M. Haarig, A. Ansmann, H. Baars [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2018. – Vol. 18. - № 16. – P. 11847–11861.

56. Long-range-transported Canadian smoke plumes in the lower stratosphere over northern France / Q. Hu, P. Goloub, I. Veselovskii [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2019. – Vol. 19. - № 2. – P. 1173–1193.

57. Fluorescence lidar observations of wildfire smoke inside cirrus: A contribution to smoke-cirrus – interaction research / I. Veselovskii, Q. Hu, A. Ansmann [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2022. – Vol. 22. - № 8. – P. 5209–5221.

58. Cholleton, D. Laboratory Evaluation of the (355, 532) nm Particle Depolarization Ratio of Pure Pollen at 180.0° Lidar Backscattering Angle / D. Cholleton, P. Rairoux, A. Miffre // *Remote Sensing.* – 2022. – Vol. 14 (15). – P. 3767.

59. Sugimoto, N. Characteristics of dust aerosols inferred from lidar depolarization measurements at two wavelengths / N. Sugimoto, C. H. Lee // *Appl. Optics.* – 2006. – Vol. 45. - № 28. – P. 7468–7474.

60. Vertically resolved separation of dust and smoke over Cape Verde using multiwavelength Raman and polarization lidars during Saharan Mineral Dust Experiment 2008 / M. Tesche, A. Ansmann, D. Müller [et al.] // *J. Geophys. Res.* 2009. – Vol. 114. - № D13202.

61. Miffre, A. On the use of light polarization to investigate the size, shape, and refractive index dependence of backscattering Ångström exponents / A. Miffre, D. Cholleton, P. Rairoux // *Opt. Lett.* – 2020. – Vol. 45. - № 5. – P. 1084–1087.

62. Separating mixtures of aerosol types in airborne High Spectral Resolution Lidar data / S.P. Burton, M.A. Vaughan, R.A. Ferrare, C.A. Hostetler // *Atmos. Meas. Tech.* – 2014. – Vol. 7. - № 2. – P. 419–436.

63. DeLiAn – a growing collection of depolarization ratio, lidar ratio and Ångström exponent for different aerosol types and mixtures from ground-based lidar observations / A A. Floutsi, H. Baars, R. Engelmann [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2023. – Vol. 16. - № 9. – P. 2353–2379.

64. Lakowicz, J.R. Principles of Fluorescence Spectroscopy / ed. J.R. Lakowicz // Boston, MA: Springer US, 2006.

65. 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.

66. 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.

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

68. Immler, F. Fluorescence from atmospheric aerosol detected by a lidar indicates biogenic particles in the lowermost stratosphere / F. Immler, D. Engelbart, O. Schrems // Atmos. Chem. Phys. – 2005. – Vol. 5. - № 2. – P. 345–355.

69. Ångström, A. On the atmospheric transmission of sun radiation and on dust in the air / A. Ångström // Geogr. Ann. Dtsch. – 1929. – V.12. - № 2. – P.156–166.

70. Independent measurement of extinction and backscatter profiles in cirrus clouds by using a combined Raman elastic-backscatter lidar / A. Ansmann, U. Wandinger, M. Riebesell [et al.] // Appl. Opt. –1992. – V.31. – № 33. – P. 7113–7131.

71. Rotational Raman Lidar measurements of atmospheric temperature in the UV / P. Di Girolamo, R. Marchese, D.N. Whiteman, B.B. Demoz // Geophys. Res. Lett. – 2004. – V.31. – L01106.

72. Pure rotational-Raman channels of the Esrange lidar for temperature and particle extinction measurements in the troposphere and lower stratosphere / P. Achtert, M. Khaplanov, F. Khosrawi, J. Gumbel // Atmos. Meas. Tech. – 2013. – Vol. 6. - № 1. – P. 91–98.

73. Combined Raman lidar for the measurement of atmospheric temperature, water vapor, particle extinction coefficient, and particle backscatter coefficient / A. Behrendt, T. Nakamura, M. Onishi [et al.] // *Appl. Opt.* – 2002. – Vol. 41. - № 36. – P. 7657-7666.

74. Simultaneous measurement of atmospheric temperature, humidity, and aerosol extinction and backscatter coefficients by a combined vibrational-pure-rotational Raman lidar / I. Balin, I. Serikov, S. Bobrovnikov [et al.] // *Appl Phys B.* – 2004. – Vol. 79 - № 6. – P. 775–782.

