РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК ИНСТИТУТ ОБЩЕЙ ФИЗИКИ

им. А.М. Прохорова

УДК 535.31

На правах рукописи

ВЕСЕЛОВСКИЙ Игорь Александрович

ДИСТАНЦИОННАЯ ЛАЗЕРНАЯ ДИАГНОСТИКА АЭРОЗОЛЬНЫХ И ГАЗОВЫХ СОСТАВЛЯЮЩИХ АТМОСФЕРЫ МЕТОДАМИ РАМАНОВСКОГО И УПРУГОГО РАССЕЯНИЯ

Диссертация на соискание ученой степени доктора физикоматематических наук.

Москва – 2005

оглавление

| ВВЕДЕНИЕ1 |
|--|
| ГЛАВА І. АНАЛИЗ ИНФОРМАЦИИ, СОДЕРЖАЩЕЙСЯ В СПЕКТРАХ |
| ОБРАТНОГО РАССЕЯНИЯ И ЭКСТИНКЦИИ АЭРОЗОЛЯ |
| § 1.1. Методология анализа |
| § 1.2 Информация, содержащаяся в данных многоволнового лидарного |
| зондирования |
| 1.2.1 Определение реальной и мнимой части показателя преломления при |
| известном среднем радиусе частиц53 |
| 1.2.2 Определение среднего радиуса частиц при известном показателе |
| преломления55 |
| 1.2.3 Определение параметров частиц в отсутствие предварительной |
| информации |
| § 1.3. Оценка количества независимых компонент в вариациях спектров |
| обратного рассеяния и экстинкции частиц67 |
| § 1.4. Эффект увеличения количества длин волн зондирующего излучения69 |
| § 1.5. Основные результаты72 |
| ГЛАВА II. ОПРЕДЕЛЕНИЕ МИКРОФИЗИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ |
| АТМОСФЕРНОГО АЭРОЗОЛЯ ПО ДАННЫМ МНОГОВОЛНОВОГО |
| ЛИДАРНОГО ЗОНДИРОВАНИЯ74 |
| §2.1. Использование метода регуляризации Тихонова для решения обратной |
| задачи многоволнового лидарного зондирования76 |
| §2.2 Численное моделирование восстановления мономодального |
| распределения аэрозоля по размерам из данных лидарного зондирования84 |
| 2.2.1. Постановка задачи |
| 2.2.2. Анализ прямой задачи |
| 2.2.3. Восстановление распределения аэрозоля по размерам для различных |
| наборов входных оптических данных91 |
| 2.2.4. Процедура усреднения решений94 |
| 2.2.5. Определение показателя преломления аэрозоля |

| 2.2.6. Точность оценки параметров аэрозоля 101 |
|--|
| §2.3. Восстановление бимодального распределения аэрозоля по размерам 104 |
| 2.3.1. Выбор исходных параметров при моделировании104 |
| 2.3.2. Восстановление бимодального распределения по размерам в |
| отсутствие погрешностей измерения109 |
| 2.3.3. Усреднение решений для случая бимодального распределения по |
| размерам113 |
| 2.3.4. Влияние типов ядер интегрального уравнения и количества базовых |
| функций на стабильность решения обратной задачи 118 |
| 2.3.5. Погрешности восстановления основных микрофизических параметров |
| аэрозоля122 |
| 2.3.6. Восстановление распределения по размерам в ситуации, когда |
| показатели преломления частиц в каждой из мод могут различаться 128 |
| § 2.4. Определение параметров аэрозоля по экспериментальным данным |
| многоволновых лидарных измерений |
| 2.4.1. Описание многоволнового лидара |
| 2.4.2. Методика вычисления коэффициентов обратного рассеяния и |
| экстинкции аэрозоля135 |
| 2.4.3. Использование разработанного алгоритма решения обратной задачи |
| для обработки экспериментальных данных лидарного зондирования 139 |
| 2.4.4. Сравнение результатов лидарных измерений с результатами |
| локального забора проб150 |
| §2.5. Основные результаты156 |
| ГЛАВА III. МОДЕЛИРОВАНИЕ РАМАНОВСКОГО РАССЕЯНИЯ |
| ИЗЛУЧЕНИЯ МИКРОСФЕРАМИ158 |
| § 3.1. Вывод математических выражений для расчета характеристик |
| рамановского рассеяния излучения микросферами в рамках дипольной модели |
| |
| 3.1.1 Постановка задачи в рамках дипольной модели и получение основных |
| соотношений |

| 3.1.2 Рассмотрение некоторых предельных случаев |
|--|
| § 3.2. Численное моделирования рамановского рассеяния излучения |
| микросферами |
| 3.2.1. Угловые характеристики рамановского рассеяния излучения |
| микросферами176 |
| 3.2.2. Структурные резонансы при рамановском рассеянии |
| 3.2.3. Рамановское рассеяние излучения микросферами в применении к |
| задаче лидарного зондировани182 |
| § 3.3. Основные результаты 196 |
| ГЛАВА IV. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ РАМАНОВСКОГО ЛИДАРА ДЛЯ |
| ИЗУЧЕНИЯ ВАРИАЦИЙ СОДЕРЖАНИЯ ВОДЫ В АТМОСФЕРЕ В |
| РАЗЛИЧНЫХ АГРЕГАТНЫХ СОСТОЯНИЯХ198 |
| § 4.1. Разработка рамановского лидара для атмосферных исследований 199 |
| 4.1.1. Описание лидара 199 |
| 4.1.2. Измерение содержания водяного пара202 |
| § 4.1. Использование рамановского лидара для определения содержания |
| |
| жидкой воды в атмосфере |
| жидкой воды в атмосфере |
| жидкой воды в атмосфере |
| жидкой воды в атмосфере |
| жидкой воды в атмосфере |
| жидкой воды в атмосфере |
| жидкой воды в атмосфере |

| 5.2.1. Зависимость параметров рассеяния сфер от размера сферических |
|--|
| включений |
| 5.2.2. Зависимость коэффициента обратного рассеяния сфер от |
| вертикального смещения включений247 |
| 5.2.3. Рассеивающие свойства водяной сферы содержащей ледяное ядро248 |
| § 5.3. Основные результаты |
| ГЛАВА VI. ИССЛЕДОВАНИЕ ВАРИАЦИЙ СТРАТОСФЕРНОГО И |
| ТРОПОСФЕРНОГО ОЗОНА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ЛИДАРА |
| ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ264 |
| § 6.1. Формирование требуемых пространственных, спектральных и временных |
| параметров излучения эксимерных лазеров для использования их в системах |
| дистанционного мониторинга |
| 6.1.1 Формирование пучков излучения эксимерных лазеров с высокой |
| пространственной и спектральной яркостью |
| 6.1.2. Укорочение импульсов эксимерных лазеров в процессе вынужденного |
| рассеяния Мандельштама-Бриллюена и оптического пробоя на поверхности |
| жидкости |
| § 6.2. Выбор источников излучения для исследования атмосферного озона |
| методом лидара дифференциального поглощения |
| § 6.3. ВКР преобразование излучения KrF лазера |
| §6.4. Лидар дифференциального поглощения на основе эксимерных лазеров |
| для исследования стратосферного озона |
| § 6.5. Лидар дифференциального поглощения на основе эксимерных лазеров |
| для мониторинга тропосферного озона |
| 6.5.1. Описание лидарной системы |
| 6.5.2. Обработка данных зондирования |
| 6.5.3. Регулярные измерения озона |
| 6.5.4. Использование рамановского рассеяния для одновременного измерения |
| содержания озона и водяного пара |
| § 6.6. Долговременные измерения вариаций тропосферного озона с |

| 6./.1. Исследование суточных вариации содержания озона в нижнеи | |
|---|-----|
| тропосфере | |
| 6.7.2. Наблюдение аномального увеличения концентрации озона в ниж | ней |
| тропосфере | |
| § 6.7. Основные результаты | |
| ЗАКЛЮЧЕНИЕ | |
| | |

введение

Значительные изменения климата, свидетелями которых мы являемся в последние десятилетия, вызывают вопрос о том, до какой степени эти изменения обусловлены деятельностью человека. Увеличение содержания СО2 и аэрозоля в атмосфере, вариации озонного бюджета, индустриальные выбросы - все это оказывает существенное влияние на радиационный баланс Земли. Определение количественного факторов процесс вклала ЭТИХ В климатообразования и разработка дистанционных методов долговременного мониторинга основных параметров атмосферы важнейшими являются задачами, над решением которых работают многочисленные научные группы.

Одним из наиболее перспективных средств дистанционного мониторинга являются лидары. Лидарные системы характеризуются большой дальностью, высоким пространственным разрешением и позволяют измерять основные параметры атмосферы, такие как температуру, влажность, скорость ветра, содержание аэрозоля и другие. Детальное описание принципов работы лидаров и областей их применения можно найти в монографиях [1-10].

В последнее десятилетие происходит интенсивный процесс превращения ИЗ лабораторного оборудования в приборы лидаров для регулярных метеорологических наблюдений, в том числе и в полевых условиях. Данное исследование, проведенное в Центре Физического Приборостроения ИОФ РАН, было направлено, с одной стороны, на разработку новых подходов к задачам лидарного зондирования. С другой стороны, параллельно решалась задача доведения лидарных систем до уровня автоматизированных комплексов, способных проводить долговременные измерения. Основное внимание в диссертации уделяется мониторингу малых составляющих атмосферы, таких как аэрозоль, вода в различных агрегатных состояниях, озон и углекислый газ. Эти составляющие атмосферы играют ключевую роль в формировании радиационного баланса планеты и глобальном изменении климата.

Радиационный баланс Земли, то есть соотношение между долей

солнечной энергии, поглощённой системой Земля-атмосфера, и долей энергии переизлучаемой в космос, определяется газовым составом атмосферы, содержанием аэрозолей и параметрами облаков. Солнечное излучение может рассматриваться, как излучение черного тела со средней температурой около 6000 К. В соответствие с законом Вина максимум энергетического потока приходится на длину волны ~500 нм. Средняя температура системы Земляатмосфера составляет 255 К и длина волны соответствующая максимуму энергетического потока находится в ИК-области спектра в районе 10 мкм. Основные окна прозрачности атмосферы расположены в коротковолновом (0.35-0.7 мкм) и ИК (8-12 мкм) спектральных диапазонах. Значительная доля падающего энергетического потока достигает поверхности через коротковолновое окно прозрачности. В то же время длинноволновое тепловое излучение системы Земля-атмосфера частично поглощается малыми газовыми составляющими и приводит к дополнительному нагреву атмосферы. Данный эффект получил название "парникового" [11].

Воздействие атмосферного аэрозоля на радиационный баланс Земли двояко [12-14]. Во-первых, аэрозоль влияет на радиационный баланс путём рассеяния и поглощения солнечной радиации (прямое воздействие). Во-вторых, это влияние происходит за счёт модификации свойств облаков и изменения содержания газовых примесей вследствие химических реакций (косвенное воздействие). Влияние аэрозоля на радиационный баланс противоположно парниковому эффекту. В то время, как парниковые газы уменьшают радиационную эмиссию Земли, аэрозольное рассеяние, наоборот, ведёт к охлаждению поверхности.

В соответствие с вышесказанным, во введении будут рассмотрены вопросы, связанные с дистанционным определением параметров аэрозоля, облаков, исследованием водного цикла атмосферы, а также измерением содержания важнейших парниковых газов, таких как водяной пар, озон и углекислый газ.

Определение параметров аэрозоля. Специфика методологии изучения

воздействия аэрозоля на климат обусловлена значительными вариациями его пространственного распределения. Время жизни парниковых газов, таких как углекислый газ и метан, составляет порядка 100 лет и их распределение по планете достаточно однородно. Время жизни тропосферного аэрозоля составляет порядка недели, поэтому для изучения переноса аэрозольных выбросов необходим глобальный мониторинг. Соответственно, любая модель, претендующая на реалистичное описание воздействия аэрозоля на климат, должна использовать результаты регулярного и глобального измерения его параметров.

Прямое воздействие аэрозоля зависит, в том числе, от его высотного распределения. Например, аэрозоль, содержащий сажу, сильно поглощает Как следствие, атмосфера солнечное излучение. нагревается при Этот эффект одновременном охлаждении поверхности. сокращает температурный атмосферы, влияя градиент на процесс испарения И информация о Таким образом, вертикальном формирования облаков. распределении аэрозоля и об альбедо однократного рассеяния (соотношение рассеяния и поглощения) становится существенной при моделировании подобных процессов.

посредством Аэрозоль может влиять на водный цикл планеты модификации свойств облаков. В загрязнённых районах мелкий аэрозоль выступает в качестве ядер конденсации, сокращая размер капель в облаках на 20-30%, что увеличивает отражающую способность облаков и, соответственно, охлаждает поверхность [13]. Подавление процесса коалесценции вызванное аэрозолем может влиять на формирование кристаллов льда в облаках, что в свою очередь приводит к изменению их оптических свойств. Последний отчёт Межправительственной Группы по Изменению Климата определяет процесс косвенного воздействия аэрозоля на радиационный бюджет, как наиболее серьёзный источник погрешностей в климатологических моделях [14]. Для уменьшения этой погрешности необходима достоверная информация о параметрах аэрозоля и о процессе модификации параметров облаков при

изменении состава атмосферы.

Дистанционное получать глобальную зондирование позволяет информацию о параметрах аэрозоля и облаков, при этом соответствующие измерения могут проводиться как из космоса, так и с земли. Наиболее простыми и удобными в работе являются системы наземного базирования. Они не проводят мониторинга больших районов, как это делают спутниковые системы, но обеспечивают высокую точность измерений на выбранном участке (подробный обзор спутниковых систем мониторинга аэрозоля можно найти в недавней публикации [13]). Измерение параметров аэрозоля с земли проводится, например, в рамках программы AERONET (Aerosol Robotic Network) [15]. Эта сеть солнечных радиометров насчитывает уже более 100 станций по всему миру и позволяет получать информацию об интегральных по высоте параметрах аэрозоля, таких как оптическая толщина, распределение по размерам, комплексном показателе преломления и альбедо однократного рассеяния. Однако данные солнечных радиометров не содержат информации о вертикальном распределении аэрозоля, что является их существенным недостатком. Кроме того, солнечные радиометры могут быть использованы только в дневное время и в отсутствие облаков. Инструментом, способным заполнить этот информационный пробел, является многоволновый лидар.

В течение последних 30 лет были предложены различные подходы к восстановлению физических параметров частиц по данным многоволновых оптических измерений. Эти подходы используются главным образом в системах пассивного мониторинга. Появление многоволновых лидаров стимулировало перенесение опыта аккумулированного при работе с пассивными инструментами на случай лидарных измерений [16-20]. Однако параметров достоверная оценка оказывалась возможной лишь ДЛЯ стратосферного аэрозоля, поскольку коэффициент преломления И ВИД распределения по размерам в этом случае хорошо известны. Проблемы, возникающие при решении соответствующей обратной задачи, связаны образом главным c недостаточной точностью измерения оптических

характеристик аэрозоля в этих первых экспериментах, а также с относительно небольшим количеством используемых длин волн.

Задача восстановления микрофизических параметров аэрозоля по данным лидарных измерений обычно разделяется на две независимые: вычисление оптических характеристик аэрозоля (коэффициентов экстинкции α и обратного рассеяния В) из результатов лидарных измерений и, затем, восстановление по ЭТИМ оптическим данным параметров аэрозоля. Стабильность решения обратной задачи существенно зависит от погрешностей входных данных (α и β), поэтому улучшение точности определения оптических коэффициентов аэрозоля является принципиальным моментом В многоволновых лидарных измерениях.

Уравнение лидарной локации содержит два неизвестных α и β, и для его решения необходимо задаваться предположениями о соотношении между ними. На этом основаны широко используемые методы Клетта и Ферналда [21,22]. Однако, подобная информация, как правило, не доступна в процессе лидарных измерений, а потому оптические коэффициенты измеряются со значительной погрешностью.

Точность измерения повышается при использовании лидара высокого спектрального разрешения [23], либо рамановского лидара (лидара комбинационного рассеяния) [24]. В этих системах молекулярное рассеяние отделяется от аэрозольного и регистрируется либо на несмещенной частоте (Рэлеевское рассеяние) либо на частотах соответствующих рамановскому (комбинационному) сдвигу молекул кислорода или азота. Предполагая высотное распределение плотности воздуха известным, эти лидары позволяют непосредственно определять коэффициент экстинкции α и использовать его для вычисления β. Точность определения α и β в подобных системах составляет около 10 %. Следует оговориться, что в современных публикациях лидары комбинационного рассеяния повсеместно называются рамановскими, поэтому в процессе изложения будет использоваться именно этот термин.

Сечение рамановского рассеяния атмосферного азота почти на три порядка меньше сечения рэлеевского рассеяния, поэтому до недавнего времени рамановские лидары использовались, главным образом, для исследований в нижней тропосфере. Лишь в последнее десятилетие прогресс в разработке мощных лазерных источников излучения, создании многослойных диэлектрических интерференционных фильтров и приемников излучения с высоким квантовым выходом обеспечили возможность надежной регистрации сигнала рамановского рассеяния на высотах свыше 10 км.

Среди существующих подходов к оценке параметров аэрозолей наиболее простыми являются прямые методы. Они основаны на использовании целого ряда априорных предположений о типе распределения аэрозолей по размерам f(r) и о величине комплексного показателя преломления *m*. На основе этой рассчитываются коэффициенты обратного информации рассеяния И экстинкции аэрозоля для различных параметров распределения и производится их сравнение с экспериментально измеренными величинами. В результате определяются параметры распределения (средний размер и дисперсия), при которых оба набора оптических данных согласуются наилучшим образом [17-19, 25, 26]. Однако такого рода априорная информация доступна лишь для ограниченного круга задач, например, при исследовании стратосферного аэрозоля. В то же время основная часть аэрозолей содержится в тропосфере и характеризуется значительными вариациями физических параметров.

Количество требуемой априорной информации существенно при рассмотрении задачи восстановления уменьшается распределения аэрозолей по размерам по оптическим данным как обратной. Наиболее часто обратные задачи решаются с использованием метода регуляризации Тихонова [27]. Метод регуляризации широко применяется для решения обратных задач оптики атмосферы с начала 70-х годов, когда было показано, что при использовании набора базовых функций и при некоторых предположениях о решения, таких как гладкость и неотрицательность, типе становится возможным восстановление распределение аэрозоля по размерам. Подробное

описание принципов построения регуляризирующего алгоритма можно найти в монографиях [27, 28]. Применение метода регуляризации в многоволновом лидарном зондировании стало возможным лишь относительно недавно, с появлением мощных рамановских лидаров, обеспечивающих достаточную точность измерений. Первой успешной реализацией такого подхода можно результаты, полученные В конце 90-x В Институте считать годов, (ИТИ, Тропосферных Исследований Лейпциг). где была создана многоволновая система, использующая сигналы упругого и рамановского рассеяния для вычисления шести коэффициентов обратного рассеяния и двух коэффициентов экстинкции [29 - 32].

Одной из проблем, возникающих при использовании метода Тихонова, является выбор параметра регуляризации, который в рамках классического подхода возможен только при известной погрешности входных данных. В реальном лидарном зондировании информация о погрешности оптических данных отсутствует, поэтому в алгоритме ИТИ для выбора параметра регуляризации использовался метод обобщенного параметра (оригинальное название "General Cross Validation Parameter").

Хотя алгоритм ИТИ и позволял восстанавливать распределение аэрозоля по размерам в значительном количестве случаев, в ряде ситуаций он вел себя неустойчиво, что приводило к серьезным ошибкам в определении параметров аэрозоля. Наблюдаемая неустойчивость могла быть связана, в том числе, и с используемым критерием выбора параметра регуляризации, поэтому при разработке аналогичного алгоритма в ЦФП ИОФАН [33, 34] (здесь и далее автора цитируемые работы выделены подчеркиванием) использовался критерий минимума невязки, поскольку он наиболее естественен и физически измерениям этот понятен. В применении к лидарным критерий был модифицирован, используя условие неотрицательности решений, ЧТО оценивать параметр регуляризации без априорного позволило знания погрешностей измерения. Для дополнительной стабилизации решения обратной задачи в работах [<u>33</u>, - <u>36</u>] была предложена процедура усреднения

решений. В отличие от классического метода Тихонова, определяющего решение, соответствующее минимуму невязки, как решение обратной задачи, в работах [<u>33</u>, - <u>36</u>] производилось усреднение решений в окрестности этого минимума. В этих же работах были предложенные критерии определения области усреднения. Проведенное сравнение результатов обработки одних и тех же лидарных данных алгоритмами ИТИ и ЦФП с результатами забора локальных проб с борта самолета показали, что алгоритм ЦФП более устойчив и обеспечивает лучшую точность.

Требование глобальности аэрозольных измерений делает необходимым объединение лидаров в сеть. Первая попытка создания такой сети была предпринята в Европе в 2000-2001 году в рамках программы EARLINET [37]. Измерения на 22 лидарных станциях в 13 европейских странах использовались для получения информации о высотном распределении коэффициентов экстинкции и обратного рассеяния. Следующим логическим шагом в развитии этой сети является увеличение числа регистрируемых параметров аэрозоля, в первую очередь это эффективный радиус, концентрация и показатель преломления. К сожалению, многоволновые системы, подобные лидару ИТИ, слишком дороги для использования в подобной сети.

Гораздо более привлекательной является упрощенная версия лидара на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники. Такой лидар использует упругое рассеяние (355, 532, 1064 нм) и сигналы рамановского рассеяния азота (387, 607 нм). Соответственно могут быть определены 3 коэффициента обратного рассеяния и два коэффициента экстинкции (3β+2α набор). Результаты математического моделирования проведенного в работах [33, - 36] демонстрируют, что даже в такой упрощенной конфигурации лидар способен обеспечить достаточную точность оценки параметров аэрозоля. Этот теоретический результат нашел подтверждение при работе с экспериментальными данными. Сравнение параметров аэрозоля полученных из полного набора данных (6β+2α) с результатами обработки ограниченного набора (3β+2α) демонстрирует, что эти результаты согласуются между собой и

находятся в хорошем согласии с результатами заборов проб с борта самолёта [<u>33, 34</u>]. Nd:YAG лазеры с генераторами гармоник доступны для большинства существующих лидарных станций, что позволяет при относительно небольших затратах значительно увеличить объем информации получаемой при зондировании.

Количество длин волн. использкемых для зондирования И. соответственно, стабильность восстановления параметров могут быть увеличены при использовании вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в газах. Использование водородного ВКР-преобразователя и излучения с длиной волн 532 и 355 нм в качестве накачки позволяет эффективно генерировать ВКР-компоненты на длинах волн 416 и 683 нм и использовать их для зондирования [33, 34]. Такая система значительно проще и дешевле, чем лидар ИТИ, где используются два Nd:YAG лазера и два лазера на красителе [29].

Задача восстановления параметров аэрозоля по данным лидарных измерений рассматривается, по большей части, для логнормального размерам. Гораздо чаще в распределении распределения аэрозоля ПО наблюдаются две моды, соответствующие мелкодисперсной И крупнодисперсной фракциям, поэтому способность метода воспроизводить обе эти моды является принципиальной. Анализ возможности использования метода регуляризации для восстановления бимодального распределения в диапазоне размеров аэрозоля 0.1-10 мкм, при ограниченном наборе длин доступных для зондирования, был исследован в работах [35, 36]. Численное моделирование проводилось для различных типов аэрозолей, соответствующих продуктам горения, индустриальным выбросам, а также аэрозолю морского происхождения, при этом показатели преломления мелко и крупнодисперсной фракций могли различаться. Результаты моделирования и экспериментальных измерений демонстрируют, что и в этом случае параметры распределения могут быть определены с использованием $3\beta + 2\alpha$ наборов входных данных.

Одним из принципиальных результатов, полученных в работах [30-32,

<u>33.</u> - <u>36</u>], является восстановление комплексного показателя преломления аэрозоля при совместном использовании коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции. Вместе с тем этот факт не получил теоретического обоснования. Не были получены ответы и на ряд принципиальных вопросов, таких как зависимость точности метода от погрешности измерений и необходимое количество длин волн излучения требуемых для зондирования. Ответы на эти вопросы, в принципе, могут быть получены путем численного моделирования решения обратной задачи для частиц с различными микрофизическими параметрами. При этом необходимо помнить, что моделирование проводится для специфического набора длин волн, оптических данных и погрешностей измерения, и при изменении какого-либо из этих параметров, моделирование должно производиться заново. Все это делает такой подход исключительно трудоемким, а кроме того, большое количество получаемой информации затрудняет выявление взаимосвязи между различными параметрами задачи.

проблеме Альтернативным подходом к является рассмотрение информационной наполнености данных зондирования. Подобные подходы использовались применительно к пассивным методикам дистанционного мониторинга [38, 39]. Анализ информации, содержащейся в данных лидарных измерений, был впервые проведен в работах [40, 41], при рассмотрении линейной независимости спектров обратного рассеяния $\beta(\lambda)$ и экстинкции $\alpha(\lambda)$ аэрозоля. Полученные результаты позволили оценить диапазон размеров частиц, в котором задача может быть решена, в зависимости от погрешностей входных данных. Такой подход дает представление о теоретически достижимой точности определения параметров и позволяет исследовать эффект совместного использования коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции. При этом результаты анализа справедливы для любого алгоритма решения обратной задачи.

В работах [<u>40</u>, <u>41</u>] показано также, что при 10% погрешности измерений количество независимых компонент, содержащихся в вариациях $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$ составляет три и два соответственно. Это означает что измерение

коэффициентов обратного рассеяния на трех длинах волн и экстинкции на двух, при правильном выборе λ позволяет извлечь большую часть информации, которая в принципе доступна при многоволновом зондировании. Данный результат объясняет, почему использование $3\beta+2\alpha$ и $6\beta+2\alpha$ наборов данных приводило к схожим результатам. Таким образом, для регулярного мониторинга параметров аэрозоля целесообразно использовать относительно недорогой лидар на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники.

Измерения содержания водяного пара. К числу основных парниковых газов относятся водяной пар, CO₂, O₃ и CH₄. По существующим оценкам увеличение содержания СО₂ и других парниковых газов в нынешнем столетии может привести к дополнительной мощности нагрева поверхности 5-7 Bт/м² [42], что способно вызвать увеличение её средней температуры на $1.5 - 4.5 \text{ C}^{\circ}$. Значительная часть этого ожидаемого увеличения температуры обусловлена положительной обратной связью в системе Земля-атмосфера посредством водяного пара. Таким образом, изучение переноса водяного пара в атмосфере и процесса формирования облаков, а также исследование их роли в нагреве атмосферы, стимулированного увеличением содержания СО₂, является необходимым условием повышения надежности климатологических предсказаний.

Изучение глобального бюджета пара водяного производится с использованием пассивных спутниковых измерителей, а также системы глобального позиционирования [43]. Эти методики позволяют определять интегральное по высоте содержание водяного пара, однако они не обеспечивают достаточного высотного разрешения. Поэтому особый интерес представляет возможность проводить подобные измерения с использованием лидарных систем наземного и самолетного базирования.

В настоящее время для измерения вертикального распределения водяного пара используются два типа лидаров: лидары дифференциального поглощения (ЛДП) [44, 45] и рамановские лидары [46-48]. В ЛДП используется две длины волны излучения: одна совпадает с линией поглощения исследуемой

молекулы, а вторая является опорной. В случае водяного пара, для зондирования используются линии поглощения в красной области спектра. В рамановской методике содержание водяного пара вычисляется из отношения интенсивности сигналов рамановского рассеяния водяного пара и азота, в то время как в ЛДП содержание исследуемого газа пропорционально производной по дистанции от логарифма отношения лидарных сигналов [1].

Каждый из этих методов имеет свои преимущества. ЛДП позволяет производить измерения в светлое время суток, поскольку сечение рэлеевского рассеяния почти на три порядка превосходит сечение рамановского рассеяния Однако такой требует азота. лидар специального перестраиваемого узкополосного лазера. Рамановский лидар, напротив, использует стандартные Nd:YAG либо эксимерные лазеры в УФ области спектра, (где сечение выше) рассеяния значительно обладающие лучшими мощностными характеристиками. Кроме того, для определения содержания водяного пара в ЛДП приходится вычислять производную, что требует значительно более высокого отношения сигнал/шум.

Все перечисленные выше факторы приводят к тому, что в ночное время эти лидары характеризуются сравнимой максимальной высотой зондирования ~10 км, хотя в дневное время ЛДП обеспечивает большую дальность. Рамановский лидар, однако, обладает лучшим высотным разрешением, проще в использовании, а, кроме того, он позволяет одновременно получать большое количество дополнительной информации. За 30 лет, прошедшие со времени первых исследований Мелфи [46] в этой области, рамановские лидары получили широкое распространение в исследованиях процесса переноса водяного пара в атмосфере [48]. Обзор современного состояния проблемы и описание алгоритма обработки данных приводятся в недавних публикациях [49-53]. Наиболее совершенные из существующих лидаров [54] способны в ночное время обеспечивать точность определения содержания водяного пара на уровне 10% до высот более 10 км (пространственное разрешение 150 м при времени накопления 20 минут). Несмотря на то, что эталонным средством

измерения пара на сегодняшний день считается радиозонд, одновременные измерения с использованием различных типов зондов выявили разброс в их показаниях так же на уровне 10%. Таким образом, рамановская методика измерения содержания водяного пара по точности не уступает средствам локального измерения, и эта точность потенциально может быть улучшена до уровня 5%.

Определение параметров облаков. Для понимания влияния облаков на глобальный энергетический баланс необходимо изучение их фундаментальных параметров, влияющих на процесс переноса излучения, таких как оптическая толщина, содержание жидкой воды, эффективный радиус капель и их концентрация. Интегральные по толщине облака параметры могут быть оценены из многоволновых спутниковых измерений [55], однако при обработке данных измерений предполагается, что аффективный размер капель постоянен по всей толщине облака. Такое предположение выполняется не всегда. Более свойств того, исследование радиационных облаков показало. что обусловленное ими изменение энергетического потока, как в коротковолновой, так и длинноволновой спектральной областях чувствительно к изменению вертикальной структуры содержания жидкой воды в облаке [56]. Так, скорость нагрева облака коротковолновым излучением варьируется в диапазоне 0.7-2.5 °С/час, а скорость охлаждения в диапазоне 3-8 °С/час в зависимости от вертикального распределения жидкой воды.

Изменение размеров капель в облаке также приводит к воздействию на радиационные потоки в атмосфере [57, 58]. Существующие на сегодняшний день методы оценки размеров капель основываются на радарных измерениях [59]. Радары обычно работают В миллиметровом диапазоне И малочувствительны к мелким частицам у основания облака. Размер капель в облаке, как правило, увеличивается от основания к верхней кромке, поэтому положение нижней границы облака, определенное из радарных измерений оказывается значительно выше реального положения. Проблемы, его обнаружением связанные c мелких капель, также проявляется при

зондировании тонких облаков, которые радар обнаруживает не полностью.

Точное определение нижней границы облака, имеет фундаментальное значение при изучении взаимодействия облаков с поверхностью Земли и не может быть получено из радарных измерений с достаточной точностью. В то же время, мелкие частицы эффективно рассеивают излучение УФ и видимого диапазона, соответственно лидары являются идеальным инструментом для определения границы облака. Среди многочисленных типов лидаров упругого рассеяния особо следует выделить одноволновые микроимульсные лидары [60], получившие широкое распространение вследствие их относительной простоты и безопасности. Использование подобных систем в комбинации с системами быстрого сканирования позволяет получать трехмерные изображения облаков [61]. Одноволновые лидары помимо положения границ облака, позволяют оценивать его оптическую толщину и коэффициент обратного рассеяния. Вместе с тем, возможности этих систем ограничены. Информация о содержании жидкой воды в облаке может быть получена лишь косвенным путем с использованием многочисленных предположений. Фазовый состав облака определяется только на качественном уровне, на основании измерения деполяризации рассеянного излучения [62], либо по особенностям поведения сигнала обратного рассеяния в присутствии водно-ледяной смеси [63, 64]. Интерпретация лидарных измерений в облаках затрудняется также процессом многократного рассеяния излучения, вносящим значительные погрешности в величины измеряемых параметров [65].

Одним из типов лидаров, позволяющих определять размер капель и содержание жидкой воды в облаке, является лидар с переменным полем зрения [66-68]. Принцип работы данного лидара основан на измерении зависимости интенсивности сигнала многократного рассеяния от поля зрения приемного телескопа, поскольку вид этой зависимости определяется размером частиц. Лидар с переменным полем зрения способен измерять размеры частиц при относительно небольших расстояниях до облака (~1 км), что делает его перспективным при зондировании с борта самолета [69]. Однако на больших

высотах точность определения размеров ухудшается. Кроме того, использование больших полей зрения затрудняет проведение измерений в дневное время.

Говоря о различных подходах к определению параметров облаков, следует также отметить активно развивающееся направление, основанное на совместном использовании лидаров и радаров [70]. Так, лидарное измерение оптической толщины облака, при одновременном измерении коэффициента отражения радара позволяет определять содержание льда в облаке [71]. Некоторые аспекты этой проблемы будут рассмотрены в четвертой главе настоящей диссертации.

Наиболее корректным, с физической точки зрения, методом определения содержания воды в различных фазовых состояниях является рамановский метод, поскольку рамановские спектры воды в жидкой, кристаллической и паровой фазах различаются [72-74], а интенсивность рамановского сигнала пропорциональна содержанию воды в рассматриваемой фазе. В рамановской методике используется отношение сигналов рассеяния воды и азота, таким эффекты многокрактного рассеяния образом. В значительной степени устраняются. Одновременное измерение коэффициентов обратного рассеяния облака и содержания жидкой воды позволяет рассчитывать размер капель на основе теории Ми [75]. В случае кристаллов льда, эффективный размер частиц определяется на основании эмпирических формул, содержащих коэффициент экстинкции облака [71].

В отличие от рамановского спектра водяного пара, который представляет собой относительно узкую линию с центральной частотой 3657 см⁻¹ [76], спектр жидкой воды является широким контуром с наиболее интенсивной частью в диапазоне частот 2800 см⁻¹ - 3900 см⁻¹ [77]. Поскольку рамановские спектры воды в жидкой и паровой фазах частично перекрываются, рассеяние жидкой воды может вносить значительные погрешности в измерения водяного пара. Этот эффект становится существенным при использовании широкополосных эксимерных лазеров для зондирования.

Для расчета содержания жидкой воды в облаках по данным рамановского зондирования во внимание должен быть принят ряд факторов, таких как модификация фазовой функции (угловой зависимости сечения рассеяния) вследствие сферичности капель, а также влияние структурных резонансов на мощность рассеянного излучения. Модель для описания модификации фазовой функции, основанная на рассмотрении диполей, наводимых электрическим полем падающей волны внутри диэлектрической сферы, была предложена в работ Керкера с соавторами [78-84]. Однако сложный шикле ВИЛ математических выражений и недостаточный уровень развития компьютерных технологий в 70-х годах не позволил авторам проводить моделирование для частиц с параметрами размера превосходящими x=20. Столь малые размеры недостаточны для определения асимптотических величин, соответствующих параметрам рассеяния излучения большими частицами. Фазовая функция рассеяния, в принципе, может быть рассчитана в приближении быстро вращающихся диполей [85], то есть В предположении, что время переизлучения значительно превосходит время поворота диполя. В этом приближении излучение диполей во всех направлениях происходит с равной вероятностью. Такая модель может быть правомерна при рассмотрении процессов флуоресценции с достаточным временем жизни возбужденного состояния, однако для рамановского рассеяния времена рекомбинации малы, и ориентация диполей в каждой точке определяется соответствующим вектором внутреннего поля.

Расчет поведения фазовой функции для частиц с х~500 в применении к рамановскому рассеянию микросферами был проведен в работах [<u>86</u>, <u>87</u>]. Использование теоремы сложения для сферических гармоник позволило авторам преобразовать формулы из [78, 79] к виду, когда в окончательных выражениях остается суммирование лишь по одному индексу, что значительно увеличивает скорость вычислений [<u>86</u>]. Проведенное численное моделирование в [<u>87</u>] показало, что учет модификации угловой функции рассеяния каплями и эффекта резонансов, увеличивает сечение обратного рассеяния водяными

сферами примерно в два раза по сравнению со сплошной средой.

Спектр рамановского рассеяния жидкой воды широко исследовался в лабораторных условиях [73-75, 73, 88-90] и в задачах зондирования океана [9], но попытки использовать данную методику в атмосферных измерениях. немногочисленны. Впервые результаты измерения рамановского рассеяния атмосфере были представлены В работе [91], жидкой воды В где интегрированные по дистанции спектры жидкой воды и пара регистрировались при различных погодных условиях. Рамановское рассеяние излучения XeF лазера каплями воды наблюдалось в работах [92-94] при зондировании облаков. Однако использование широкополосного эксимерного лазера не ПОЗВОЛИЛО авторам разделить рамановские сигналы пара И воды, а следовательно, с достаточной точностью оценить содержание воды в жидкой фазе.

Раздельная регистрация рамановских сигналов пара и воды при лидарном зондировании была впервые проведена в работах [95-98] при использовании третьей гармоники Nd:YAG в качестве источника излучения. Полученные в [98] результаты позволили определить вертикальное распределение содержания жидкой воды в облаке. Калибровка лидара осуществлялась по измеренным коэффициентам пропускания оптических трактов и сечениям рамановского рассеяния молекул. Вертикальные профили содержания жидкой воды, измеренные лидарным и радарным методами, имеют сходный вид, хотя абсолютные величины различаются. Расхождение связано С неопределенностью величины сечения рамановского рассеяния жидкой воды в УФ области, упрощениями, используемыми при расчете фазовой функции рассеяния капель, а также погрешностями самого радарного метода. Таким образом, для практических измерений рамановский лидар целесообразно калибровать по результатам радарных измерений. Кроме того, точность абсолютной калибровки рамановского лидара может быть существенно улучшена при использовании аэрозольной камеры с контролируемым содержанием водного аэрозоля.

Рамановский метод позволяет также определение содержания воды не только в жидкой, но и в кристаллической фазе. Рамановские спектры жидкой воды и льда в значительной степени перекрываются [76, 89], поэтому определение фазового состава жидко-кристаллической смеси, хотя в принципе и возможно, является достаточно сложной задачей. Значительно проще проводить рамановские измерения содержания льда в циррусных облаков, содержащих воду лишь в кристаллической фазе. Первое измерение такого рода было реализовано работе [99]. Калибровка рамановского В лидара осуществлялась с использованием данных миллиметрового радара [71]. Откалиброванная таким образом система позволяла измерять вертикальные распределения содержания льда в облаках на высотах до ~ 10 км. Содержание льда определенное рамановским методом находится в хорошем согласии с результатами лидарно-радарных измерений [99]. Однако рамановский метод требует меньшего количества допущений при обработке данных И потенциально может рассматриваться, как эталонный.

Лидарный мониторинг озона. Озон является одной из важнейших малых составляющих атмосферы. Озон является не только "парниковым" газом, но и играет значительную роль в химии атмосферы, как активный окислитель ее различных составляющих. Озоновый слой в стратосфере определяет поток УФ излучения, защищая живые организмы от жесткого ультрафиолета, в то же время, избыточное содержание озона в нижних слоях атмосферы может представлять опасность для окружающей среды. Вариации содержания атмосферного озона предметом являются интенсивных исследований и дискуссий на протяжении последних трех десятилетий. Различные аспекты озоновой проблемы, включающие образование озоновых дыр в стратосфере и повышение содержания озона в нижней тропосфере, подробно представлены в публикациях [100-102].

Сезонное уменьшение содержания озона над Антарктидой было обнаружено в процессе спутниковых измерений полного содержания озона (TOMS) в середине шестидесятых годов. По одной из гипотез, разрушение

озонового слоя вызывается хлорсодержащими соединениями. Эти молекулы индустриального происхождения имеют срок жизни 60-100 лет и поэтому могут попадать в стратосферу, разрушая озон в процессе каталитических реакций. В то же время существуют гипотезы, объясняющие вариации стратосферного озона, как проявление долговременных циклических колебаний.

Дискуссии о характере процессов, приводящих к столь значительным вариациям концентрации стратосферного необходимой озона, делают разработку средств его мониторинга с достаточным высотным разрешением. Значительный прогресс в этой области связан с разработкой лидаров дифференциального поглощения [103-116, <u>117</u>, <u>118</u>]. Выбор длины волны зондирующего излучения В озонных измерениях всегла является компромиссом между максимальной дальностью зондирования и разрешением (пространственным и временным). При зондировании в стратосфере (на высотах до 40 км) оптимальная длина волны лежит в диапазоне 305-310 нм, поэтому в качестве источника излучения повсеместно используется электроразрядный XeCl лазер (308 нм). Источники излучения опорной длины волны обычно создаются на базе XeF лазера (351 нм), третьей гармоники Nd:YAG лазера (355 нм) либо с использованием ВКРизлучения преобразования излучения XeCl лазера в водороде (353 нм).

Сравнение результатов лидарных измерений с результатами других методик, таких как баллонные зонды, спектрометры Добсона и Брюера, датчики установленные на ракетах, спутниковые данные SAGE II, TOMS, демонстрируют хорошее согласие между этими методами, особенно в диапазоне 20 - 40 км соответствующему максимальному содержанию озона в стратосфере [119]. Таким образом, задача лидарного мониторинга стратосферного озона в значительной степени решена, и основные усилия в настоящее время направляются на создание систем для измерения озона в тропосфере.

Если проблема стратосферного озона связана с уменьшением его

содержания, то концентрация озона в тропосфере, напротив, растёт. К настоящему времени содержание тропосферного озона в ряде регионов достигло уровня, при котором он может оказывать вредное воздействие на окружающую среду. Источником тропосферного озона является как стратосфера, так и нижние слои тропосферы, где озон образуется при окислении окиси углерода и углеводородов. Относительные вклады этих двух источников, как в глобальном, так и региональном масштабах пока еще поняты недостаточно.

Высокая временная и пространственная изменчивость содержания озона в тропосфере повышают требования к высотному и временному разрешению измерений, по сравнению с более высокими атмосферными слоями. Для обеспечения соответствующего разрешения необходимо использовать более излучение, (с большим дифференциальным сечением коротковолновое поглощения), чем то, которое используется в стратосферных исследованиях. Соответствующие длины волн могут быть получены с использованием ВКР преобразования излучения четвертой гармоники излучения YAG:Nd либо KrF дейтерии. [120-124,]. Полученные лазеров В водороде И результаты демонстрируют возможность создания лидаров с требуемыми параметрами для регулярного мониторинга озона [125,-127]. Вместе с тем продолжается разработка новых систем на базе твердотельных источников излучения, таких как перестраиваемые титан-сапфировые лазеры и параметрические генераторы света [128,129]. Возможно, в ближайшем будущем на их основе будут созданы компактные системы мониторинга озона с большим временем жизни лазерных компонент.

Проведенный выше обзор слишком краток, чтобы осветить все аспекты использования лидарных методик для измерения малых составляющих атмосферы, играющих существенную роль в климатообразовании. Более подробная информация по этому вопросу может быть найдена в обзорах и монографиях цитируемых в диссертации.

Предлагаемая диссертация отражает вклад автора в разработку лазерных

методов дистанционного мониторинга параметров аэрозоля, воды в различных агрегатных состояниях, озона и углекислого газа.

В диссертации автор защищает следующие положения:

- 1. Метод регуляризации Тихонова С модифицированным критерием минимума невязки и усреднением решений вблизи этого минимума, позволяет определять комплексный показатель преломления частиц и их совместном распределение по размерам при использовании коэффициентов обратного рассеяния И экстинкции. измеряемых многоволновым лидаром.
- 2. Набор оптических данных, состоящий из трех коэффициентов обратного рассеяния и двух коэффициентов экстинкции, измеряемый рамановским лидаром на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники, является достаточным для определения среднего размера и интегральной концентрации атмосферного аэрозоля, характеризуемого бимодальным распределением частиц по размерам.
- Рамановский лидар на основе третьей гармоники Nd:YAG лазера позволяет определять содержание воды в жидкой и кристаллической фазах в облаках на высотах до 10 км.
- 4. Коэффициент обратного рамановского рассеяния излучения водяными микросферами, рассчитанный в рамках дипольной модели с учетом морфологических резонансов, пропорционален объему микросфер при параметрах размера $x = \frac{2pr}{l} > 20$ и вдвое превосходит соответствующую величину для сплошной среды.
- 5. Вертикальное распределение концентрации углекислого газа в тропосфере может быть измерено рамановским лидаром до высоты 5 км с погрешностью менее 10% при высотном и временном разрешении измерений 250 м и 30 минут соответственно.

 Перемещение сферического ледяного ядра внутри водяной сферы вдоль направления распространения излучения приводит к многократному увеличению коэффициента обратного рассеяния по сравнению с его концентрическим расположением. Максимальное увеличение достигается при отношении радиусов ядра и сферы г_{rel}≈0.8.

Диссертация состоит из введения, шести глав и заключения. Каждая глава сопровождается кратким введением с указанием тех работ автора, на основании которых написана эта глава. В заключительном параграфе каждой главы сформулированы основные выводы по изложенному в главе материалу. В заключении приводятся выводы по диссертации в целом.