75. Penney, C.M. Absolute rotational Raman cross sections for N_2 , O_2 , and CO_2 / C.M. Penney, R.L. St Peters, M. Lapp // *JOSA* – 1974. – Vol. 64. - № 5. – P. 712-716.

76. Use of rotational Raman measurements in multiwavelength aerosol lidar for evaluation of particle backscattering and extinction / I. Veselovskii, D.N. Whiteman, M. Korenskiy [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2015. – V.8. – № 9. – P.4111-4122.

77. Schotland, R.M. Observations by lidar of linear depolarization ratios for hydrometeors / R. M. Schotland, K. Sassen, R. Stone // *J. Appl. Meteorol.* – 1971. – Vol. 10. - № 5. – P. 1011–1017.

78. Sassen, K. The Polarization Lidar Technique for Cloud Research: A Review and Current Assessment / K. Sassen // *Bull. Amer. Meteor. Soc.* – 1991. – Vol. 72. - № 12. – P. 1848–1866.

79. Sassen, K. Polarization in Lidar / K. Sassen // *Lidar* / ed. Weitkamp C. New York: Springer-Verlag, 2005. – Vol. 102. – P. 19–42.

80. Ice formation in Saharan dust over central Europe observed with temperature/humidity/aerosol Raman lidar / A. Ansmann, I. Mattis, D. Müller [et al.] // *J. Geophys. Res.* – 2005. – Vol. 110 - №D18S12.

81. Influence of Saharan dust on cloud glaciation in southern Morocco during the Saharan Mineral Dust Experiment / A. Ansmann, M. Tesche, D. Althausen [et al.] // *J. Geophys. Res.* – 2008. – Vol. 113. - №D04210.

82. Mamouri, R.-E. Potential of polarization/Raman lidar to separate fine dust, coarse dust, maritime, and anthropogenic aerosol profiles / R.-E. Mamouri, A. Ansmann // *Atmos. Meas. Tech.* – 2017. – Vol. 10. - № 9. – P. 3403–3427.

83. POLIPHON conversion factors for retrieving dust-related cloud condensation nuclei and ice-nucleating particle concentration profiles at oceanic sites / Y. He, Z. Yin, A. Ansmann [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2023. – Vol. 16. - № 7. – P. 1951–1970.

84. Dust mass, cloud condensation nuclei, and ice-nucleating particle profiling with polarization lidar: updated POLIPHON conversion factors from global AERONET analysis / A. Ansmann, R.-E. Mamouri, J. Hofer [et al.] // *Atmos. Meas. Tech.* – 2019. – V. 12. - № 9. – P. 4849–4865.

85. Tropospheric and stratospheric wildfire smoke profiling with lidar: mass, surface area, CCN, and INP retrieval / A. Ansmann, K. Ohneiser, R.-E. Mamouri [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2021. – Vol. 21. - № 12. – P. 9779–9807.

86. Smoke of extreme Australian bushfires observed in the stratosphere over Punta Arenas, Chile, in January 2020: optical thickness, lidar ratios, and depolarization ratios at 355 and 532 nm / K. Ohneiser, A. Ansmann, H. Baars [et al.] // *Atmos. Chem. Phys.* – 2020. – V. 20. - № 13. – P. 8003–8015.

87. Mishchenko, M.I. Linear depolarization of lidar returns by aged smoke particles / M.I. Mishchenko, J.M. Dlugach, L.Liu // *Appl. Optics.* – 2016. – Vol. 55. - № 35. – P. 9968–9973.

88. Knippers, W. Vibrational overtones of the homonuclear diatomics (N_2 , O_2 , D_2) observed by the spontaneous 385 Raman effect / W. Knippers, K. van Helvoort, S. Stolte // *Chem. Phys. Lett.* – 1985. – Vol. 121. - № 4-5. – P. 279–286.

89. Lamp mapping technique for independent determination of the water vapor mixing ratio calibration factor for a Raman lidar system / D.D. Venable, D.N. Whiteman, M.N. Calhoun [et al.] // *Appl. Optics.* – 2011. – Vol. 50. - № 23. – P. 4622–4632.

90. NOAA's HYSPLIT Atmospheric Transport and Dispersion Modeling System / A. F. Stein, R. R. Draxler, G.D. Rolph, [et al.] // BAMS. – 2015. – Vol. 69. - № 12. – P. 2059-2077.