Первая глава диссертации посвящена исследованию информационной наполненности данных многоволнового лидарного зондирования. Многоволновая лидарная методика широко используется для определения размеров, концентрации аэрозоля и его комплексного показателя преломления. Вместе с тем, ряд принципиальных вопросов остается не решенным. Нет ясности в вопросе о достижимой точности определения параметров, не вполне понятна также зависимость точности определения параметров аэрозоля от количества длин волн используемых в измерениях. В диссертации предлагается подход к проведению такого рода анализа.

Суть многоволновых лидарных измерений состоит в определении спектральных зависимостей коэффициентов обратного рассеяния β(λ) и экстинкции $\alpha(\lambda)$. Если для различных параметров аэрозоля соответствующие спектральные портреты линейно независимы, то эти параметры могут быть измерений. Для определены ПО результатам определения линейной независимости набора $\beta_i(\lambda)$ рассматриваются собственные числа соответствующей матрицы ковариации. Если измерения β(λ) проводятся с погрешностью δ, то для независимости элементов набора β_i(λ) необходимо,

чтобы $l^{\beta}_{\min} > \delta^2$. Следует отметить, что $\alpha(\lambda)$ и $\beta(\lambda)$ это два независимых типа данных, поэтому при их совместном использовании условие линейной независимости формулируется, как $l^{a+b}_{\min} > \delta^2$, где l^{a+b} - собственные числа матрицы $\mathbf{C}^{\beta} + \mathbf{C}^{\alpha}$.

Тест на линейную независимость проводился наборов для $\beta_i(\lambda), \quad \alpha_i(\lambda)$ коэффициентов рассчитанных для различных значений комплексного показателя преломления m ($m_{\rm R}$, $m_{\rm I}$) и модального радиуса r_0 . Распределение частиц по размерам f(r) предполагалось логнормальным, а зависящим от показатель преломления не длины волны. Дисперсия распределения считалась постоянной. Анализ логнормального набора $\beta_{ii}=\beta(\lambda,m_i,r_{0i})$ на линейную независимость сводится к попарному сравнению элементов: первый элемент β_{11} сравнивается со всеми остальными элементами набора, затем эта процедура повторяется для второго, третьего и всех последующих элементов. Для M величин m_i и N величин r_{0i} , число таких пар составляет $\sum_{i=1}^{M \times N-1} (M \times N - i)$. Для каждой пары строится матрица ковариации размером 2×2, для которой определяется собственное число l^{β}_{min} . Если наименьшее l_{\min} для всех пар удовлетворяет условию $l^{\beta}_{\min} > \delta^2$, то набор β_{ii} является линейно независимым. Аналогичный анализ проводится и для α_{ii}. При совместном использовании этих величин вычисляется сумма матриц и проверяется выполнение условия $l^{\beta+\alpha}_{\min} > \delta^2$.

Проведенный анализ показывает, что показатель преломления может быть определен только при совместном использовании β и α . Погрешность определения размера *r* и показателя преломления *m* существенно зависит от диапазона ожидаемых вариаций *m*_I. В присутствие сильнопоглощающих аэрозолей, точность метода может ухудшаться. Коэффициенты обратного рассеяния при моделировании рассматривались в спектральном интервале 0.35 – 1.06 мкм, а коэффициенты экстинкции в интервале 0.35 – 0.53 мкм. Результаты расчетов показывают, что в случае прозрачного аэрозоля (*m*_I=0) и

10% погрешности измерений реальная часть m_R может быть определена в интервале размеров частиц 0.1 мкм< r_0 <1.2 мкм с точностью ±0.075. В середине этого интервала m_R может быть определено даже с более высокой точностью (~±0.05). Ситуация становится более сложной если m_I ≠0. Диапазон размеров, для которых коэффициент преломления может быть определен, сокращается до 0.4 мкм< r_0 <1 мкм если 0< m_I <0.02. Точность определения мнимой части показателя преломления при этом не хуже ±0.005. Средний радиус частиц может быть оценен с точностью не хуже 50% в диапазоне размеров 0.1 –1.7 мкм для 0< m_I <0.02.

При проведении анализа, предполагалось использование бесконечного количества длин волн лазерного излучения для зондирования. При работе с реальными лидарными системами необходимо знать минимальное количество λ , обеспечивающее требуемую аппроксимации спектров $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$. Это означает, что необходимо исследовать степень взаимозависимости точек на кривых $\beta(\lambda)$, $\alpha(\lambda)$. Или, говоря другими словами, определить количество независимых компонент содержащихся в вариациях спектров $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$, возникающих при изменении размера частиц и показателя преломления. Подобный анализ был проведен на основе рассмотрения собственных чисел *l_i* матрицы ковариации $\mathbf{C}^{b} = \left\| \int b_{i}(I)b_{j}(I)dI \right\|$. Число независимых компонент определяется номером собственного числа, для которого $l_i > \delta^2$. Результаты 10% погрешности измерений, вариации анализа показывают, что для коэффициентов обратного рассеяния содержат не более трех независимых компонент, а вариации экстинкции не более двух. Таким образом, измерение β на трех длинах волн и α на двух позволяет, в принципе, извлечь большую часть информации содержащейся в $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$.

Полученные результаты демонстрируют наличие трех независимых компонент в вариациях β(λ). Необходимо, однако выяснить, насколько используемые в реальных лидарных системах длины волн излучения соответствуют критерию оптимальности. Для этого исследовалось

возможность увеличения точности восстановления распределения частиц по размерам при добавлении дополнительных коэффициентов обратного рассеяния (λ = 400, 710 и 800 нм) к стандартному набору, состоящему из трех β (355, 532, 1064 нм). Эффект увеличения количества длин волн изучался с использованием анализа линейной независимости ядер соответствующих интегральных уравнений. Чем сильнее различаются ядра, тем больше информации в них содержится, и тем менее чувствительно решение обратной задачи к погрешностям измерения.

Метод основан на рассмотрении матрицы ковариации $\mathbf{D} = \left\| \int_{r_{min}}^{r_{max}} K_i(r) K_j(r) dr \right\|$ элементы которой являются проекциями ядер интегрального уравнения $\mathbf{B}_i = \int_{0}^{\infty} K_{\rm B}(\mathbf{m}, \mathbf{r}, \mathbf{n}_i) \mathbf{f}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$ друг на друга. Ядра являются независимыми, если соответствующее минимальное собственное число $l_{\min} > \delta^2$. Использование дополнительных оптических данных внутри выбранного спектрального интервала может только уменьшить l_{\min} . Таким образом, использование дополнительных длин волн оправданно, если минимальное собственное число новой матрицы ковариации $l_{\min} > \delta^2$.

Анализ показал, что простое увеличение количества длин волн не приводит к улучшению точности восстановления распределения частиц по размерам. Такое улучшение достигается только при одновременном повышении точности оптических данных до ~ 5%. Таким образом, для регулярного мониторинга аэрозоля целесообразно использование относительно недорогих рамановских лидаров на основе Nd:YAG лазера, обеспечивающих измерение β на длинах волн 355, 532, 1064 нм и α на длинах волн 355, 532 нм.

Преимущество предложенного подхода состоит в том, что он дает представление о теоретически достижимой точности определения параметров, позволяет исследовать эффект совместного использования коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции, а также позволяет исследовать влияние

различного типа ядер интегрального уравнения на устойчивость решения. При этом полученные результаты справедливы для любого алгоритма решения обратной задачи.

Вторая глава диссертации посвящена разработке алгоритма восстановления параметров аэрозоля по данным многоволнового лидарного зондирования. Для решения обратной задачи в работе используется метод регуляризации Тихонова с достаточно простой модификацией критерия минимума невязки. Гладкость решения в этом подходе определяется параметром регуляризации γ (так называемым, параметром Лагранжа). В классическом подходе параметр γ оценивается исходя из погрешности входных данных. В лидарных измерениях априорная информация такого рода обычно отсутствует. В диссертации предложена модификация критерия минимума невязки, позволяющая автоматически определять γ из результатов измерений.

Обратные применении задачи, в к лидарному зондированию, характеризуются высокими погрешностями входных величин (~10%). Восстановленное распределение аэрозолей по размеру f(r) в ряде случаев содержит значительные осцилляции, ЧТО приводит К существенным погрешностям в оценке параметров частиц. Для дополнительной стабилизации решения обратной задачи в диссертации предложена процедура усреднения решений. Общепринятый подход при использовании метода регуляризации состоит в использовании единственного решения, выбранного на основе метода минимума невязки. В приведенном алгоритме производится усреднение индивидуальных решений в окрестности минимума невязки и разработаны критерии выбора интервала, на котором производится усреднение. Показано, что при использовании процедуры усреднения значительно возрастает стабильность работы алгоритма, особенно при вычислении концентрации аэрозоля.

Для проверки работоспособности алгоритма было проведено численное моделирование восстановления параметров аэрозоля их лидарных данных. Исходное распределение аэрозоля по размерам предполагадось

логнормальным. Для выбранного расределения вычислялись коэффициенты α и β для различных длин волн. В расчитанные оптические данные случайным образом вводились погрешности δ. Поскольку результат решения обратной задачи зависит от рапределения погрешностей между оптическими данными, для достоверного определения точности метода, процедура восстановления параметров аэрозоля повторялась многократно.

При моделировании рассматривались три набора оптических данных. Набор 1 (2α+3β) состоит из двух коэффициентов экстинкции и трех коэффициентов обратного рассеяния измеряемых лидаром на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники. Набор 2 (2α+5β) содержит два дополнительных коэффициента обратного рассеяния на длинах волн 416 нм и 683 нм, которые могут эффективно генерироваться при ВКР преобразовании второй и третьей гармоник Nd:YAG лазера в водороде. Набор 3 (2α+6β) получается из набора 1 добавлением трех коэффициентов обратного рассеяния на длинах волн 400, 710 И 800 HM. В процессе моделирования восстанавливались числовая (N_t), поверхностная (S_t) и объемная (V_t) концентрация аэрозоля, средний (r_{mean}) и эффективный (r_{eff}) радиусы, а также комплексный коэффициент преломления. По результатам моделирования могут быть сделаны следующие выводы:

-Рассмотренные наборы длин волн позволяют восстанавливать параметры аэрозоля в диапазоне 0.05 мкм<rmean<1.5 мкм ;

-Использование трех, пяти и шести длин волн зондирующего излучения, приводит к сравнимым величинам погрешностей оценки параметров аэрозоля.

-Восстановление комплексного показателя преломления становится неустойчивым для малых частиц (r_{mean}<0.15) мкм. Для крупных частиц реальная часть показателя преломления восстанавливается с точностью ±0.05. Погрешность восстановления мнимой части составляет около 50%.

-Наиболее стабильным параметром при восстановлении является поверхностная концентрация аэрозоля, погрешность определения которой не

превосходит 10% для r_{mean}>0.1мкм.

Приведенные результаты получены для одномодового распределения по размерам, однако реальный атмосферный аэрозоль может содержать две моды: мелко и крупнодисперсную. Для определения соответствующих погрешностей моделирование решения обратной задачи было проведено для различных типов аэрозоля: индустриального, продуктов горения биомассы и аэрозоля морского происхождения, характеризуемых различным соотношением концентрации аэрозоля в мелко и крупнодисперсной модах. Показано, что при использовании Nd:YAG лазера (2α + 3β набор) и 10% погрешности измерений, эффективный радиус, концентрация, поверхностная и объемная плотности могут быть восстановлены для всех типов аэрозоля с точностью не хуже 40%, 70%, 40%, и 45% соответственно.

Для бимодального распределения по размерам исследовалось также влияние зависимости показателя преломления от размера частицы на точность решения обратной задачи. Для этого численное моделирование проводилось при различных показателях преломления частиц в мелко и крупнодисперсной модах. В этой ситуации погрешности оценки эффективного радиуса, концентрации, поверхностной и объемной плотности не превосходят 55%, 70%, 40%, и 50%, соответственно.

Разработанный алгоритм использовался для обработки данных лидарных измерений в международном Лейденском эксперименте. Результаты, получаемые при использовании рассмотренного алгоритма (алгоритм ЦФП), сравнивались с результатами алгоритмов Института Тропосферы (Лейпциг) и Института Математики (Потсдам), которые на сегодняшний день используются в Европейской лидарной сети. При этом результаты лидарных измерений сопоставлялись с результатами забора проб с борта самолета. Показано, что алгоритм ЦФП обеспечивал наилучшее согласие с локальными измерениями. Стабильность работы алгоритма ЦФП обусловлена использованием описанной выше процедуры усреднения.

Полученные результаты демонстрируют, что лидар на основе Nd:YAG

лазера с генератором третьей гармоники, измеряющий коэффициенты обратного рассеяния аэрозоля на длинах волн 355, 532 и 1064 нм и коэффициенты экстинкции для 355, 532 и нм, способен обеспечить оценку основных микрофизических параметров аэрозоля с точностью достаточной для использования этих данных в климатологических исследованиях.

Третья глава диссертации посвящена расчету характеристик рамановского рассеяния микросферами. Спектроскопия рамановского рассеяния излучения и флуоресценции микросфер широко используется для получения информации об их размерах и химическом составе. В лидарном зондировании особый интерес представляет использование рамановской спектроскопии для определения содержания жидкой воды в облаках. Однако количественная интерпретация измеренных спектров сталкивается co значительными трудностями. Для того чтобы соотнести измеренный спектр рассеянного излучения с физическими параметрами частицы необходимо выбрать физическую модель. Наиболее часто используется модель, основанная на рассмотрении диполей индуцированных внутри микросферы. В рамках дипольной модели, электрическое поле излучения внутри частицы индуцирует классические электрические диполи. Эти диполи переизлучают на частоте, соответствующей рамановскому сдвигу. Численное интегрирование общих формул дипольной модели оказывается чрезвычайно трудоемким. В данной главе диссертации показано, что использование теоремы сложения позволяет избежать двойного суммирования в конечных формулах, и упростить процедуру численного интегрирования. Полученные выражения позволяют вычислять угловые характеристики рассеянного излучения для различных поляризаций падающего излучения до параметров размера x~100.

Для геометрии, соответствующей обратному рассеянию, интегрирование по одному из углов было проведено аналитически, что позволило увеличить скорость вычислений в ~ 200 раз. Выведенные формулы позволили моделировать рассеяние частиц с параметрами размера х~500, что прежде не представлялось возможным.

Полученные выражения были использованы для расчета угловых характеристик рамановского рассеяния микросфер в широком диапазоне параметров размера и при различных ориентациях поляризации падающего излучения. Показано, что максимальное сечение рассеяния соответствует обратному рассеянию излучения. Вычисленные отношения сечений рассеяния для углов 90⁰ и 180⁰, хорошо согласуются с существующими экспериментальными результатами.

Зависимость сечения рамановского рассеяния частицы от размера характеризуется сильными осцилляциями, обусловленными структурными (морфологическими) резонансами. В отличие от рассеяния Ми, при рамановском рассеянии наблюдаются два типа резонансов: входные и выходные, соответствующие выполнению резонансных условий для длин волн падающего и рассеянного излучения. Проведенные расчеты показали, что указанные резонансы содержат значительную часть мощности рассеянного излучения и приводят к модификации углового распределения интенсивности излучения.

В диссертации проведено также исследование влияния резонансов на деполяризацию рассеянного излучения. Показано, что при обратном рассеянии все типы резонансов приводят к увеличению деполяризации излучения. При рассеянии под углом 90⁰ деполяризация рассеянного излучения может либо возрастать, либо уменьшаться в зависимости от типа резонансов (ТЕ или ТМ) и поляризации падающего излучения.

Одной из основных целей данного исследования было моделирование ситуации, соответствующей рамановскому рассеянию излучения водяными каплями в облаках. Для получения количественной информации о содержании жидкой воды в облаках из лидарных измерений, необходимо знать сечение рассеяния капель по отношению к сечению рассеяния сплошной среды и зависимость этого отношения от размера капель. Показано, что для частиц с параметром размера х>20 интенсивность излучения рассеянных капель сечение 180[°] пропорциональна объему частицы, при этом для водяных капель сечение
обратного рассеяния увеличивается примерно вдвое, по сравнению со сплошной средой. Таким образом, рамановское рассеяние может быть использовано в лидарных измерениях для определения содержания воды в облаках в жидкой фазе, и для оценки средних размеров капель.

В<u>четвертой главе</u> диссертации приводится описание рамановского лидара для исследования параметров облаков и представлены полученные экспериментальные результаты. В качестве источника излучения в лидаре использовался Nd:YAG лазер с генератором третьей гармоники. Рассеянное в атмосфере излучение регистрировалось приемным телескопом с апертурой 600 мм. Многоканальный анализатор спектра позволял регистрировать сигнал упругого рассеяния (355 нм) для обеих ориентаций поляризации, а также рамановские сигналы азота (386.6 нм), кислорода (375 нм), водяного пара (407.5 нм) и жидкой воды (403 нм). При необходимости канал кислорода использовался для измерения рамановского сигнала углекислого газа (372 нм).

Регистрация сигналов упругого и рамановского рассеяния позволяла независимое измерение коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции облаков. Измерение деполяризации рассеянного лазерного излучения использовалось для разделения капельных облаков и облаков, содержащих кристаллы льда. Лидар измерял содержание водяного пара до высоты 10 км в ночное время и до 5 км в дневное, что делало возможным изучение суточных вариаций пара в тропосфере. Для калибровки лидара, использовалось интегральное по высоте содержание пара, измеряемое микроволновым радиометром.

Рамановская методика может быть использована для изучения вариаций содержания воды не только в паровой фазе, но и в жидкой, поскольку соответствующие рамановские спектры различаются. Наиболее интенсивные области спектра жидкой воды находятся в частотном диапазоне 2800 см⁻¹ – 3900 см⁻¹. Центр линии водяного пара соответствует частоте 3657 см⁻¹, поэтому использование узкополосных интерференционных фильтров позволяет проводить раздельную регистрацию этих сигналов. Калибровка канала жидкой

воды проводилась по данным миллиметрового радара. Показано, что высотные профили содержания жидкой воды в облаке измеряемые рамановским лидаром и радаром согласуются.

При зондировании циррусных облаков. содержащих воду В кристаллической фазе, рамановская методика позволяет также определять содержание льда. Для этого в лидаре использовался тот же канал, что и для измерения жидкой воды. Рамановские спектры воды В жидкой И кристаллической фазах в значительной степени перекрываются, поэтому, хотя фильтр и не проектировался специально для измерения содержания льда, он соответствующего пропускал значительную часть спектра. Измерения показали, что система надежно регистрировала рамановское рассеяние льда на высотах до ~10 км.

Для калибровки использовались содержании данные 0 льда, рассчитанные из оптической толщины облака и коэффициента отражения миллиметрового радара. В процессе долговременных измерений проводилось сравнение интегрального содержания льда В облаке. определенное рамановским лидаром и радаром. Результаты находятся в хорошем согласии. При этом рамановская методика является более корректной и потенциально может рассматриваться, как эталонная.

Представленный рамановский лидар был впервые использован для измерения содержания углекислого газа в тропосфере. Одним из источников погрешностей при измерении CO_2 рамановским методом является вклад вращательных линий кислорода. Расчеты и предварительные измерения со сканируемым монохроматором показали, что для фильтра с шириной 0.3 нм эквивалентный вклад вращательных линий кислорода в сигнал CO_2 на линии $2v_2$ не превосходит 0.5 ppm CO_2 . Кроме того, этот вклад может быть скорректирован при обработке результатов.

Результаты, полученные в процессе зондирования CO₂, продемонстрировали возможность измерения содержания углекислого газа до высоты 5 км с погрешностью ~2 ppm. Достигнутая точность позволяет

использовать рамановский лидар для изучения суточных вариаций углекислого газа в пограничном слое. Рамановский метод предоставляет уникальную возможность проводить одновременное измерение вертикальных профилей CO₂ и H₂0. Таким образом, становится возможным не только исследование углеродного цикла в атмосфере, но и его взаимодействие с водным циклом.

Пятая глава диссертации посвящена использованию лидара для изучения оптических свойств облаков, содержащих водно-кристаллическую смесь. Изменение оптических свойств гидрометеоров (снежинки, град) при таянии приводит к появлению особенностей в поведении коэффициента обратного рассеяния: на высоте, соответствующей началу таяния, наблюдается резкое увеличение обратного рассеяния лазерного излучения. Подобные эффекты хорошо известны при радарном зондировании водно-кристаллических облаков (так называемые яркие области радарного сигнала). Аналог этого явления наблюдается и в оптической области спектра, при лидарном зондировании, однако последовательного математического описания данного эффекта до сих пор не проводилось, вследствие исключительной трудности рассматриваемой задачи.

Этот процесс, хотя и не вполне строго, можно описывать с привлечением модели сферических частиц: водяная сфера содержит внутри смещенное сферическое ледяное ядро. Ядро может либо плавать у поверхности водяной сферы (оно содержит большое количество воздушных пузырьков), либо находиться вблизи дна, вследствие сдувания водной оболочки воздушным потоком, что характерно для начальной стадии плавления ледяной сферы. Расчет в рамках подобной модели оказывается чрезвычайно трудоемким, и существующие компьютерные программы позволяют проводить вычисления до параметров размера х~30, что совершенно недостаточно для моделирования рассеяния частицами облаков.

В пятой главе приводится описание алгоритма расчета в рамках упрощенной модели, в которой рассматривается только обратное рассеяние излучения (поскольку только оно существенно при лидарном зондировании), а

также предполагается, что ядро перемещается только вдоль направления распространения лазерного излучения. Это предположение оправдано при вертикальном зондировании облаков. Разработанная программа позволяет моделировать обратное рассеяние сферическими частицами, содержащими смещенное ядро, до параметров размера х~1000.

Вычисления проводились для полидисперсного набора частиц со средним размером x₀=300 и различными показателями преломления сфер и ядер (m_h, m_i), что позволило выявить основные особенности процесса рассеяния такого рода частицами. В процессе моделирования рассчитывались коэффициенты обратного рассеяния и экстинкции частиц для ядер различных размеров при их различном смещении относительно центра капли. Полученные результаты демонстрируют, что ядра с m_i<m_h сильно увеличивают обратное расположении внизу сферы и их относительном размере рассеяние при (отношение радиуса ядра к радиусу сферы) $\rho \sim 0.8$. Так при $m_i = 1.35$ и $m_h = 1.348$ обратное рассеяние увеличивается в 200 раз по сравнению с рассеянием водяными каплями без включений. Для m_i>m_h обратное рассеяние возрастает при расположении ядра вверху капли и р~0.5. При m_i =1.45 и m_b=1.348 соответствующее увеличение обратного рассеяния составляет ~ 600. Резкое увеличение обратного рассеяния является спецификой неконцентрической геометрии, поскольку для концентрического расположения сфер обратное рассеяние возрастает незначительно.

Вычисления показывают также, что коэффициент экстинкции практически не зависит от расположения ядра внутри сферы, поэтому увеличение обратного рассеяния должно сопровождаться уменьшением лидарного отношения R (отношение экстинкции к обратному рассеянию). Таким образом, наблюдаемые в процессе лидарных измерений малые величины R могут быть обусловлены рассеянием на комбинированных частицах, например на водяных каплях с ледяными включениями. Кроме того, для таких частиц лидарные отношения должны отличаться при проведении измерений с земли и с борта самолета (сверху вниз).

Для интерпретации наблюдаемых в лидарных измерениях эффектов темных и ярких областей, было проведено моделирование ситуации, соответствующей плавлению ледяной сферы. Показано, что при расположении ледяного ядра с ρ =0.8 у дна сферы коэффициент обратного рассеяния возрастает в 50 раз. При перемещении ядра, в процессе таяния, к верху сферы, рассеяние резко уменьшается.

Рассмотренная модель не может претендовать на строгое описание процесса рассеяния, поскольку форма водяных капель и ледяных включений отличается от сферической. Тем не менее, результаты, полученные в рамках рассмотренной модели неконцентрических сфер, качественно согласуются с особенностями поведения коэффициента обратного рассеяния, наблюдаемыми при зондировании облаков, содержащих тающие гидрометеоры.

Шестая глава диссертации посвящена исследованию вариаций содержания озона в стратосфере и тропосфере с использованием лидаров дифференциального поглощения на основе эксимерных лазеров. Эксимерные лазеры являются одними из наиболее перспективных источников излучения в УФ области спектра, однако излучение стандартных эксимерных лазеров обладает низкой монохроматичностью и высокой расходимостью, почти на два соответствующий порядка превышающей дифракционный предел. Для использования в лидарных системах, пространственные и спектральные параметры лазеров должны быть улучшены.

В результате проведенных исследований были разработаны дисперсионные резонаторы, позволяющие уменьшать ширину линии излучения XeCl и KrF лазеров до 0.02 см⁻¹. Использование этих узкополосных лазеров в системах генератор-усилитель позволило получать УФ излучение с высокой спектральной яркостью, что важно при дневных измерениях озона в стратосфере. Увеличение пространственной яркости излучения достигалось за счет использования неустойчивых резонаторов, а так же при многопроходном усилении с последующим обращением волнового фронта (ОВФ). ОВФ реализовывалось при вынужденном рассеянии излучения XeCl и KrF лазеров в

жидкостях и газах. Проведенные эксперименты продемонстрировали, что при рассеянии УФ излучения в жидкостях вынужденное рассеяние Мандельштамма-Бриллюена может подавляться вынужденным температурным рассеянием.

В ряде методик лазерного дистанционного зондирования, основанных на нелинейных оптических явлениях, таких как отический пробой в атмосфере и многофотонное поглощение излучения в аэрозолях, необходимо использовать лазерные импульса УΦ диапазона с высокой пиковой мошностью. Проведенные исследования продемонстрировали, что такие импульсы могут быть получены при ВРМБ компрессии импульсов излучения KrF лазера в газах. Достигнутая энергетическая эффективность сжатия составила ~60% при длительности импульса излучения на выходе компрессора ~ 1 нс. Для генерации субнаносекундных лазерных импульсов была предложена оригинальная схема, в которой оптический пробой на поверхности жидкости используется в качестве одного из зеркал резонатора эксимерного лазера. При использовании одного разрядного модуля, данная схема позволяет получать импульсы длительностью ~25 пс.

Управление спектральными характеристиками лазеров включало, с одной стороны, разработку методов сужения спектра излучения лазеров, с другой стороны, спектр излучения лазеров расширялся путем генерации новых спектральных компонент в процессе ВКР в сжатых газах, что позволяло выбирать оптимальные пары длин волн для зондирования на различных высотах. В работе изучались пространственные характеристики И энергетическая эффективность генерации стоксовых компонент излучения XeCl и KrF лазеров при вынужденном комбинационном рассеянии в водороде и дейтерии. Исследования проводились для различных давлений газов, И параметров фокусирующей оптики. Варьирование этих факторов позволяло эффективное преобразование В реализовывать стоксову компоненту, обеспечивающую оптимальный режим измерения, для выбранного высотного интервала. Полученные результаты были использованы при разработке

лидаров дифференциального поглощения для измерения озона.

В лидарах дифференциального поглощения используется пара длин волн, одна из которых поглощается исследуемой молекулой, а вторая является опорной. Содержание озона в стратосфере и тропосфере различается почти на порядок. Кроме того, распределение озона в стратосфере достаточно стабильно, в то время как тропосферный озон характеризуется высокой временной изменчивостью. Поэтому для обеспечения оптимального режима зондирования, для различных высотных диапазонов должны использоваться различные пары длин волн. В работе проведен анализ статических погрешностей измерения, а также погрешностей обусловленных влиянием аэрозоля. На основании этого анализа определены оптимальные спектральные диапазоны для различных высот зондирования.

В период с 1992 – 2000 в ЦФП ИОФ РАН был разработан ряд лидарных систем для исследования атмосферного озона. Источниками излучения в этих лидарах служили XeCl и KrF лазеры с водородными и дейтериевыми ВКРреобразователями. Измерения в высотном диапазоне 10-30 км проводились с использованием пары 308-353 нм (излучение XeCl лазера и его первой стоксовой компоненты в водороде). Для измерений в высотных диапазонах 4-12 км и 0.5 – 4 км XeCl лазер использовался совместно со второй стоксовой компонентой излучения KrF лазера в дейтерии (308-292 нм) и первой компонентой в водороде (277-308 нм). При обработке результатов зондирования проводилась коррекция погрешностей обусловленных дифференциальным рассеянием и поглощением аэрозоля.

Созданные лидарные системы позволяли проводить измерения от пограничного слоя до высот, соответсвующих максимальному содержанию стратосферного озона. Особый интерес, представляет изучение долговременных вариаций озона в тропосфере. Содержание озона в тропосфере растет вследствие индустриальных выбросов и процессов фотохимической генерации, приближаясь в ряде районов к уровню, представляющему опасность для здоровья человека. Для проведения измерений вариаций озона в высотном

диапазоне 0.5 – 12 км, в ЦФП ИОФ РАН была разработана автоматизированная лидарная система. Система позволяла проводить измерения в течение нескольких суток без участия оператора.

Характер наблюдаемых суточных вариаций озона зависел от сезона и от загрязненности атмосферы. Максимальное содержание озона в тропосфере наблюдалось в летний период, при этом его распределение в нижней тропосфере характеризовалось высокой изменчивостью, вследствие фотохимической В генерации конвекционных процессов. И ходе долговременных измерений неоднократно наблюдались эпизоды образования областей с аномально высокой концентрацией озона, а также областей в которых происходило его разрушение. Таким образом, созданная система может использоваться для изучения фотохимических процессов в атмосфере и для регулярного мониторинга содержания озона.

<u>В заключении</u> сформулированы основные результаты и выводы, полученные в диссертации.

Вошедшие в диссертацию результаты исследований докладывались на VIII конференции по Газовым и Химическим Лазерам (GCL, Мадрид 1990г.), на IV конгрессе по Оптической Инженерии (ЕСО4, Гаага 1991), на XX, XXI, XXII конференциях по Дистанционному Лазерному Зондированию (ILRC Виши 2000, Квебек 2002, Матера 2004), на 6-ом Международном Симпозиуме по Зондированию Тропосферы (ISTP Лейпциг 2003), 1-ой конференции по Применению рамановских Лидаров (НАСА, Вашингтон 2004) и опубликованы в работах [<u>33-36, 40, 41, 64, 86, 87, 95-99, 117, 118, 125, 162, 195-197, 247-254, 262, 271, 279, 280, 283, 289, 318, 323-325</u>]. При цитировании в тексте диссертации эти работы отмечены подчеркиванием.

Глава І. АНАЛИЗ ИНФОРМАЦИИ, СОДЕРЖАЩЕЙСЯ В СПЕКТРАХ ОБРАТНОГО РАССЕЯНИЯ И ЭКСТИНКЦИИ АЭРОЗОЛЯ

Рассмотрение факторов, определяющих радиационный бюджет планеты, проведенное во введении, позволяет заключить, что одним из наименее изученных механизмов воздействия антропогенных выбросов на климат является, так называемое, косвенное воздействие аэрозоля, то есть изменение радиационного бюджета посредством модификации параметров облаков. Для корректного учета этого эффекта в климатологических моделях необходима надежная информация о вертикальном распределении атмосферного аэрозоля и его микрофизических параметрах. Среди инструментов сдобных обеспечить такой мониторинг, особый интерес представляют многоволновые лидары, поскольку соответствующие измерения бесконтактными, являются дистанционными и характеризуются высоким пространственным разрешением. Для анализа информации, которая принципиально может содержаться в данных многоволновых лидаров и для оценки потенциала такого рода систем в атмосферных исследованиях, в диссертации предложен подход, основанный на анализе вариаций спектральных зависимостей коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля. Основные вопросы, рассмотренные в данной главе исследования можно сформулировать следующим образом:

- Возможно ли восстановление распределение аэрозоля по размерам на основе данных многоволнового зондирования в отсутствие предварительной информации о комплексном показателе преломления?

- В каком диапазоне размеров возможна оценка величины показателя преломления из данных лидарного зондирования?

- Каково минимальное количество длин волн лазерного излучения необходимое для зондирования?

- Какова ожидаемая точность оценки параметров аэрозоля?

Решению этих вопросов посвящена первая глава диссертации, написанная на основании работ автора [<u>33-36, 40, 41</u>].

§ 1.1. Методология анализа

В многоволновом зондировании экспериментально лидарном измеряемыми величинами являются коэффициенты обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля измеренные на нескольких длинах волн. Параметры аэрозоля определяются в результате решения соответствующей обратной Наиболее часто при этом используются модификации метода задачи. регуляризации Тихонова [27, 28, 130]. Уже в первых исследованиях в этой области [131] было показано, что совместное использование коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции в принципе позволяет восстанавливать распределение аэрозоля по размерам с достаточно высокой точностью [30, 31, <u>33, 34, 132, 133].</u> Более того, этот подход позволяет также оценивать комплексный показатель преломления. Данный результат особенно важен, поскольку оказывается возможным получение вертикального профиля альбедо однократного рассеяния (отношение мощности рассеянного излучения к суммарной мощности рассеянного и поглощенного) [134].

Результаты первых успешных измерений подобного рода были получены с использованием шестиволнового рамановского лидара [29]. Однако, в процессе этих измерений стало ясно, что затраты на эксплуатацию системы слишком велики, и глобальная сеть подобных инструментов вряд ли может быть создана. В то же время, Nd:YAG лазер с генератором третьей гармоники, являющийся одним из ключевых элементов системы, широко используется во многих лабораториях. Этот лазер излучает три длины волны 355, 532, и 1064 нм, которые позволяют измерять три коэффициента обратного рассеяния и два коэффициента экстинкции в видимой и УФ области спектра [135].

Несмотря на впечатляющие результаты, полученные с использованием рамановских лидаров и разработанных алгоритмов решения обратных задач, многие вопросы остаются открытыми. Это относится, в первую очередь, к вопросу о точности определения аэрозольных параметров. Соответствующие погрешности оцениваются, как правило, в процессе численного моделирования с использованием модельных распределений аэрозоля по размерам.

Упрощения, используемые в этих моделях, а также большое время вычислений не позволяют получить окончательный ответ о точности, которую, в принципе, может обеспечить многоволновый лидар.

Учитывая относительную простоту 3-х волнового лидара на основе Nd:YAG лазера были предприняты многочисленные попытки ответить на вопрос, способна ли такая упрощенная система, измеряющая 3 коэффициента обратного рассеяния и 2 коэффициента экстинкции (3β+2α), обеспечить точность сопоставимую с шестиволновым лидаром (6β+2α). Результаты, полученные в процессе обработки экспериментальных данных и в процессе численного моделирования [33,135], говорят в пользу такого предположения. Однако, этот факт требует более серьезного обоснования. Кроме того, не ясно, приводит ли число, измеряемых оптических данных, к увеличению точности оценки параметров аэрозоля. Одним из способов, получения ответа на сформулированные выше вопросы, является численное моделирование с использованием различных типов распределений частиц по размерам и различных значений комплексного показателя преломления. При ЭТОМ необходимо что моделирование помнить, такое проводится ДЛЯ специфического набора длин волн излучения и типа оптических данных. При изменении какого-либо этих параметров, моделирование должно ИЗ производиться заново.

Альтернативным подходом к этой проблеме является рассмотрение информации, содержащейся в спектрах обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля. Такой подход может быть основан на рассмотрении собственных чисел соответствующих матриц ковариации [28, 38]. Собственные числа ранее использовались рядом авторов для анализа лидарных данных [136,137], однако, в этих работах собственные числа использовались, главным образом, для решения обратной задачи и не рассматривались, как способ определения границы применимости лидарного метода в целом.

Преимущество предлагаемого подхода состоит в том, что он дает представление о теоретически достижимой точности определения параметров,

позволяет исследовать эффект совместного использования коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции, а также позволяет исследовать влияние различного типа ядер интегрального уравнения на устойчивость решения. При этом, полученные результаты будут справедливы для любого алгоритма решения обратной задачи.

При анализе нами используется ряд упрощений. Распределение по размерам предполагается логнормальным, а показатель преломления, не зависящим от длины волны. Эти ограничения не являются принципиальными и могут быть рассмотрены в рамках предлагаемого подхода.

Коэффициенты обратного рассеяния β и экстинкции α , полученные из лидарных измерений, связаны с распределением по размерам *f*(*r*)посредством интегральных уравнений:

$$b(l) = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} f(r)K_b(r,m,l) dr \quad H \quad a(l) = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} f(r)K_a(r,m,l) dr$$

Здесь r – радиус частиц, m - показатель преломления и λ - длина волны. Ядра уравнения $K_{b,a}$ для сферических частиц вычисляются на основе теории Ми [75]. Принцип многоволнового зондирования состоит в измерении спектральных зависимостей $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$. Изменение параметров частиц, таких как распределение по размерам или m, приводит к изменениям спектров $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$. Если эти спектры уникальны, то есть функции $\beta_i(\lambda)$ или $\alpha_i(\lambda)$, соответствующие различным параметрам аэрозоля, линейно независимы, идентификация параметров аэрозоля становится возможной.

Спектры коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля для различных размеров и коэффициентов преломления представлены на рис.1.1, 1.2. Вычисления проводились для логнормального распределения по размерам. Модальный радиус, варьировался в интервале $0.1 \le r_0 \le 4$ мкм, ширина (дисперсия) $(\ln s = 0.4),$ распределения предполагалась постоянной спектральный 0.3 - 2рассматриваемый диапазон составлял МКМ. Соответствующий эффективный радиус для такого распределения изменяется в

интервале (0.15< *r*_{eff}<6 мкм). Для удобства сравнения, на рассматриваемом интервале коэффициенты нормализованы так, что:

$$\int b(l) dl = 1 \quad \text{M} \quad \int a(l) dl = 1.$$

Из рисунков видно, что при фиксированном *m* функции $\beta_i(\lambda)$ соответствующие $r_0=0.1$, 1 и 2 мкм линейно независимы. Однако, для $r_0=2$ и 4 мкм, $\beta_i(\lambda)$ в интервале 0.35-1.06 мкм (интервал который обычно доступен для лидарных измерений) становятся близкими, и возможность их распознавания зависит от точности измерений. Вариации спектров $\beta_i(\lambda)$ для различных значений показателя преломления при $r_0=1$ мкм представлены на рис.1.2. Функции $\beta_i(\lambda)$ соответствующие m = 1.3, 1.45 и 1.6 линейно независимы, что, в принципе, должно позволить определение коэффициента преломления.

При фиксированном *т* коэффициенты экстинкции для малых частиц варьируются гораздо сильнее, чем коэффициенты обратного рассеяния, поэтому α лучше подходят для измерения мелкодисперсного аэрозоля. Однако, коэффициенты экстинкции не очень чувствительны к вариациям реальной части коэффициента преломления, как это видно из рис 1.26. Еще более сложным оказывается восстановление мнимой части. На рис.1.3 представлены спектры $\beta_i(\lambda)$ и $\alpha_i(\lambda)$ для фиксированного значения $m_{\rm R}=1.45$ и $m_{\rm I}=0, 0.01, 0.02.$ Вычисления проводились для логнормального распределения по размерам с $r_0=1$ мкм и ln*s*=0.4. Спектры обратного рассеяния для $m_1 = 0$ и $m_1 = 0.01$ существенно отличаются. Таким образом, для частиц со слабым поглощением $m_{\rm I}$, в принципе, может быть определен из данных лидарного зондирования. В то же время, для $m_{\rm I}$ =0.01 и $m_{\rm I}$ =0.02 $\beta_i(\lambda)$ оказываются достаточно близкими, это означает, что точность решения обратной задачи при больших *m*_I, может ухудшаться. Коэффициенты экстинкции не чувствительны к вариациям *m*_I, поэтому использование одних лишь α не позволяет получать информацию о показателе преломления.

Спектральные зависимости представленные на рис.1.1-1.3 являются лишь иллюстрациями, позволяющими получить представление об области

применимости многоволновой методики, однако, для количественного анализа необходим критерий линейной независимости спектров, который можно было бы соотнести с погрешностью измерений

Предположим, что нам известны спектральные "портреты" коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции $\alpha(\lambda)$, $\beta(\lambda)$ для различных распределений по размерам $f_i(\mathbf{r})$. Индексы і соответствуют логнормальным распределениям с различными значениями средних радиусов r_i .

$$b_{i}(l) = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} f_{i}(r)K_{b}(r,l)dr \qquad a_{i}(l) = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} f_{i}(r)K_{a}(r,l)dr \qquad (1.1)$$

Восстановление распределения аэрозоля по размерам возможно только в том случае, если $\beta_i(\lambda)$ и $\alpha_i(\lambda)$ соответствующие различным значениям $f_i(r)$ будут различаться. Это означает, соответствующие функции должны быть линейно независимы. Отметим, что $\alpha(\lambda)$ и $\beta(\lambda)$ это два различных независимых параметра, поэтому условие независимости должно выполняться хотя бы для одного из них. Отметим также, что в ряде случаев, комбинирование $\alpha(\lambda)$ и $\beta(\lambda)$ позволяет получать информацию даже тогда, когда каждый из этих наборов не является независимым.

Таким образом, для исследования линейной независимости мы должны рассматривать линейную комбинацию

$$\sum_{i} a_i b_i = d_b \tag{1.2}$$

Если при некотором наборе коэффициентов $a_i \ \delta_{\beta}=0$, то соответствующие спектральные зависимости $\beta_i(\lambda)$ будут линейно зависимы. Аналогичное рассмотрение может быть применено и для $\alpha_i(\lambda)$.

Таким образом, задача сводится к определению набора a_i, обеспечивающем минимизацию (1.2). Мерой малости этой суммы может служить квадратичная форма

$$q = \int \left[\sum_{i} a_{i} b_{i}(I)\right]^{2} dI$$
(1.3)

При этом нас не интересует тривиальная ситуация, когда все а_i ≡0. Поэтому мы

накладываем дополнительное условие на минимизацию суммы (1.2):

$$\sum_{i} a_i^2 = 1 \tag{1.4}$$

Выбор единицы в (1.4) определяется исключительно удобством нормировки. Запишем а_i и β_i в векторной форме

$$\begin{bmatrix} a_{1} \\ \dots \\ a_{n} \end{bmatrix} = \mathbf{a} \qquad \begin{bmatrix} b_{1} \\ \dots \\ b_{n} \end{bmatrix} = \mathbf{B}$$

$$\text{Теперь } \sum_{i} a_{i}^{2} = \mathbf{a}^{*} \mathbf{a} = 1 \qquad \text{M} \quad \sum_{i} a_{i} b_{i} = \mathbf{a}^{*} \mathbf{B}$$

$$\begin{bmatrix} \sum_{i} a_{i} b_{i} \end{bmatrix}^{2} = \mathbf{a}^{*} \mathbf{B} \mathbf{B}^{*} \mathbf{a} \qquad (1.5)$$

$$q = \int \left[\sum_{i} a_{i} b_{i} \right]^{2} dl = \mathbf{a}^{*} \mathbf{C}^{b} \mathbf{a}, \qquad (1.6)$$

где \mathbf{C}^{β} это матрица с элементами $c_{i,j} = \left\| \int b_i(l) b_j(l) dl \right\|$

Для анализа удобно произвести разложение **a** по собственным векторам **u**: **a** = **Uo**, где **U** это матрица, столбцами которой являются собственные векторы матрицы ковариации C^{β} , a ξ - коэффициенты разложения.

$$q = \mathbf{a} \ \mathbf{C}^{*} \mathbf{a} = \mathbf{o} \ \mathbf{U} \ \mathbf{C}^{*} \mathbf{U} \mathbf{o}, \tag{1.7}$$

но $\mathbf{U}^* \mathbf{C}^b \mathbf{U} = \mathbf{J}$, где L - матрица, состоящая из собственных значений \mathbf{l}_i . Теперь $q = \mathbf{o}^* \mathbf{J} \mathbf{o} = \sum_i l^b_{\ i} x_i^2$ (1.8)

Очевидно, что минимум квадратичной формы достигается, когда коэффициент при минимальном собственном значении l^{β}_{min} равен 1. А само значение q_{min} = l^{β}_{min} . Набор коэффициентов **a**, при котором сумма (1.2) минимизируется, определяется собственным вектором u_{min} матрицы ковариации C^{β} соответствующим минимальному собственному значению. Если измерения $\beta(\lambda)$ проводятся с погрешностью δ , то для независимости $\beta_i(\lambda)$ необходимо, чтобы минимум квадратичной формы q

$$l^{\beta}_{\min} > \delta^2 \tag{1.9}$$

Отдельного рассмотрения заслуживает вопрос о нормализации элементов матрицы C^{β} . Каждое из собственных значений этой матрицы определяет относительный вклад соответствующей характеристической функции в вариации "спектрального портрета" $\beta(\lambda)$. Поэтому для использования критерия (1.9) необходимо выполнение условия

$$\sum l_i^b = 1 \tag{1.10}$$

Таким образом, элементы матрицы C^{β} необходимо разделить на величину $\sum l_i^b$, при этом на соответствующую величину разделится и каждое из собственных значений. Отметим, что после такой нормализации элементы матрицы становятся безразмерными и могут использоваться совместно с элементами матрицы ковариации для коэффициентов экстинкции C^{α} , элементы которой определяются как

$$c_{i,j} = \left\| \int a_i(l) a_j(l) dl \right\|$$
(1.11)

Очевидно, что все приведенные выше рассуждения справедливы и для коэффициентов экстинкции α , при рассмотрении линейной комбинации $\sum_{i} a_i a_i = d_a$ (1.12)

Однако, для нас особенно важен вопрос о совместном использовании коэффициентов $\alpha(\lambda)$ и $\beta(\lambda)$. Отметим, что даже тогда, когда каждый из наборов $\alpha_i(\lambda)$, $\beta_i(\lambda)$ оказывается линейно зависим, задача может быть решена, если (1.2), (1.12) не минимизируются одновременно, то есть при одних и тех же значениях коэффициентов a_i .

Это может быть проиллюстрировано рис.1.4, на котором представлены спектральные зависимости коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции, вычисленные для логнормального распределения с $r_0=0.1$ мкм и $\ln\sigma=0.4$. Спектры обратного рассеяния для $m_{\rm R}=1.3$ и 1.5 похожи, то есть соответствующие функции являются линейно зависимыми. Зависимыми

являются также и спектры коэффициентов экстинкции. Это означает, что, выбрав некий масштабный коэффициент *а* можно совместить β_i (λ) соответствующие m_R =1.3 и 1.5. Но обратное рассеяние и экстинкция – это два независимых типа данных, поэтому параметры аэрозоля невозможно распознать только в том случае, если спектры $\alpha_i(\lambda)$ совпадают при том же значении коэффициента *a*. То есть частицы должны иметь одно и то же отношение α/β (так называемое лидарное отношение). Однако, как показано на рис.1.5, эти отношения различаются, поэтому оценка параметров аэрозоля возможна, если $\alpha_i(\lambda)$ и $\beta_i(\lambda)$ используются одновременно.

Для нахождения минимума квадратичной формы при совместном использовании α(λ) и β(λ) определим условие минимизации суммы

$$q = \int \left[\sum_{i} a_i b_i(I)\right]^2 dI + \int \left[\sum_{i} a_i a_i(I)\right]^2 dI$$
(1.13)

Аналогично (1.6) записываем

$$q = \mathbf{a}^* \mathbf{C}^b \mathbf{a} + \mathbf{a}^* \mathbf{C}^a \mathbf{a} = \mathbf{a}^* (\mathbf{C}^b + \mathbf{C}^a) \mathbf{a}$$
(1.14)

и по аналогии с (1.8) приходим к заключению, что минимум квадратичной формы соответствует минимальному собственному значению l_{\min}^{a+b} матрицы $\mathbf{C}^{\beta} + \mathbf{C}^{\alpha}$.



Рис.1.1. Спектральные зависимости коэффициентов обратного рассеяния (а) и экстинкции (б) вычисленные для логнормального распределения частиц по размерам с $r_0=0.1$ (сплошная линия), 1 (штрихи), 2 (пунктир) и 4 мкм (штрих-пунктир); $ln\sigma=0.4$, m=1.33-i0. Все α и β нормализованы так, что $\int b(l) dl = \int a(l) dl = 1$ на рассматриваемом интервале.



Рис.1.2. Спектральные зависимости коэффициентов обратного рассеяния (а) и экстинкции (б) вычисленные для показателей преломления: m=1.33-i0(сплошная линия), 1.45-i0 (штрихи), 1.6-i0 (штрих-пунктир) и параметров логнормального распределения частиц по размерам $r_0=1$ мкм и $\ln\sigma=0.4$.



Рис.1.3. Спектральные зависимости коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции, вычисленные для $m_{\rm I}$ =0 (сплошная линия), 0.01 (штрихи), 0.02 (штрих-пунктир); $m_{\rm R}$ =1.45, r_0 = 1 мкм, $\ln\sigma$ =0.4.



Рис.1.4. Спектральные зависимости коэффициентов обратного рассеяния (штрих-пунктир) и экстинкции (сплошная линия) вычисленные при m=1.3-i0 и m=1.5-i0; $r_0=1$ мкм, $\ln\sigma=0.4$.



Рис.1.5. Лидарные отношения для m=1.3-i0 (сплошные символы) и m=1.5-i0 (полые символы) рассчитанные при $r_0=0.1$ мкм (круги) and 1 мкм (квадраты).

§ 1.2 Информация, содержащаяся в данных многоволнового лидарного зондирования

Тест на линейную независимость проводился для $\beta_i(\lambda)$, соответствующих набору показателей преломления m ($m_{\rm R}$, $m_{\rm I}$) и модальных радиусов $r_{\rm 0}$. Распределение частиц по размерам предполагалось логнормальным и показатель преломления, не зависящим от длины волны. Если рассматривается смесь частиц с различными показателями преломления, то анализ набора $\beta_{ij} = \beta(\lambda, m_i, r_{0j})$ на линейную независимость сводится к попарному сравнению элементов: первый элемент β_{11} сравнивается со всеми остальными элементами набора, затем эта процедура повторяется для второго, третьего и всех последующих элементов. Для М величин *m_i* и N величин *r_{0i}*, число таких пар будет $\sum_{i=1}^{M \times N-1} (M \times N - i)$. Дисперсия логнормального распределения на этом этапе предполагается постоянной. Для каждой пары строится матрица ковариации размером 2×2, для которой определяется собственное число l^{β}_{min} . Если наименьшее l_{\min} для всех пар удовлетворяет условию $l^{\beta}_{\min} > \delta^2$, то набор β_{ii} является линейно независимым. Аналогичный анализ проводится и для α_{ii}. При совместном использовании этих величин вычисляется сумма матриц и проверяется выполнение условия $l^{\beta+\alpha}_{\min} > \delta^2$.

Для сопоставления собственных чисел с погрешностями измерений рассматриваемые элементы должны быть соответствующим образом нормализованы. При сравнении элемента β_{ij}(λ) с остальными элементами они

делятся на величину $\sqrt{\int_{l_{min}}^{l_{max}} b_{ij}^2(l) dl}$, поэтому первый элемент матрицы ковариации всегда равен единице $c_{1,1}^b = 1$. Аналогичная процедура проводится и для экстинкции. При совместном использовании $\beta_i(\lambda)$ и $\alpha_i(\lambda)$ минимальное собственное значение $l^{\beta+\alpha}$ делится на 2.

1.2.1 Определение реальной и мнимой части показателя преломления при известном среднем радиусе частиц

Перед рассмотрением общего случая, когда m_R, m_I и средний радиус частиц варьируются одновременно, необходимо рассмотреть несколько специальных случаев для того, чтобы получить представление о роли каждого из этих параметров. Это, также, поможет определить границы, за пределами восстановление параметров частиц оказывается невозможным. которых Прежде всего, будет рассмотрена ситуация, когда средний размер частиц фиксирован (известен), а варьируется либо $m_{\rm R}$, либо $m_{\rm I}$. Результаты соответствующих вычислений представлены на рис.1.6, где минимальные собственные числа отображены для выбранных значений модального радиуса r₀. Вычисления проводились для логнормального распределения с ln σ =0.4. Спектры $\beta_i(\lambda)$ и $\alpha_i(\lambda)$ рассматривались на интервале 0.35 – 1.06 мкм, штрихпунктирная линия на этом рисунке показывает также результаты для $\alpha_i(\lambda)$, вычисленных на ограниченном интервале 0.35–0.53 мкм. Горизонтальная пунктирная линия соответствует погрешности измерений 10%. Из представленных результатов следует, что использование одного лишь обратного рассеяния (l^{β}) или экстинкции (l^{α}) не позволяет определять показатель преломления. Однако, одновременное их использование ($l^{\beta+\alpha}$) позволяет восстанавливать $m_{\rm R}$ в диапазоне размеров $0.15 < r_0 < 1.5$ мкм.

На практике экстинкция может быть измерена в диапазоне 0.35–0.53 мкм, что оказывается существенным ограничением, если только данные об экстинкции используются при решении обратной задачи. Однако, если экстинкция и обратное рассеяние используются одновременно, то результат практически не зависит от интервала, на котором рассматривается $\alpha(\lambda)$. Этот результат иллюстрируется рис.1.5: даже для больших радиусов (r_0 =1 мкм) лидарные отношения для выбранных показателей преломления существенно различаются в коротковолновом диапазоне. Сравнивая рис.1.6а и 1.6б можно заключить, что восстановление реальной части коэффициента преломления

будет сопряжено с трудностями для больших частиц ($r_0 > 1.5$ мкм). В случае же мнимой части, соответствующие проблемы будут возникать для частиц малых размеров ($r_0 < 0.2$ мкм).

Для иллюстрации влияния мнимой части $m_{\rm L}$ на рис.1.7 показаны минимальные собственные числа, рассчитанные для тех же параметров, что и на рис.6а, но $m_{\rm I}$ =0, 0.01, 0.02. Реальная часть коэффициентов преломления варьировалась в диапазоне 1.3 - 1.6 с шагом 0.1. Вычисления проводились для комбинации $\alpha_i(\lambda)$ и $\beta_i(\lambda)$, поскольку из результатов представленных на рис.1.6 следует, что их раздельное использование не позволяет решать обратную задачу при 10% погрешностях измерения. Минимальное собственное значение для больших $m_{\rm I}$ увеличивается, таким образом, при известном среднем радиусе r_0 и $m_{\rm I}$ поглощение излучения частицами не приводит к ухудшению точности восстановления реальной части. На рисунке представлены также результаты, полученные при $\Delta m_{\rm R}$ =0.05 и $m_{\rm I}$ =0. В этом случае собственные значения резко уменьшаются. Таким образом, даже при известных r_0 и $m_{\rm I}$, ожидаемая точность оценки реальной части не лучше чем ±0.05 и вариации среднего радиуса могут только ухудшить эту точность.

Рассмотрим влияние величины интервала вариации m_1 на результат оценки m_1 при выбранных m_R и r_0 . Рис.1.8 показывает минимальные собственные числа для различных фиксированных величин r_0 , когда мнимая часть m_1 варьируется в интервалах: 0 - 0.01, 0 - 0.02, 0 - 0.03. Вычисления проводились для двух значений шага вариации $\Delta m_1 = 0.01$ и 0.005 и $m_R = 1.5$. Как видно из рис.1.3 спектр коэффициента обратного рассеяния сильно изменяется при варьировании m_1 от 0 до 0.01, однако дальнейшее увеличение мнимой части не приводит к столь сильному изменению $\beta(\lambda)$. Такое поведение $\beta(\lambda)$ согласуется с результатами, представленными на рис.1.8: собственные числа уменьшаются с увеличением диапазона вариаций m_1 . Величина собственных чисел зависит от шага Δm_1 и характеризует точность определения m_1 . Так для 10% погрешности измерений ожидаемая точность составляет ± 0.005 .

Очевидно, что введение вариаций r_0 и m_R может только ухудшить эту точность.

Следующим шагом является введение одновременных вариаций $m_{\rm R}$ и $m_{\rm I}$ при выбранном значении r₀. Эта ситуация представлена на рис.1.9, где минимальные собственные числа вычисляются для комбинации $\alpha_i(\lambda)$ и $\beta_i(\lambda)$. При варьировании $m_{\rm I}$ в диапазоне 0 – 0.01 собственные числа определяются в основном вариациями m_1 , для $r_0 < 0.5$ мкм, и вариациями m_R , для $r_0 > 1$ мкм. Таким образом, восстановление *m* возможно в интервале 0.2 мкм $< r_0 < 1.4$ мкм. Если диапазон изменений *m*_I составляет 0 - 0.03, собственные числа уменьшаются по сравнению с величинами, полученными при фиксированном $m_{\rm R}$ или $m_{\rm I}$, и решение обратной задачи становится проблематичным. Следовательно, в предварительной информации о отсутствие величине мнимой части. определение коэффициента преломления возможно лишь для частиц с не очень большим поглощением ($m_{\rm I} < 0.02$).

1.2.2 Определение среднего радиуса частиц при известном показателе преломления

В данном разделе будет рассмотрена возможность оценки среднего радиуса частиц в предположении, что $m_{\rm R}$ и $m_{\rm I}$ известны. Рис.1.10 иллюстрирует восстановление модального радиуса распределения при фиксированном m. Собственные числа определяются на интервале [$r_{0\min}$, $r_{0\max}$], при этом $r_{0\min}$ =0.05 мкм. Для каждого $r_{0\max}$ собственные числа вычисляются, сравнивая соответствующий элемент со всеми предыдущими элементами набора, как это было описано в параграфе 1.1. Минимальные из этих значений l_{\min} представлены на графике.

Известно, что при фиксированном значении *m* ядра интегральных уравнений (1.1), соответствующие α , предпочтительны при восстановлении малых частиц, по сравнению с соответствующими ядрами для β [35, 137]. Для фиксированных (известных) значений *m* спектры α_i или β_i линейно независимы (см. рис.1.1), поэтому их совместное использование не приводит к

существенному эффекту. Собственные числа зависят от шага вариации r_0 : чем больше Δr_0 , тем более независимы соответствующие спектры. Эта величина характеризует разрешение по размерам, которое может быть достигнуто в процессе лидарных измерений. Для логнормального распределения с $\ln \sigma = 0.4$ возможно определение размера частиц до $r_0=0.6$ мкм ($r_{eff}=0.9$ мкм) с разрешением $\Delta r_0 = 0.1$ мкм. В то же время, для частиц с $r_0 = 1.5$ мкм соответствующее разрешение составляет 0.5 мкм. Для иллюстрации на рис.1.10 приведены, также, результаты для поглощающих частиц с $m_1=0.01$. Поглощение вводит дополнительную зависимость параметров рассеяния от размера частиц, и восстановление становится возможным для значительно больших радиусов (при известном показателе преломления).

1.2.3 Определение параметров частиц в отсутствие предварительной информации

Перед рассмотрением общего случая, когда решение обратной задачи производится в отсутствие априорной информации о показателе преломления, рассмотреть промежуточную ситуацию, необходимо когда существует предварительная информация либо о реальной, либо о мнимой части показателя преломления. Если вариации либо *m*_R, либо *m*_I добавляются к вариациям r_0 , то интервал размеров, в котором возможно решение обратной Этот эффект рис.1.11. задачи, уменьшается. проиллюстрирован на Минимальные собственные значения вычисляются для комбинации α_i(λ) и $\beta_i(\lambda)$, при варьировании радиуса в интервале 0.05 µm - r_{0max} . В принципе, вариация r₀ может осуществляться с постоянным шагом, как это делалось на рис.1.10, однако более представительной является ситуация, когда шаг исчисляется в долях радиуса частицы. Для кривой представленной на рис.1.11, каждое значение r₀ получено путем удвоения предыдущего. Сравнение производится для элементов соответствующих r₀ и r₀/2. Таким образом, шаг равен $\Delta r_0 = r_0/2$ а ожидаемая точность оценки радиуса 50%.

Рассматриваются две ситуации. В первой, реальная часть $m_{\rm R}$ варьируется от 1.3 до 1.6 с $\Delta m_{\rm R}$ =0.1, в то время как мнимая часть $m_{\rm I}$ =0. Во второй, $m_{\rm R}$ фиксировано ($m_{\rm R}$ =1.5), в то время как $m_{\rm I}$ варьируется от 0.0 до 0.03 с шагом $\Delta m_{\rm I}$ =0.01. В первом случае, вариации $m_{\rm R}$ для выбранного $\Delta m_{\rm R}$, Δr_0 и δ =10% не позволяют решать обратную задачу за пределами интервала радиусов 0.15-1.3 мкм. Во втором случае, для $r_{0\min}<1$ мкм минимальные собственные значения определяются главным образом вариациями $m_{\rm I}$ при фиксированном r_0 , и решение обратной задачи возможно только для частиц с размерами, превосходящими 0.2 мкм. Штрихпунктирные линии на этом же рисунке соответствуют ситуации, когда два параметра фиксированы: $m_{\rm R}$ и $m_{\rm I}$ (полые квадраты), $m_{\rm I}$ и r_0 (звезды), $m_{\rm R}$ и r_0 (полые звезды). Эти штрихпунктирные линии ограничивают область, где решение обратной задачи все еще возможно: одновременное варьирование двух параметров может только уменьшить минимальные собственные числа.

Отсутствие априорной информации о *m* означает, что варьирование r_0 , m_R , m_1 происходит одновременно. При этом минимальные собственные числа определяются, как шагом вариации коэффициента преломления Δm , так и шагом изменения радиуса Δr_0 . Два этих механизма, однако, желательно разделить. Например, из рис.1.11 следует, что для частиц с $r_0<0.1$ мкм вариации m_R не позволяют одновременно восстанавливать размер и показатель преломления с заданной точностью. Однако возникает вопрос, может ли при этом быть определен хотя бы r_0 . Все вышесказанное относится и к коэффициенту преломления: возможно, существуют ситуации, когда только *m* может быть определен в процессе решения обратной задачи. Другими словами, желательно определить диапазон параметров, в котором вариации *m* и r_0 независимы, и диапазон в котором они взаимосвязаны.

Вариации параметров могут быть проиллюстрированы матрицей:

Если исключить сравнение между элементами внутри столбца, то это означает, что производится только определение размера, а восстановление показателя преломления не рассматривается. Соответственно, при исключении сравнения элементов внутри строки, определяется только *т*. Восстановление рис.1.12. С показателя преломления иллюстрируется на учетом вышесказанного, при расчетах исключается сравнение элементов, имеющих разные радиусы, но одинаковые *m*. Спектры $\alpha_i(\lambda)$ и $\beta_i(\lambda)$ используются совместно. Шаг вариации радиуса составляет $\Delta r_0 = r_0/2$. Коэффициенты обратного рассеяния рассматриваются на спектральном интервале 0.35 – 1.06 мкм, а коэффициенты экстинкции на интервале 0.35 – 0.53 мкм. Шаг вариации реальной части $\Delta m_{\rm R} = 0.15$, что соответствует точности оценки ±0.075. Для мнимой части шаг $\Delta m_1 = 0.01$. В случае прозрачного аэрозоля ($m_1 = 0$) и 10% погрешности измерений реальная часть *т* может быть определена на интервале размеров 0.1 мкм<r₀<1.2 мкм. В середине интервала собственные числа $l_{\min} \sim 0.03$, поэтому для прозрачного аэрозоля $m_{\rm R}$ может быть определено даже с более высокой точностью (~±0.05). Ситуация становится более сложной с увеличением интервала вариаций *m*_I. Диапазон размеров, для которых коэффициент преломления может быть определен, сокращается до 0.3 мкм< $r_0 < 1$ мкм, если 0< $m_1 < 0.01$. Если 0< $m_1 < 0.02$, то диапазон размеров сокращается еще больше, а собственные числа приближаются к пороговому значению 0.01. Это означает, что методика работает вблизи пределов своих обратной возможностей, И процедура решения задачи может стать неустойчивой. Поэтому любая предварительная информация об ожидаемой величине *m*_I должна улучшать точность метода.

Результаты анализа определения размера частиц представлены на рис.1.13. Вычисления проводились для $m_{\rm I}$ =0, а также для $0 < m_{\rm I} < 0.02$, в то время

как *m*_R варьировался от 1.3 до 1.6. Для сравнения показаны результаты, фиксированной величине m=1.5-i0. Влияние m_1 полученные при на восстановление среднего радиуса не столь критично, как при восстановлении *т.* Для $0 < m_1 < 0.02$ средний радиус может быть восстановлен в интервале 0.1 - 11.7 мкм. Интересно, что для $r_0 < 0.2$ мкм собственные значения увеличиваются, достигая значения соответствующего фиксированной величине *m*. Этот факт имеет простую физическую интерпретацию. Как показано на рис.1.4., при фиксированных малых r_0 спектры $\beta_i(\lambda)$ и $\alpha_i(\lambda)$ соответствующие различным m_i становятся похожи. Но это означает, что для различных радиусов r_{0i} эти спектры будут различаться (поскольку для фиксированных *m* спектры, соответствующие различным малым r₀ линейно независимы, как это показано на рис.1.10). Следовательно, при малых размерах частиц влияние *m* и *r* может быть разделено. Напротив, в диапазоне размеров 0.2 мкм $< r_0 < 1.5$ мкм m и r_0 взаимосвязаны. То есть, если не может быть восстановлено m, то размер r_0 также не может быть определен.



Рис.1.6. Минимальные собственные числа, рассчитанные из спектров $\alpha(\lambda)$ (круги), $\beta(\lambda)$ (сплошные круги) и их комбинации (полые круги) для различных величин модального радиуса r_0 . (а) Реальная часть показателя преломления варьируется от $m_R=1.3$ до $m_R=1.6$ с шагом $\Delta m_R=0.1$, при этом m_1 фиксировано ($m_I=0$). (б) Мнимая часть варьируется от $m_I = 0$ до 0.02 с шагом 0.01, при этом m_R фиксировано ($m_R=1.5$). Спектры $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$ рассматриваются на интервале 0.35 – 1.06 мкм, за исключением штрихпунктирной линии, которая соответствует результатам, полученным при рассмотрении $\alpha(\lambda)$ на интервале 0.35–0.53 мкм.



Рис.1.7. Минимальные собственные числа для фиксированных r_0 , рассчитанные из комбинации $\alpha(\lambda)$ и $\beta(\lambda)$ для $m_I = 0$, 0.01, 0.02. Реальная часть показателя преломления варьируется от 1.3 до 1.6 с шагом 0.1. Штрихпунктирная линия показывает результаты для $m_I = 0$ и $\Delta m_R = 0.05$.



Рис.1.8. Минимальные собственные числа для фиксированных r_0 рассчитанные из комбинации $\alpha(\lambda)$ и $\beta(\lambda)$. Реальная часть показателя преломления фиксирована (m_R =1.5), в то время как мнимая часть варьируется в интервалах: [0, 0.01] (круги), [0, 0.02] (квадраты), [0, 0.03] (треугольники) с шагом 0.01 (сплошные символы) и 0.005 (полые символы).



Рис.1.9. Минимальные собственные числа для фиксированных r_0 , рассчитанные из комбинации $\alpha(\lambda)$ и $\beta(\lambda)$. Реальная часть показателя преломления варьируется от 1.3 до 1.6 с шагом $\Delta m_R=0.1$. Мнимая часть m_I при этом варьируется в интервалах: [0, 0.01] (круги), [0, 0.02] (треугольники), [0, 0.03] (квадраты) с шагом $\Delta m_I=0.01$. Для сравнения показаны также результаты при фиксированном $m_I=0$ и варьируемом m_R (полые звезды), а также при фиксированном $m_R=1.5$ и m_I варьируемом в интервалах [0, 0.01] (полые круги), [0, 0.03] (полые квадраты).



Рис.1.10. Минимальные собственные числа, как функция of $r_{0,\text{max}}$ рассчитанные из $\beta_i(\lambda)$ (полые квадраты), $\alpha_i(\lambda)$ (полые круги) и их комбинации (сплошные круги). Вычисления проводились в интервале радиусов [$r_{0\text{min}}$, $r_{0\text{max}}$], при $r_{0,\text{min}} = 0.05$ мкм, $r_{0,\text{max}}$ варьировались с шагом 0.1 мкм и 0.5 мкм. Показатель преломления m=1.5-i0. На рисунке представлены также результаты для комбинации $\beta_i(\lambda)$ и $\alpha_i(\lambda)$ при m=1.5-i0.01 (сплошные звезды).



Рис.1.11. Минимальные собственные числа, рассчитанные из комбинации $\alpha_i(\lambda)$ и $\beta_i(\lambda)$ при двух варьируемых параметров: r_0 и m_R (сплошные круги); r_0 и m_I (открытые круги). Реальная часть показателя преломления m_R варьируется от 1.3 до 1.6 с шагом $\Delta m_R=0.1$, $m_I=0$ (сплошные круги). Мнимая часть m_I варьируется от 0.0 до 0.03 с шагом $\Delta m_I=0.01$; $m_R=1.5$ (полые круги). Вычисления проводились в интервале радиусов [r_{0min} , r_{0max}], при $r_{0min}=0.05$ мкм и $\Delta r_0=r_0/2$. Для сравнения штрихпунктирная линия показывает результаты для ситуации, когда два параметра фиксированы: m_R и m_I (полые квадраты); r_0 и m_I (сплошные звезды); r_0 и m_R (полые звезды).



Рис.1.12. Иллюстрация возможности определения комплексного показателя преломления. Минимальные собственные числа представлены в зависимости от радиуса. Вычисления проводились для фиксированной величины m_I=0 (сплошные символы) и для m_I варьируемого в интервалах: [0; 0.01] (полые круги) и [0; 0.02] (полые звезды) при $\Delta m_{\rm I}$ =0.01 и $\Delta m_{\rm R}$ =0.15. Собственные числа определяются на интервале [$r_{0\min}$, $r_{0\max}$], при $r_{0\min}$ =0.05 мкм и Δr_0 = $r_0/2$.



Рис.1.13. Определения размера частицы при неизвестном показателе преломления. Минимальные собственные числа представлены в зависимости от $r_{0\text{max}}$ при m_{R} варьируемом в диапазоне $1.3 < m_{\text{R}} < 1.6$ и $\Delta m_{\text{R}} = 0.15$; m_{I} варьируется в диапазоне $0 < m_{\text{I}} < 0.02$ (круги) с $\Delta m_{\text{I}} = 0.01$. На рисунке для сравнения показаны результаты для прозрачных частиц ($m_{\text{I}} = 0$, круги) и для случая, когда показатель преломления известен (m = 1.5 - i0, квадраты). Собственные числа определяются на интервале [$r_{0\text{min}}$, $r_{0\text{max}}$] при $r_{0\text{min}} = 0.05$ мкм и $\Delta r_0 = r_0/2$.
§ 1.3. Оценка количества независимых компонент в вариациях спектров обратного рассеяния и экстинкции частиц

В анализе, проведенном в разделе 1.2, предполагалось бесконечное число длин волн лазерного излучения. При работе с реальными лидарными необходимо системами знать минимальное количество длин волн. необходимых для аппроксимации спектров $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$. Это означает, что необходимо исследовать степень взаимозависимости точек на кривых β(λ), α(λ). Или, говоря другими словами, необходимо определить, сколько независимых компонент содержится в вариациях спектров $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$, возникающих при изменении размера частиц и коэффициента преломления. Подобный анализ может быть проведен на основе рассмотрения собственных чисел l_i матрицы ковариации $\mathbf{C}^b = \left\| \int b_i(I) b_j(I) dI \right\|$.

Наборы спектров $\beta_i(\lambda)$ и $\alpha_i(\lambda)$ генерировались в широком диапазоне радиусов r_0 и коэффициентов преломления m: 0.05 мкм $< r_0 < 1.5$ мкм; 1.3 $< m_R < 1.6$; 0 $< m_I < 0.02$. Моделирование проводилось для логнормального распределения с $ln\sigma=0.4$. Спектры нормировались так, что $\int b^2(l) dl = 1$ и все элементы матрицы ковариации делились на число элементов N_{el} в рассматриваемом наборе, для выполнения условия $\sum_i l_i = 1$. Число независимых компонент определяется номером собственного числа, для которого $l_i > \delta^2$. Собственное число соответствует вкладу соответствующей компоненты в полную мощность вариаций $\sum \int b_i^2(l) dl$.

Рис.1.14 иллюстрирует определение количества независимых компонент в спектрах $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$. Величины собственных чисел l_i отображены в зависимости от их номера *i*. Сплошные линии соответствуют вариациям r_0 при фиксированном *m*, а пунктирные линии соответствуют ситуации, когда *m* и r_0 варьируются одновременно. Для 10% погрешности измерений, вариации коэффициентов обратного рассеяния содержат не более трех независимых

компонент, а вариации экстинкции не более двух. Необходимо иметь виду, что подобный анализ позволяет лишь оценивать требуемое количество длин волн. Однако можно заключить, что измерение β на трех длинах волн и α на двух позволяет выделить большую часть информации содержащейся в $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$. Интересно, что введение вариаций *m* практически не увеличивает количество независимых компонент. Это означает, что соответствующие вариации линейно зависимы, что согласуется с результатами, представленными на рис.1.13.



Рис.1.14. Первые четыре собственных числа матрицы ковариации, вычисленные для спектров обратного рассеяния и экстинкции. Коэффициент преломления фиксирован при m=1.45-i0 (сплошная линия). Пунктирная линия соответствует ситуации, когда $m_{\rm R}$ и $m_{\rm I}$ варьируются в диапазонах 1.3–1.6 и 0-0.02, соответственно.

§ 1.4. Эффект увеличения количества длин волн зондирующего излучения

В данном разделе мы исследуем возможность увеличения точности восстановления распределения частиц по размерам, при добавлении дополнительных коэффициентов обратного рассеяния к стандартному набору, состоящему из трех β (355, 532, 1064 нм) и двух α (355, 532 нм). Для этой цели мы используем длины волн 400, 710 и 800 нм, поскольку это рабочие длины волн многоволнового лидара в ITR (Лейпциг) [29], данные с которого будут использованы в следующей главе. Эффект увеличения количества длин волн удобно изучать с использование анализа линейной независимости ядер соответствующих уравнений. Чем сильнее различаются ядра, тем больше информации в них содержимся, и тем менее чувствительно будет решение обратной задачи к погрешностям измерения.

Подход к анализу линейной независимости ядер подробно описан в [28]. Метод основан на рассмотрении матрицы ковариации $\mathbf{D} = \left\| \int_{r_{min}}^{r_{max}} K_i(r)K_j(r)dr \right\|$, элементы которой являются проекциями ядер интегрального уравнения друг на друга. Ядра являются независимыми, если соответствующее минимальное собственное число $l_{min} > \delta^2$. Использование дополнительных оптических данных внутри выбранного спектрального интервала может только уменьшить l_{min} . Таким образом, использование дополнительных длин волн оправданно, если только минимальное собственное число новой матрицы ковариации превосходит определенный предел.

Ядра, соответствующие экстинкции, а в особенности обратному рассеянию являются сильно осциллирующими [35], поэтому их прямое использование для анализа сталкивается с трудностями: высокочастотные осцилляции делают ядра линейно независимыми. Однако, реальный аэрозоль имеет распределение по размерам, а, кроме того, при решении обратной задачи ядра сворачиваются с медленно меняющимися на рассматриваемом интервале размеров базовыми функциями [33]. Поэтому высокочастотные осцилляции

для данного анализа оказываются несущественными.

В процессе вычислений высокочастотные осцилляции сглаживались интегрированием ядер по логнормальному распределению с $\ln \sigma = 0.4$. Сглаженные ядра $\tilde{K}_i(r_0,m)$ использовались для вычисления матрицы ковариации **D**. Ядра нормализованы так, что $\int_{r_{0min}}^{r_{0max}} \tilde{K}_i^2(r_0,m) dr_0 = 1$, где $[r_{0min}, r_{0max}]$ интервал на котором производится анализ линейной независимости ядер.

Нас интересует взаимозависимость ядер на различных интервалах, поэтому окно интегрирования $[r_{0min}, r_{0max}]$ является скользящим. На рис.1.15 показаны третье (l_3) и четвертое (l_4) собственные числа, как функция r_{0max} , вычисленные на интервале $[r_{0\min}, r_{0\max}]$ при $r_{0\min} = r_{0\max}/5$ и *m*=1.45-і0. Вычисления проводились для трех коэффициентов обратного рассеяния на длинах волн 355, 532, 1064 нм. На рисунке приведены также собственные числа при добавлении длин волн 400 нм, 710 нм и 800 нм. Пунктирная линия соответствует 10% погрешности измерений. Для трех длин волн ядра являются независимыми в диапазоне 0.75 мкм<*r*_{0max}<4 мкм. Увеличение количества длин волн приводит к появлению собственных чисел более высокого порядка, которые оказываются ниже уровня погрешности измерений. Таким образом, использование дополнительных длин волн не приводит к улучшению разрешения (по размеру). В то же время, величина l_3 возрастает, что означает, что решение становится более устойчивым. Для того чтобы улучшить разрешение по размеру за счет увеличения количества длин волн, измерение коэффициентов обратного рассеяния лидаром должно производиться с точностью, по крайней мере, 5%. Эта точность на сегодняшний день реальна и в принципе может быть обеспечена при использовании рамановского лидара.



Рис.1.15. Третье (круги) и четвертое (квадраты) собственные числа, в зависимости от $r_{0\text{max}}$. Вычисления проводятся на интервале [$r_{0\text{min}}$, $r_{0\text{max}}$] при $r_{0\text{min}} = r_{0\text{max}}/5$ для трех коэффициентов обратного рассеяния (3 β , сплошные круги) и длин волн 355, 532, 1064 нм. На рисунке представлены также собственные числа при добавлении коэффициентов рассеяния на длинах волн 400 нм (4 β , полые круги), 710 нм (5 β , круги с крестами) и 800 нм (6 β , квадраты с крестами). Показатель преломления *m*=1.45-i0. Пунктирная линия 10% погрешности измерений.

§ 1.5. Основные результаты

В данной главе проанализирована возможность получения информации о микрофизических параметрах аэрозоля из данных многоволнового лидарного зондирования. Сформулируем основные результаты, полученные в рамках предложенного подхода.

Проведенный анализ показал принципиальную необходимость совместного использования коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции при решении обратной задачи. Использование одних лишь коэффициентов обратного рассеяния возможно только в специальных случаях, когда имеется предварительная информация о показателе преломления, как, например, при зондировании стратосферного аэрозоля.

Максимальный размер измеряемых частиц определяется диапазоном длин волн, для которых вычисляется коэффициент обратного рассеяния (в данном исследовании этот диапазон составляет 0.35 – 1.06 мкм). Коэффициент экстинкции играет вспомогательную, стабилизирующую роль. Использование экстинкции для длин волн в диапазоне 0.35 – 1.06 мкм и 0.35 – 0.53 мкм приводит к близким результатам.

Погрешность определения размера r и показателя преломления m существенно зависит от диапазона ожидаемых вариаций m_1 . Таким образом, в присутствии сильнопоглощающих аэрозолей, точность метода может Наличие же предварительной информации об оптических ухудшаться. свойствах аэрозоля (получаемой, например, из спутниковых измерений), напротив, позволяет уменьшить диапазон рассматриваемых вариаций параметров и увеличить точность решения обратной задачи.

При использовании лазерного излучения в диапазоне 0.35 – 1.06 мкм существует область размеров частиц, внутри которой могут быть определены их радиус и показатель преломления на основе данных лидарного зондирования. Для слабопоглощающего аэрозоля (0<m_I<0.01) m_R может быть оценено в диапазоне 0.1<r₀<1.2 мкм с точностью не хуже ±0.075, а радиус

частиц в диапазоне $0.05 < r_0 < 1.7$ мкм с точностью не хуже 50%. Для аэрозолей со значительным поглощением ($0 < m_I < 0.02$) интервал на котором определяется m_R , сокращается до 0.3 - 1.0 мкм. Точность определения мнимой части показателя преломления не хуже ±0.005.

Для частиц малых размеров ($r_0 < 0.2$ мкм) влияние вариаций *m* и *r* может быть разделено. Напротив, в диапазоне размеров 0.2 мкм < $r_0 < 1.5$ мкм вариации *m* и r_0 взаимосвязаны. То есть, если не может быть восстановлено *m*, то размер r_0 также не может быть определен.

Количество независимых компонент в спектрах $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$ относительно невелико, поэтому измерение коэффициента обратного рассеяния на трех длинах волн и экстинкции на двух позволяет извлечь большую часть принципиально доступной информации о микрофизических параметрах аэрозоля. Таким образом, для регулярного мониторинга аэрозоля целесообразно использование относительно не дорогих рамановских лидаров на основе Nd:YAG лазера, обеспечивающих измерение β на длинах волн 355, 532, 1064 нм и α на длинах волн 355, 532 нм.

Простое увеличение количества длин волн не приводит к улучшению точности восстановления распределения частиц по размерам. Такое улучшение достигается только при одновременном повышении точности оптических данных.

Глава II. ОПРЕДЕЛЕНИЕ МИКРОФИЗИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ АТМОСФЕРНОГО АЭРОЗОЛЯ ПО ДАННЫМ МНОГОВОЛНОВОГО ЛИДАРНОГО ЗОНДИРОВАНИЯ.

В предыдущей главе было показано, что спектры обратного рассеяния и аэрозоля содержат информацию 0 его микрофизических экстинкции параметрах. Полученные результаты, однако, не дают ответа на вопрос о методе решения соответствующей обратной задачи. Одним из наиболее методов решения обратных распространенных задач является метол регуляризации Тихонова [27]. Однако в случае лидарных измерений его значительными использование сопряжено co трудностями, поскольку погрешность измерения входных параметров (коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля) может составлять десятки процентов.

Ситуация изменилась с прогрессом в разработке рамановских лидаров, которые способны независимо измерять коэффициенты обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля с погрешностью на уровне 10%. Впервые многоволновый рамановский лидара был использован для определения параметров аэрозоля в Институте Тропосферных Исследований (ИТИ, Лейпциг) [29-32]. В алгоритме ИТИ для решения обратной задачи использовался метод регуляризации, позволяющий восстанавливать не только средний размер частиц, их концентрацию, но и комплексный показатель преломления.

Вместе с тем, ряд проблем оставался нерешёнными. Несмотря на впечатляющие возможности, многоволновой лидар ИТИ является очень дорогим и сложным в эксплуатации. Было бы желательно оценивать параметры аэрозолей с приемлемой точностью, используя упрощенную версию лидарной системы на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники. Такой лидар позволяет измерять коэффициенты обратного рассеяния b(1) на длинах волн 1 = 355,532, 1064 нм и экстинкции a(1) при 1 = 355,532 нм. Такое количество оптических данных, как это было показано в предыдущей главе, должно позволить решать рассматриваемую задачу.

Восстановленное распределение аэрозолей ПО размеру f(r)c алгоритма ИТИ случаев использованием В ряде характеризовалось значительными осцилляциями, что приводило к существенной погрешности в оценке концентрации частиц. Нестабильность работы алгоритма ИТИ может быть обусловлена неоптимальным выбором параметра регуляризации у. Следовательно, критерий выбора параметра у также должен быть пересмотрен. Стабилизация алгоритма будет особенно важна при использовании ограниченного набора оптических данных a(1) и b(1). Кроме того, необходимо использования рассмотреть возможность дополнительных методов стабилизации процедуры инверсии. Наконец, неисследованным остаётся вопрос 0 погрешностях метода, особенно В случае бимодального распределения аэрозоля по размерам.

Исходя из вышесказанного, основные вопросы, рассмотренные в этой главе можно сформулировать следующим образом.

- Возможно ли использование метода минимальной невязки для определения параметра регуляризации в отсутствие априорной информации о погрешности измерений?

- Возможно ли использование процедуры усреднений решений для стабилизации решения обратной задачи?

- Как соотносятся погрешности восстановления параметров аэрозоля для систем использующих три и шесть длин волн лазерного излучения?

- Возможно ли восстановление параметров аэрозоля в случае бимодального распределения по размерам?

- Как влияют различные типы ядер интегрального уравнения на стабильность решения обратной задачи?

Решению этих вопросов посвящена эта глава диссертации, написанная на основании работ [<u>33-36, 40, 41</u>].

§2.1. Использование метода регуляризации Тихонова для решения обратной задачи многоволнового лидарного зондирования

Задача восстановления распределения аэрозоля по размерам обычно формулируется в виде уравнений Фредгольма второго рода: $B_i = \int_{0}^{\infty} K_B(m, r, \pi_i) f(r) dr$ (2.1)

$$\delta_{i} = \int_{0}^{\infty} K_{\delta}(m, r, \pi_{i}) f(r) dr$$
(2.2)

где β и α - коэффициенты обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля; г – радиус частицы, m=m_R-im_I – комплексный показатель преломления, λ_i – длины волн используемые в зондировании, $K_{\beta}(m,r,\lambda_i)$ и $K_{\alpha}(m,r,\lambda_i)$ – ядра интегрального уравнения, вычисляемые на основе теории Ми, для случая сферических частиц [37]. Функция f(r) есть искомое распределение частиц по размерам. Соотношения (2.1) и (2.2) могут быть записаны в обобщенном виде:

$$g_{j}(I_{i}) = \int_{r_{min}}^{r_{max}} K_{j}(m, r, \pi_{i}) f(r) dr, \qquad (2.3)$$

где индекс ј соответствует α или β ; $g_j(\lambda_i)$ – оптические данные на длине волны λ_i ; r_{min} и r_{max} соответствуют минимальному и максимальному размеру рассматриваемых частиц.

Уравнение (2.3) не имеет аналитического решения. Одним из методов используемых при рассмотрении данной обратной задачи является метод регуляризации, предложенный Тихоновым. Детальное описание этого подхода можно найти в монографиях [27, 28], здесь же, лишь кратко поясняются основные этапы решения.

В рамках этого подхода уравнение (2.3) может быть записано в следующей форме:

$$g_{p}^{d} = \int_{r_{min}}^{r_{max}} K_{p}(m,r) f^{d}(r) dr, \qquad (2.4)$$

где g_{p}^{δ} – оптические данные, содержащие ошибку измерений δ ; f^{δ} (r) есть распределение, соответствующее этим искаженным данным; p=j, λ . Интеграл в уравнении (2.4) может быть представлен в виде суммы разложения по произвольным базовым функциям $B_{j}(r)$:

$$f^{\pi}(r) = \tilde{f}^{\pi}(r) + e = \sum_{j} C_{j} B_{j}(r) dr + e.$$
(2.5)

Здесь член $\tilde{f}^{\pi}(r)$ соответствует приближенному решению уравнения (2.4), а є соответствующая ошибка; C_j – весовые коэффициенты базовых функций. Функции $B_j(r)$ в принципе могут выбираться любые. Наиболее удобны в использовании функции имеющие вид треугольников:

$$B_{j}(r) = \begin{cases} 0 & ; r < r_{j-1} \\ 1 - \frac{r_{j} - r}{r_{j} - r_{j-1}} & ; r_{j-1} < r \le r_{j} \\ 1 - \frac{r - r_{j}}{r_{j+1} - r_{j}} & ; r_{j} < r \le r_{j+1} \\ 0 & ; r > r_{j+1} \end{cases}$$
(2.6)

где r_0 и r_{N+1} определяют интервал, на котором ищется решение, в дальнейшем этот интервал будет называться окном инверсии; N_{bf} – количество базовых функций. Точки r_j распределены внутри интервала [r_0 , r_{N+1}] эквидистантно либо лог-эквидистантно.

Используя уравнения (2.4) и (2.5) оптические данные могут быть записаны в виде линейной комбинации:

$$g_p^{\pi} = \sum_{j=1}^{N} A_{pj}(m) C_j + e^{\nabla},$$
 (2.7)

где А_{рј} и е^v вычисляются как:

$$A_{pj}(m) = \int_{r_{min}}^{r_{max}} K_{p}(m,r) B_{j}(r) dr, \qquad (2.8)$$

$$e_{p}^{\nabla} = \int_{r_{min}}^{r_{max}} K_{p}(m,r) e(r) dr$$
 (2.9)

Записывая оптические данные, весовые коэффициенты и погрешности в виде векторов $\overline{g}^{\pi} = [g_{p}^{\pi}], \ \overline{C} = [C_{j}], \ \overline{e}^{\nabla} = [e_{p}^{\nabla}],$ уравнение (2.7) может быть представлено в следующей матрично-векторной форме:

$$\overline{\mathbf{g}}^{\scriptscriptstyle \pi} = \mathbf{A} \,\overline{\mathbf{C}} + \overline{\mathbf{e}}^{\scriptscriptstyle \nabla} \,, \tag{2.10}$$

где A = [A_{pj}] так называемая весовая матрица, элементы которой вычисляются по формуле (2.8).

Весовые коэффициенты, исходя из уравнения (2.10), могут быть вычислены как:

$$\overline{\mathbf{C}} = \mathbf{A}^{-1} \ \overline{\mathbf{g}}^d + \overline{\mathbf{e}} \,, \tag{2.11}$$

где $\bar{e} = -A^{-1} \bar{e}^{\nabla}$ и A^{-1} матрица обратная А. Таким образом, решение обратной задачи сводится к нахождению коэффициентов C_i.

Для дальнейшего анализа уравнение (2.3) удобнее использовать в операторной форме [27]:

$$\mathbf{\hat{A}} \mathbf{f} = \mathbf{g} \tag{2.12}$$

На данном этапе не рассматривается погрешность ε приближения искомого распределения набором базовых функций (ε =0). Поскольку вместо точных величин оптических данных **g** известны лишь их приближенные значения **g**^d, соответствующая ошибка определяется нормой:

$$\left\| \mathbf{g} - \mathbf{g}^{\mathbf{\pi}} \right\| \leq \mathbf{\pi}, \tag{2.13}$$

В свою очередь, невязка $\mathbf{c'} = \|\mathbf{A}\mathbf{f} - \mathbf{g}^{\pi}\|$ характеризует, насколько найденное решение соответствует исходным оптическим данным. Минимизация невязки, как это делается, например, в методе наименьших квадратов, к сожалению, не приводит к удовлетворительному результату. Дело в том, что решение уравнения (2.11) неустойчиво. То есть, при минимальной невязке полученное решение оказывается сильно осциллирующим. Это обусловлено тем, что

матрица **A** может содержать малые собственные числа, и при вычислении обратной матрицы это приводит к упомянутой неустойчивости. Одним из способов, позволяющих обеспечить устойчивость решения обратной задачи, является метод регуляризации Тихонова [27,28].

В основе этого метода лежит введение дополнительного ограничения на класс получаемых решений, то есть решение должно быть гладким. Таким образом, в методе Тихонова минимизируется функционал $\mathbf{M}^{r}[\mathbf{f},\mathbf{g}^{n}] = \left\| \mathbf{\hat{K}} \mathbf{f} - \mathbf{g}^{n} \right\|^{2} + \Gamma \Gamma(\mathbf{f}),$ (2.14)

где γ - неотрицательный параметр регуляризации, или как его обычно называют, множитель Лагранжа, а **G(f)** – стабилизирующий член, определяющий гладкость решения. Очевидно, что при $\gamma \rightarrow \infty$ решение будет абсолютно гладким (при этом вся содержащаяся в нем информация будет утеряна), в то время как при $\gamma \rightarrow 0$ мы снова приходим к методу наименьших квадратов. Таким образом, корректный выбор множителя Лагранжа является ключевой проблемой при использовании метода регуляризации.

Член $\Gamma(f)$ может быть записан в различных формах, наиболее удобно его представить в виде $f^{T}Hf$, где H – симметричная матрица, а индекс T означает транспонирование. Наиболее часто в качестве G(*f*) используется сумма

$$H = \begin{pmatrix} 1 & -2 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -2 & 5 & -4 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & -4 & 6 & -4 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & -4 & 6 & -4 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & -4 & 6 & -4 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & -4 & 6 & -4 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & -4 & 5 & -2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & -2 & 1 \end{pmatrix}$$

разностей вторых производных, при этом матрица Н имеет вид:

Решение уравнения (2.12) находится из минимизации функционала $M^{r}[\tilde{f}_{\gamma}^{\delta}, g^{\pi}] \longrightarrow \min$, что означает:

$$\frac{\partial}{\partial f_k} \left\{ \left(Af - g^d \right)^T \left(Af - g^d \right) + g f^T H f \right\} = 0$$

В результате, приходим к выражению:

$$A^{T} A \overline{C} - A^{T} g^{\pi} + \Gamma H = 0$$
(2.15).

И окончательно весовые коэффициенты определяются как: $\overline{C} = (A^T A + \Gamma H)^{-1} A^T g^{\pi}$ (2.16)

Использование сглаживающей матрицы Н физически означает, что распределение аэрозоля по размерам не может иметь сильных осцилляций при небольших изменениях *г*. Для определения множителя Лагранжа существуют различные подходы [138-140]. В данном исследовании для определения этого параметра использовался метод минимума невязки, поскольку этот критерий является наиболее простым и естественным. Основной проблемой при использовании критерия минимума невязки является необходимость знать погрешность измерений оптических данных, поскольку минимальная невязка достигается при $\gamma \rightarrow 0$, когда решение может осциллиовать от - ∞ до + ∞ . В рассматриваемой ситуации, данный метод может быть модифицирован. Можно использовать тот факт, что искомое решение всегда положительно. При вычислении модифицированной невязки ρ используются только модули $|f^{\delta}|$. Соответственно только те решения, для которых $\rho = ||A|f^{\delta}| - g^{\delta}||$ минимизирует функцию (2.14), будут рассматриваться, как решение данной обратной задачи. Для малых γ модифицированная невязка $\rho \rightarrow \infty$, с увеличением γ невязка уменьшается и $f^{\delta} \rightarrow f$. Для больших у модифицированная невязка ρ совпадает с классической невязкой ρ', введенной в (2.14).

В первую очередь, нас будут интересовать относительные погрешности метода, поэтому для удобства дальнейшего анализа невязка нормализуется к виду:

$$\mathbf{r} \equiv \frac{1}{N} \sum_{i} \frac{\left| g_{i}^{d} - \mathbf{A} \right| \mathbf{f}_{i}^{d} \right\|}{g_{i}^{d}}$$

Величина γ зависит от выбранного интервала [r_{min}, r_{max}], погрешности

измерений δ и показателя преломления частиц. Поиск решения в используемом методе включает в себя следующие этапы:

- Величины г_{min}, г_{max} и комплексный показатель преломления $m=m_R-im_I$ варьируются в интервалах Δr_{min} , Δr_{max} , Δm_R , Δm_L Обычно R_{min} варьируется от 0.05 до 0.5 мкм, величина R_{max} варьируется от 0.1 до 1 мкм, но при моделировании больших частиц этот диапазон увеличивается до 10 мкм. На предварительной стадии шаг вариации R_{min} и R_{max} составляет 0.05 и 0.1 мкм соответственно. После того как предварительные величины R_{min} . и R_{max} определены, вычисления проводятся с меньшим шагом 0.01-0.02 мкм внутри более узкого интервала. Таким образом, проводится рассмотрение нескольких сотен окон инверсии. Реальная часть показателя преломления m_R варьируется от 1.1 до 1.8, мнимая часть m_I от 0 до 0.05. После получения предварительных результатов диапазон варьирования уменьшается, и вычисления проводятся с шагом 0.005.

- Для каждой величины r_{min} , r_{max} , m_R , m_I и для набора величин γ , программа определяет решения $\tilde{f}_r^{\ a}$ на основе уравнений (2.16) и (2.5). Набор величин γ задается как $\gamma = 2^K 10^{-b}$, где K=1, 2...100. Параметр b обычно выбирается между 20 и 28 для достижения минимума функции (2.14) на выбранном интервале. Шаг интегрирования в уравнении (2.8) обычно 0.001 мкм.

- Для каждого найденного решения определяется невязка $\rho(\gamma)$. Решение \tilde{f}_{r}^{A} соответствующее минимальной невязке считается решением уравнения (2.4).

Использование модифицированной невязки позволяет определять множитель Лагранжа, без каких либо предположений о погрешности измерений. Процесс определения γ иллюстрируется на рис.2.16, где для синтетических оптических данных, невязка ρ вычисляется как функция множителя Лагранжа. Выбираемое значение γ обеспечивает минимизацию невязки на рассматриваемом интервале. Корректность описанного алгоритма построения решения будет продемонстрирована в следующем разделе. Следует отметить также, что хотя для вычисления невязки используются модули

решений $|f^{\delta}|$, сами найденные решения f^{δ} могут содержать отрицательные осцилляции. Этот факт играет существенное значение в процедуре усреднения решений, которая также будет рассмотрена в следующем разделе.

При решении обратной задачи количество базовых функций N_{bf} обычно совпадает с количеством оптических коэффициентов N_{opt}. В данном исследовании рассматривается также ситуация, когда N_{bf} >N_{opt}. Следует отметить, что поскольку в уравнении (2.16) используется произведение A^TA, то результирующая матрица все равно остается квадратной, и окончательные выражения для определения весовых коэффициентов оказываются неизменными.

Одной из проблем, возникающей при восстановлении крупных частиц, является резкое увеличение времени вычислений. В первоначальной версии программы ядра K_i(m,r, λ) и матричные элементы A_{ii} заново вычислялись для каждого решения. В результате, восстановление распределения аэрозоля в диапазоне 0.05 – 20 мкм занимало почти сутки при использовании Pentium III компьютера. Для увеличения скорости счета был создан компьютерный банк данных, содержащий значения функций Ми. Эти функции вычислялись для диапазона радиусов 0.01 – 20 мкм с шагом 0.001 мкм. Реальная часть коэффициента преломления варьировалась в диапазоне 1.25 – 1.75 с шагом 0.025. Мнимая часть варьировалась в диапазоне 0 – 0.05 с шагом 0.005. Использование этого банка данных позволило резко увеличить скорость счета. Так, в этом случае, рассмотрение 4000 окон инверсии занимает 20 минут и не зависит от размера аэрозоля. Для дальнейшего увеличения скорости счета, также был создан банк значений А_{іі} для различных типов ядер и количества оптических данных. При использовании этого банка данных, решение обратной задачи занимает около 3 минут, что позволяет проводить оперативную обработку лидарных данных.



Рис.2.1. Зависимость невязки ρ от величины множителя Лагранжа γ. Шаг вычисления К связан с множителем Лагранжа как γ=2^K10⁻²³.

§2.2 Численное моделирование восстановления мономодального распределения аэрозоля по размерам из данных лидарного зондирования

Результаты анализа проведенного в главе 1 позволяют оценить область параметров, в которой возможно решение обратной задачи. Подобное рассмотрение, однако, не позволяет определить погрешности определения различных параметров (числовой, поверхностной, объемной концентрации, эффективного радиуса и др.) для конкретного алгоритма и входного набора оптических данных. Для ответа на этот вопрос необходимо проведение численного моделирования, результаты которого представлены в этом параграфе.

2.2.1. Постановка задачи

При моделировании будут рассматриваться длины волн внутри интервала 355 – 1064 нм, границы которого определяются длиной волны Nd:YAG лазера и его третьей гармоники. Использование излучения с меньшими длинами волн затруднено, вследствие поглощения атмосферным озоном. Расширение этого интервала в ИК спектральную область, также сопряжено с трудностями, которые обусловлены дисперсией коэффициента преломления аэрозоля и проблемами, связанными с точностью вычисления оптических данных из лидарных измерений. Эти проблемы более подробно будут обсуждаться в следующих разделах.

На данном этапе моделирования не учитываемся дисперсия коэффициента преломления и его зависимость от размера частицы. Начальное распределение аэрозоля по размерам предполагается логнормальным:

$$\frac{\partial n(r)}{\partial \ln r} = \frac{n_t}{(2p)^{1/2} \ln s} \exp\left[-\frac{(\ln r - \ln r_0)^2}{2(\ln s)^2}\right]$$

Здесь n_t – полное количество частиц, а lno определяет ширину

распределения. При решении обратной задачи будут использоваться коэффициенты обратного рассеяния, экстинкции аэрозоля и их комбинации, поскольку, как показано в главе 1, это позволяет стабилизировать решение задачи и восстанавливать показатель преломления.

Как уже отмечалось во введении, точные значения коэффициента экстинкции аэрозоля могут быть получены только с использованием рамановского лидара, что требует высокой мощности лазерного излучения. При этом необходимо принимать во внимание, что сечение комбинационного рассеяния уменьшается с увеличением длины волны как λ^{-4} . Поэтому в лидаре на основе Nd:YAG лазера экстинкция аэрозоля может быть вычислена только на длинах волн 355 и 532 нм, в то время как рамановское рассеяние излучения с длиной волны 1064 слишком слабо для лидарных измерений. Будут рассмотрены три набора оптических данных. Набор 1 (2α +3 β) состоит из двух коэффициентов экстинкции и трех коэффициентов обратного рассеяния. Набор 2 ($2\alpha+5\beta$) содержит два дополнительных коэффициента обратного рассеяния на длинах волн 416 нм и 683 нм, которые могут эффективно генерироваться при ВКР преобразовании второй и третьей гармоник Nd:YAG лазера в водороде. Набор 3 (2α+6β) включает шесть коэффициентов обратного рассеяния на длинах волн 355, 400, 532, 710, 800 и 1064 нм. Эти длины волн используются в лидарной системе Института Тропосферных Исследований (Лейпциг, Германия), данные с которой будут использоваться для сравнительного анализа.

В процессе моделирования восстанавливалась полная численная (N_t), поверхностная (S_t) и объемная (V_t) концентрации, средний (r_{mean}) и эффективный (r_{eff}) радиусы частиц. Эти радиусы определяются как:

$$r_{mean} = \frac{\int_{r_{min}}^{r_{max}} rf(r)\partial r}{\int_{r_{min}}^{r_{max}} f(r)\partial r},$$

$$r_{eff} = \frac{\int_{r_{min}}^{r_{max}} r^3 f(r) \partial r}{\int_{r_{max}}^{r_{max}} r^2 f(r) \partial r}.$$

Распределение по размерам в уравнении (2.1) может быть записано также для поверхностной $ds(\mathbf{r})/dr$ и объемной $dv(\mathbf{r})/dr$ плотности. Соответствующие ядра интегрального уравнения получаются делением K_i(m,r, λ) на $4\pi r^2$ и (4/3) πr^3 , соответственно эти ядра обозначаются, как $K_{is} = \frac{K_i}{4pr^2}$ и $K_{iv} = \frac{3}{4}\frac{K_i}{pr^3}$, и в дальнейшем будут называться ядрами поверхностной и объемной плотности. При решении обратной задачи обычно используются ядрами объемной плотности [30-32,133]. В данном исследовании будут использоваться все три типа ядер для выяснения преимуществ каждого из них при восстановлении различных параметров аэрозоля.

Более того, помимо традиционно используемых ядер, можно определить Эти ядра более высокого порядка. ядра вычисляются, И как $K_{i4} = \frac{K_i}{r^4}, K_{i5} = \frac{K_i}{r^5} \dots K_{ik} = \frac{K_i}{r^k}$. Соответствующие решения не имеют простой физической интерпретации, однако из них могут быть рассчитаны параметры распределения аэрозоля по размерам, такие как dn(r)/dlnr, ds(r)/dlnr, и dv(r)/dlnr. Улучшение стабильности решения обратной задачи, которое можно ожидать при переходе к ядрам более высокого порядка, связано с уменьшением вклада больших частиц в коэффициент обратного рассеяния. Рис.2.2 показывает зависимость эффективности обратного рассеяния от размера частицы для длин волн 355, 532, 1064 нм. При r>3 мкм вклад в рассеяние на всех длинах волн становится сравнимым, что приводит к неустойчивости решения обратной В задачи. процессе нахождения решения проводится свертка ядер интегрального уравнения с базовыми функциями, которые достаточно широки и захватывают "хвосты" ядер соответствующие большим размерам. Деление ядер на r^k уменьшает вклад больших частиц, но в то же время увеличивает

вклад малых частиц. Следовательно, можно ожидать, что ядра более высокого порядка могут оказаться предпочтительны при восстановлении крупных аэрозолей, а ядра низшего порядка при восстановлении мелкодисперсной фракции.

2.2.2. Анализ прямой задачи

Прежде чем переходить к решению конкретной обратной задачи, необходимо проанализировать соответствующую прямую задачу, то есть понять, как физические параметры аэрозоля влияют на оптические данные, получаемые в процессе лидарных измерений. Для этого рассмотрим зависимость коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля от размера частицы в спектральном диапазоне 355 – 1064 нм. Рис.2.2 показывает соответствующие результаты, рассчитанные при m=1.35-i0. Высокочастотные осцилляции, характерные для функций Ми, не существенны В рассматриваемом, алгоритме, поскольку при вычислении используется их свертка с базовыми функциями. Для удаления этих осцилляций производится интегрирование по логнормальному распределению с радиусом моды r₀ и шириной $\ln\sigma=0.1$. Полученные таким образом коэффициенты α_{λ} , и β_{λ} нормализованы на полный объем частиц V_t. Коэффициенты обратного рассеяния β_{532} , β_{1064} становятся практически неотличимы при $r_0>3$ мкм, что фактически определяет верхнюю границу размеров частиц, которые могут быть измерены, используя выбранный спектральный диапазон зондирующего излучения.

Обратная задача (2.1) оказывается особенно сложной, вследствие сильной зависимости характеристик рассеяния от комплексного коэффициента преломления. На рис.2.12 показаны также α_{λ} , и β_{λ} рассчитанные для m=1.35i.02. Увеличение мнимой части не меняет существенно коэффициент экстинкции для r>0 мкм. Для обратного рассеяния ситуация обратная: увеличение m_I приводит к уменьшению β в области больших размеров.

Интересно, что хотя β и уменьшается с ростом m_l, коэффициенты обратного рассеяния для разных длин волн различаются вплоть до r=10 мкм, позволяя, таким образом, восстанавливать более крупные частицы. На Puc.2.3 показаны β/V_t и α/V_t при λ =1064, как функции размера частицы для различных значений m_R. Изменение m_R от 1.35 до 1.5 увеличивает максимум β/V_t в 3 раза. С одной стороны, высокая чувствительность β к вариациям m_R и m_I создает базис для восстановления комплексного показателя преломления, с другой стороны, она является источником неустойчивости работы алгоритма. В отличие от β , коэффициент экстинкции слабо зависит m_R и практически не меняется при вариациях m_I. Комбинирование α и β позволяет достичь компромисса, то есть алгоритм становится достаточно стабилен, и в то же время, позволяет восстанавливать комплексный показатель преломления.



Рис.2.2. Зависимость коэффициентов экстинкции (а) и обратного рассеяния (б) от размера частицы для длин волн 355, 532 и 1064 нм. Коэффициент преломления m=1.35-i0 (сплошная линия) и m=1.35-i0.02 (точки). Коэффициенты α и β получены интегрированием функций Ми по логнормальному распределению с ln σ =0.1. Результаты нормализованы на полный объем частиц V_t. Вставка на рисунке (а) показывает $\beta(\lambda)$ для m=1.35-i.02 в диапазоне размеров 1-10 мкм.



Рис.2.3. Зависимость коэффициентов обратного рассеяния (сплошная линия) и экстинкции (точки) от размера частицы при λ =1064 нм и коэффициентах преломления m=1.35-i0, m=1.45-i0, m=1.5-i0. Результаты нормализованы на полный объем частиц V_t.

2.2.3. Восстановление распределения аэрозоля по размерам для различных наборов входных оптических данных

Для определения погрешностей определения различных параметров аэрозоля было проведено численное моделирование восстановления распределения логнормального аэрозоля ПО размерам. Погрешности оптических данных в процессе моделирования вводились случайным образом. Поэтому если предполагается, что погрешность измерения оптических данных составляет δ , то вводимая в g_i погрешность варьируется в диапазоне 0 - δ . Для радиуса $r_j = r_{\min} + j \left(\frac{r_{\max} - r_{\min}}{N} \right)$ вычислялись средние отклонения каждого найденного решения от исходного:

$$\boldsymbol{s}(\boldsymbol{r}_{j}) = \sqrt{\frac{1}{N_{sol}}\sum_{i=1}^{N_{sol}} (f_{i}(\boldsymbol{r}_{j}) - f_{mean}(\boldsymbol{r}_{j}))^{2}},$$

где N_{sol} - количество решений. Среднее, максимальное и минимальное решения определялись как:

$$f_{mean} = \frac{1}{N_{sol}} \sum_{i=1}^{N_{sol}} f_i(r_j),$$

$$f_{max}(r_j) = f_{mean}(r_j) + s(r_j),$$

$$f_{min}(r_j) = f_{mean}(r_j) - s(r_j).$$

Функции f_{max} и f_{min} позволяют определять рассеяние решений и оценивать погрешности восстановления.

Рис.2.4 демонстрирует эффективность использования критерия минимума невязки. Для восстановления исходного логнормального распределения с r₀=0.3 мкм, ln σ=0.15 мкм и N_t=1 использовались все три набора оптических данных. Исходный показатель преломления m=1.4-i0.02 в обратной процессе решения задачи предполагался неизвестным. Моделирование показывает, что при б=0 инверсия приводит к хорошим результатам для любых комбинаций α и β, и чем больше оптических данных мы используем, тем лучше восстанавливается исходное решение. Все три набора g_i позволяют восстанавливать средний радиус частиц и их концентрацию с точностью лучшей, чем 1%. Для объемной и поверхностной концентрации эта точность даже выше. Восстановленный показатель преломления совпадает с исходным.

Ситуация резко меняется при введении погрешностей в оптические данные. На рис.2.5 показано восстановление того же распределения, что и на рис.2.4, при 20% погрешности измерения оптических данных. Поскольку погрешности вводятся случайным образом, то результат инверсии будет различным при каждом запуске программы. Поэтому процедура нахождения решения была проведена 10 раз и результат представленный на рис.2.5 соответствует максимальному отклонению от исходного решения. Ошибки определения средних параметров максимальны для набора 3, когда используются шесть коэффициентов обратного рассеяния и два коэффициента экстинкции. Это означает, что нестабильность процедуры инверсии не может быть подавлена путем простого увеличения количества оптических данных. восстановления среднего радиуса составляет ~23%, числовой Ошибка концентрации ~73%, поверхностной ~10% и объемной ~8.5%. Для улучшения стабильности решения обратной задачи предложено использовать процедуру усреднения решений, основные принципы которой изложены в следующем разделе.



Рис.2.4. Распределение по размерам, восстановленное из набора I ($2\alpha+3\beta$, +), набора II ($2\alpha+5\beta$, •) и набора III ($2\alpha+6\beta$, ∇). Погрешности оптических данных $\delta=0$. Сплошная линия показывает исходное логнормальное распределение с $r_0=0.3$ мкм, $\ln\sigma=0.15$ и $n_t=1$. Исходный коэффициент преломления m=1.4-i0.04 предполагается неизвестным в процессе решения обратной задачи.



Рис.2.5. Распределение по размерам, восстановленное по данным из набора I (+), набора II (•) и набора III (о). Погрешности оптических данных δ =20%. Сплошная линия показывает исходное логнормальное распределение с теми же параметрами, что и на рис.2.4.

2.2.4. Процедура усреднения решений

Решение, соответствующее минимуму невязки, может содержать значительные осцилляции (решение недостаточно сглажено), что приводит к особенно значительным погрешностям, при вычислении числовой концентрации. Для минимизации этих осцилляций предлагается рассматривать весь набор решений в окрестности минимума невязки. Такое рассмотрение правомочно, поскольку некорректная задача может иметь множество решений, и каждый элемент f⁸ множества квазирешений, удовлетворяющий условию $\rho(f^{\delta}, g^{\delta}) \leq \delta$, должен рассматриваться, как приближенное решение задачи. Таким образом, описанный выше модифицированный Тихоновский алгоритм. используется нами для определения не отдельного решения, а класса решений, которые соответствуют оптическим данным в пределах точности измерений. Среднее значение элементов этого множества рассматривается нами, как решение (в определенном смысле), обратной задачи.

Рис.2.6 демонстрирует преимущества процедуры усреднения на примере восстановления распределения аэрозоля по шести коэффициентам обратного рассеяния и двум коэффициентам экстинкции. На нем показано решение, соответствующее минимуму невязки f^{δ} (ρ_{min}), и решение f^{δ} (ρ_{aver}), усредненное по интервалу [ρ_{min} , ρ_{max} =10%]. Этот интервал включает около 500 отдельных решений. Начальное распределение предполагается логнормальным с г₀=0.4 мкм, ln σ =0.3 и n_t=1, комплексный показатель преломления m=1.45-i0.02 в процедуре инверсии предполагался неизвестным. Погрешность оптических данных составляла 10%. Без процедуры усреднения решение f^{δ} (ρ_{min}) значительно отличается от исходного логнормального распределения, но после усреднения найденное решение f^{δ} (ρ_{aver}) хорошо соответствует исходному. Штриховые линии на рисунке показывают отклонение индивидуальных решений (f_{max} и f_{min}) от среднего значения f_{mean} . Процедура усреднения использует тот факт, что различные индивидуальные решения могут иметь осцилляции противоположных знаков (в том числе они могут быть и

отрицательными), и, после усреднения, среднее значение осцилляций становится значительно меньше, чем осцилляции отдельных решений. Следует также отметить, что даже для небольшого числа базовых функций полученное распределение достаточно гладко, поскольку для каждого значения r_{min} и r_{max} программа определяет новые положения базовых функций. Усреднение индивидуальных решений приводит к их сглаживанию.

Критерий выбора интервала усреднения иллюстрируется на рис.2.7, где количество решений N_{sol}, содержащихся внутри выбранного интервала, отображено в зависимости от величины этого интервала ρ_{max} . Концентрация решений внутри интервала [4%, 10%] максимальна, и выбранный интервал содержит около 10% от полного количества решений. Данный подход не требует какой-либо априорной информации для выбора интервала усреднения. Процедура усреднения стабильна, то есть результат слабо зависит от величины интервала усреднения. В рассматриваемом примере, увеличение интервала усреднения до [4%, 20%] практически не приводит к изменению вида решения. Величина интервала усреднения зависит от погрешностей измерения, количества базовых функций и типа ядер. Обычно р_{тах} выбирается таким, чтобы внутри него находилось ~10% от полного количества решений. На рис.2.7 также показаны погрешности определения числовой N_t, объемной V_t концентрации и среднего радиуса r_{mean} в зависимости от ρ_{max} . Погрешность определения r_{mean} составляет приблизительно 15% для р_{min}=4%, и она уменьшается до 1% при усреднении в интервале [4%, 10%]. Для больших р погрешность увеличивается до 10%, что подтверждает слабую зависимость среднего радиуса от ρ_{max} . Процедура усреднения особенно важна при определении числовой концентрации N_t, поскольку, как было показано в предыдущих исследованиях, этот параметр характеризуется максимальными $f^{\delta}(\rho_{\min}),$ погрешностями. Решение, соответствующее минимуму невязки приводит к 40% ошибке в определении концентрации, но после усреднения соответствующая погрешность уменьшается до 12%. Поверхностная и

объемная концентрации обычно восстанавливаются с лучшей точностью. В представленной реализации V_t и S_t ведут себя похожим образом, и погрешность в обоих случаях не превосходит 10%.



Рис.2.16. Решение, соответствующее минимуму невязки (•) и решение, полученное усреднением в интервале $2\% < \rho < 10\%$ (о). Погрешности оптических данных составляют 10%. Сплошная линия показывает исходное логнормальное распределение с $r_0=0.4$ мкм, $ln\sigma=0.3$ и $n_t=1$. В моделировании использовался набор 3, индекс преломления m=1.45-i0.02 предполагался неизвестным. Штриховые линии показывают отклонения индивидуальных решений от среднего значения.



Рис.2.17. Погрешности восстановления числовой (N_t) , объемной концентрации (V_t) , и среднего радиуса r_{mean} в зависимости от интервала усреднения ρ_{max} . Пунктирная линия показывает относительное количество решений N_{sol} внутри интервала усреднения. Вертикальная штрихпунктирная линия соответствует выбранному интервалу усреднения.

2.2.5. Определение показателя преломления аэрозоля

Одним из основных преимуществ регуляризационного подхода является то, что он не требует априорного знания показателя преломления. Напротив, указанный метод позволяет этот показатель определять. Возможность определения показателя преломления по данным многоволнового лидарного зондирования впервые была продемонстрирована в работах [32, 33, 133]. При восстановлении *m* комбинирование коэффициентов β и α становится необходимым условием, как это было показано в главе 1. Если коэффициент преломления известен, то использование одних только коэффициентов обратного рассеяния, обычно приводит к лучшему результату. Однако, как только вводятся вариации *m*, процедура инверсии становится неустойчивой. Стабилизирующая роль коэффициентов экстинкции иллюстрируется на рис.2.18, где исходное логнормальное распределение, с $r_0=0.15$ мкм, $ln\sigma=0.3$ и N_t=1, восстанавливается из различных наборов оптических данных. Количество коэффициентов обратного рассеяния в моделировании выбиралось равным 3, 6, 8, а число коэффициентов экстинкции было 0, 1, 2, 3, 4. Ошибка оптических данных составляла 10%, и при восстановлении исходного распределения использовалась процедура усреднения. Показатель преломления m=1.45-i0.02 считался неизвестным. Погрешности восстановления различных параметров аэрозоля сведены в таблицу 2.1. Погрешность определения числовой концентрации максимальна при использовании одних только коэффициентов обратного рассеяния, и эта погрешность уменьшается с 92% до 38% при добавлении одного коэффициента экстинкции. Оптимальное количество коэффициентов экстинкции два – три, и соответствующая погрешность при этом уменьшается до 16%. В процессе моделирования α выбиралось в широком спектральном диапазоне от 355 нм до 700 нм, и стабилизирующий эффект был обнаружен в каждом из этих случаев. Оптимальная работа алгоритма обычно достигалась в тех случаях, когда количество используемых коэффициентов обратного рассеяния в 2 – 3 раза превосходило количество

коэффициентов экстинкции.

При определении показателя преломления процедура усреднения использовалась так же, как и для остальных параметров аэрозоля. Однако при восстановлении показателя преломления интервал усреднения не должен выбираться слишком большим, поскольку для больших ρ_{max} показатель преломления m → (m_{max}+m_{min})/2. В этом случае процедура теряет смысл. Интервал усреднения, содержащий 10% от полного количества решений, обычно является хорошим компромиссом, позволяющим восстанавливать распределение по размерам и показатель преломления. Результаты численного моделирования восстановления показателя преломления представлены на рисунке 2.19. Исходное значение показателя преломления составляло m=1.45 – i0.02. Реальная и мнимая части показателя преломления отображены на рисунке в зависимости от ρ_{max} . В моделировании использовались три набора оптических данных ($2\alpha+3\beta$, $2\alpha+5\beta$, $2\alpha+6\beta$) и три типа ядер. Для выбранного примера ρ_{min} = 1% и ρ_{max} составляло 7%. В этом интервале содержалось около 10% от полного количества решений. Использование всех трех типов ядер приводило к близким результатам. Как видно из рис.2.19 восстановленный показатель преломления составлял 1.47 – i0.03 для всех типов ядер. Этот рисунок еще раз демонстрирует преимущества процедуры усреднения: решения соответствующие минимуму невязки различаются для различных наборов данных, однако после усреднения решения становятся близкими.



Рис.2.18. Иллюстрация стабилизирующей роли коэффициентов экстинкции. Задача решается для 8β (•), $8\beta + \alpha$ (o), $8\beta + 2\alpha$ (*), $8\beta + 4\alpha$ (+). Погрешности оптических данных 10%. Сплошная линия показывает исходное логнормальное распределение с $r_0=0.15$ мкм, $\ln\sigma=0.3$ и $n_t=1$. Индекс преломления m=1.45-i0.02 предполагался неизвестным.



Рис.2.19. Восстановление комплексного показателя преломления. Реальная (окружности, треугольники) и мнимая (квадраты) части отображены в зависимости от интервала усреднения ρ_{max} . Исходное значение показателя преломления m = 1.45-i0.02, погрешность оптических данных 10%. В инверсии использовались ядра числовой (NK) и объемной (VK) плотности, а также наборы оптических данных $2\alpha+3\beta$ (полые символы) и $2\alpha+6\beta$ (сплошные символы). Вертикальная штрихпунктирная линия соответствует выбранному интервалу усреднения.

2.2.6. Точность оценки параметров аэрозоля

Для оценки погрешности восстановления параметров аэрозоля можно рассмотреть среднеквадратичные отклонения индивидуальных решений. Однако погрешности при этом переоцениваются, поскольку после усреднения, как это показано на рис.2.17, реальная точность выше. Другой возможный подход, это проведение численного моделирования для различных размеров частиц и показателей преломления. Такое моделирование было проведено для наборов оптических данных, используемых в настоящем исследовании: $2\alpha + 3\beta$, $2\alpha+5\beta$, $2\alpha+6\beta$. Погрешности восстановления зависят от размера частицы. Они минимальны в центре интервала $\lambda_{\min} < r_{mean} < \lambda_{max}$ и возрастают у его краев. Погрешности входных оптических данных составляли 10%. Моделирование проводилось для логнормального распределения с lno=0.3 мкм, соответственно *r_{mean}* ≈ 1.1 *r_o*. Для оценки погрешности, процедура инверсии проводилась двадцать раз для каждого значения среднего радиуса, и максимальное отклонение, вычисленных параметров от исходных, принималось, как точность метода. Результаты моделирования для различных значений среднего радиуса и наборов оптических данных 1 и 2 сведены в таблицу 2.2. Результаты, полученные при использовании набора 3 близки, к соответствующим результатам для набора 2 и в таблице не показаны. Использование всех трех типов ядер приводило к близким величинам погрешностей. По результатам моделирования могут быть сделаны следующие выводы:

- Выбранный набор длин волн позволяет восстанавливать параметры аэрозоля в диапазоне 0.05 мкм<rmean<2 мкм ;

Использование трех, пяти и шести длин волн зондирующего излучения,
 что соответствует пяти, семи и восьми оптическим коэффициентам, приводит к
 сравнимым величинам погрешностей. Однако, для надежного восстановления
 вида распределения по размерам, желательно иметь не менее пяти длин волн. С
 другой стороны, увеличение количества коэффициентов обратного рассеяния с

шести до восьми не улучшало точность восстановления. Восстановление комплексного показателя преломления становится неустойчивым при r_{mean}<0.1 мкм. Для крупных частиц реальная часть показателя преломления восстанавливается с точностью ±0.05. Погрешность восстановления мнимой части составляет около 50%.

- Наиболее стабильным параметром, при решении оптической задачи, является поверхностная концентрация, погрешность определения которой не превосходит 10% для r_{mean}>0.1µm.

- Для исследованных мономодальных распределений использование различных типов ядер приводит к близким результатам. В предыдущих исследованиях предполагалось, что ядра числовой концентрации не могут быть использованы в процедуре инверсии. Однако предложенное в данном исследовании усреднение решений стабилизирует алгоритм и делает возможным использование, в том числе, и этого типа ядер. Вопрос о преимуществах различных типов ядер при восстановлении различных параметров аэрозоля будет подробно исследован в следующей главе

При 20% погрешности оптических данных, точность восстановления параметров, внутри 0.1мкм<r_{mean}<1мкм интервала, оставалась той же, и при δ =10%, но у краев интервала погрешности увеличивались примерно вдвое. Рамановский лидар, однако, позволяет обеспечить 10% точность измерения оптических коэффициентов аэрозоля, поэтому точности, приведенные в таблице 2.2, могут быть реализованы при работе с реальными лидарными данными.
| | 8β | 8α | 8β+α | 8β+2α | 8β+4α | 6β+2α | $3\beta+2\alpha$ |
|-------------------|-----|-----|------|-------|-------|-------|------------------|
| r _{mean} | 18% | 13% | 2% | 1% | 8% | 1% | 1% |
| r _{eff} | 14% | 1% | 1.4% | 2% | 1% | 3% | 3% |
| N _t | 92% | 58% | 38% | 16% | 29% | 18% | 13% |
| St | 11% | 29% | 20% | 14% | 15% | 16% | 18% |
| Vt | 6% | 29% | 20% | 14% | 14% | 19% | 20% |

Таблица 2.1. Погрешности восстановления параметров аэрозоля для

различных комбинаций коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции.

Таблица 2.2. Погрешности є оценки параметров аэрозоля для лидара на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники и для лидара на основе этого же лазера в комбинации с водородным ВКР преобразователем. $(3\beta+2\alpha/5\beta+2\alpha)$.

| г _{о,} МКМ | $\epsilon_{\rm Rmean}, \%$ | ϵ_{Reff} ,% | $\epsilon_{\rm Nt,}$ % | ϵ_{St} % | ϵ_{Vt} % | ε _{mR} | $\epsilon_{mI,}$ % |
|----------------------------|----------------------------|-----------------------------|------------------------|-------------------|-------------------|-----------------------|--------------------|
| 0.1 | 20 / 20 | 20 / 10 | 70 / 50 | 55 / 40 | 50 / 35 | $\pm 0.08 / \pm 0.07$ | 50 / 50 |
| 0.5 | 20 / 15 | 15 / 15 | 45 / 30 | 10 / 10 | 20 / 20 | $\pm 0.07 / \pm 0.05$ | 50 / 50 |
| 1 | 40 / 30 | 60 / 55 | 60 / 50 | 10 / 10 | 80 / 60 | ±0.05 / ±0.05 | 50 / 50 |

§2.3. Восстановление бимодального распределения аэрозоля по размерам

Рассмотренный в предыдущем разделе алгоритм восстановления параметров аэрозоля по данным лидарного зондирования не требует априорных предположений о виде распределения аэрозоля по размерам. Моделирование, тем не менее, проводилось только для одномодового распределения. В распределении по размерам реального аэрозоля, как правило, содержатся две моды: мелкодисперсная и крупнодисперсная. Значительная величина крупнодисперсной моды наблюдаются при смешении морского аэрозоля с аэрозолем индустриального происхождения, при переносе пылевых частиц, а также при гигроскопическом росте аэрозоля.

Проблема обнаружения частиц с размерами ~10 мкм осложняется еще и тем фактом, что максимальная из доступных длин волн - 1.064 мкм, а значит ядра интегральных уравнений, в соответствующей обратной задаче, малочувствительны к вариациям частиц такого размера. Поэтому необходимо ответить на вопрос, может ли крупнодисперсная мода распределения быть оценена при использовании многоволнового лидара на основе Nd:YAG, и какова ожидаемая погрешность этой оценки.

При моделировании восстановления одномодового распределения по размерам не было обнаружено существенного влияния типов ядер на результат инверсии. В данном разделе аналогичное моделирование будет проведено для случая бимодального распределения. Наряду с традиционными ядрами интегрального уравнения (числовыми, поверхностными, объемными) будут использованы ядра более высокого порядка.

2.3.1. Выбор исходных параметров при моделировании

При проведении моделирования бимодальное распределение записывалось в форме:

$$\frac{dn(r)}{d\ln(r)} = \sum_{i=f,c} \frac{N_{ii}}{(2p)^{1/2} \ln s_i} \exp\left[-\frac{(\ln r - \ln r_i^n)^2}{2(\ln s_i)^2}\right].$$
(2.17)

Член N_{ti} соответствует полному количеству частиц в i-той моде, r_iⁿ -

радиус соответствующий i-той моде, a lno_i – ее ширина. Индекс *i*=f.c соответствует мелкодисперсной и крупнодисперсной фракциям. Аналогично, быть распределение по размерам может записано И лля объемной концентрации аэрозоля. Последнее предпочтительнее, поскольку в объемном представлении обе моды становятся сопоставимы по величине вклада и их удобно различать. Оба распределения dn(r)/dlnr и dv(r)/dlnr имеют одно и то же стандартное отклонение о, а соотношения между радиусами и концентрациями каждой из мод для этих двух представлений даются соотношениями [141]:

$$r_i^{v} = r_i^{n} \exp[3(\ln\sigma)^2]$$
 (2.18)

$$V_{ii} = N_{ii} \frac{4}{3} p(r_i^n)^3 \exp[\frac{9}{2} (\ln s)^2]$$
(2.19)

Для моделирования бимодального восстановления распределения необходимо типы аэрозолей рассмотреть различные с различными оптическими свойствами. Обычно, в тропосфере различают четыре основных типа аэрозолей: индустриальные аэрозоли, продукты горения биомассы, И аэрозоль морского происхождения. Таблица2.3 пустынная пыль иллюстрирует вариацию параметров аэрозоля для этих четырех типов на основе данных, собранных глобальной сетью солнечных радиометров (AERONET) [142] в различных регионах мира. Приведенные в таблице результаты, позволяют определить область размеров, а также относительные концентрации частиц в модах, которые необходимо использовать при проведении моделирования.

Модальные радиусы *r*^{*n*}, также как и соответствующие показатели преломления, достаточно сильно варьируются для каждого из этих типов аэрозолей. Главное отличие между ними определяется отношением объемов мелко и крупнодисперсных фракций. Для индустриального аэрозоля мелкодисперсная фракция превалирует, в то время как для пустынного и морского аэрозоля, объем крупнодисперсной моды значительно больше.

Детальное описание параметров аэрозолей, полученных в процессе локальных измерений, представлено также в монографии [143] и в

специальных выпусках посвященных различным международным экспериментам: Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational Experiment [144, 145], Aerosol Characterization Experiment 2 [146], Indian Ocean Experiment [147], Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment [148, 149], и Lindenberg Aerosol Characterization Experiment [150].

Хотя распределения по размерам пустынного и морского аэрозоля схожи между собой, для лидарных измерений существует одно принципиальное отличие: морской аэрозоль может быть рассмотрен, как сферический в большинстве ситуаций, в то время как частицы пустынного аэрозоля имеют нерегулярную форму. В данном исследовании рассматриваются лишь частицы сферической формы. В реальных лидарных измерениях присутствие пылевого деполяризации аэрозоля регистрируется ПО лидарного сигнала, И В соответствующих слоях восстановление параметров аэрозоля не проводится, вследствие низкой достоверности получаемых результатов.

[142]. Основываясь на результатах представленных В будем рассматривать два типа распределений, и обозначать их как тип I и тип II. Тип I имеет следующие параметры: $r_f^v = 0.15$ мкм, $\ln \sigma_f = 0.4$, $r_c^v = 2.7$ мкм, $\ln \sigma_c = 0.6$, V_{tf}/V_{tc}=2. В этом случае мелкодисперсная мода является доминирующей, и распределение соответствует индустриальному аэрозолю и продуктам горения биомассы. Тип II имеет те же параметры, за исключением V_{tf}/V_{tc}=0.2, то есть основная часть аэрозоля содержится в крупнодисперсной моде. Данное распределение соответствует морскому аэрозолю. Показатель преломления, как правило, выбирался m=1.45-i0.015 для обеих мод. В процессе моделирования будут также рассмотрены и другие m, а также ситуации, когда показатели преломления частиц в обеих модах различаются.

Проведенное моделирование имело целью выяснить, как стабильность восстановления параметров бимодального распределения зависит от погрешности оптических данных, от типа используемых ядер, количества оптических коэффициентов, количества базовых функций, и как процедура усреднения работает в этом случае. Моделирование проводилось, главным

образом для набора данных $3\beta+2\alpha$, поскольку нашей целью было продемонстрировать, что даже такой упрощенный набор позволяет оценивать параметры бимодального распределения аэрозоля.

В распределениях представленных в таблице 2.3 максимум крупнодисперсной моды достигается при $r_0 \approx 2$ мкм, как видно из рис.2.2, вклад этой моды в общий коэффициент рассеяния будет различаться для длин волн 355 и 1064 нм. Вычисления, проведенные для аэрозолей первого типа с m=1.45і0.015, показывают, что вклад крупнодисперсной моды в полное рассеяние составляет 18% для 1064 нм и 2.5% для 355 нм. Метод перестает работать, когда вклад этой моды на длине волны 1064 нм становится меньше погрешности измерения, которая в случае рамановского лидара составляет ~10%. Для выбранного распределения это соответствует отношению V_{tf}/V_{tc}~4. Коэффициенты экстинкции на длинах волн 355 и 532 нм сильно различаются для малых частиц, эти коэффициенты определяют нижнюю границу диапазона частиц, размеры которых еще можно восстанавливать. Для размеров указанного набора длин волн эта величина составляет ~ 0.05 мкм.

Для бимодального распределения по размерам зависимость рассеивающих свойств аэрозоля от показателя преломления становится более сложной, по сравнению с одномодовым случаем. На рис.2.20 приведена зависимость коэффициентов α и β от m_R для λ =355, 532 и 1064; расчеты проводились для аэрозоля второго типа с N_t=10³ cm⁻³. Коэффициент обратного рассеяния для 1064 нм может быть больше или меньше соответствующей величины для 532 нм в зависимости от m_R, в то время как коэффициенты экстинкции для 355 и 532 нм, изменяются монотонно. Таким образом, комбинация α и β должна стабилизировать решение обратной задачи и в случае бимодального распределения аэрозоля по размерам.



Рис.2.20. Зависимость коэффициента обратного рассеяния и экстинкции на длинах волн 355, 532, 1064 нм от реальной части показателя преломления для аэрозоля второго типа. Мнимая часть показателя преломления m_I=0.

Таблица 2.3. Типичные параметры бимодального распределения по размерам для различных типов аэрозоля; r_{f}^{v} соответствует радиусу мелкодисперсной моды, r_{c}^{v} – радиус крупнодисперсной моды, $\ln \sigma_{f}$ и $\ln \sigma_{c}$ – ширины мод. V_{f}/V_{c} –отношение объема частиц в мелко и крупнодисперсной модах; m_{R} и m_{I} – реальная и мнимая части показателя преломления.

| Параметры | Индустриальный | Продукты горения | Морской и пустынный |
|-----------------------|----------------|------------------|---------------------|
| аэрозоля | аэрозоль | биомассы | аэрозоль |
| $r_{f}^{v}(\mu m)$ | 0.14-0.18 | 0.13-0.16 | 0.12-0.16 |
| $r_{c}^{v}(\mu m)$ | 2.7-3.2 | 3.2-3.7 | 1.9-2.7 |
| $ln\sigma_{f}$ | 0.38-0.46 | 0.4-0.47 | 0.4-0.53 |
| $\ln \sigma_c$ | 0.6-0.8 | 0.7-0.8 | 0.6-0.7 |
| $V_{\rm f}/V_{\rm c}$ | 0.8-2.0 | 1.3-2.5 | 0.1-0.5 |
| m _R | 1.4-1.47 | 1.47-1.52 | 1.36-1.56 |
| mI | 0.003-0.015 | 0.01-0.02 | 0.0015-0.003 |

2.3.2. Восстановление бимодального распределения по размерам в отсутствие погрешностей измерения.

В качестве первого шага необходимо проверить возможность восстановления бимодального распределения в отсутствие погрешностей в измерении оптических данных. На рис.2.21 показаны результаты инверсии наборов оптических данных $3\beta+2\alpha$ и $6\beta+2\alpha$ для первого и второго типа аэрозоля соответственно. Для каждой из этих конфигураций, обратная задача решалась для m=1.45-i0.015 and m=1.65-i0.015, чтобы выявить возможное влияние *m* на результат инверсии. В алгоритме использовались ядра объемной плотности и решения усреднялись в окрестности минимума невязки. Критерий выбора интервала усреднения для случая бимодального распределения, будет детально разобран ниже.

Интересно, что параметры аэрозоля, восстановленные из набора данных $6\beta+2\alpha$, характеризуются теми же погрешностями, что и для набора $3\beta+2\alpha$. Таким образом, простое увеличение количества коэффициентов обратного рассеяния в спектральном диапазоне 0.355 – 1.064 мкм не приводит к значительному улучшению восстановления крупнодисперсной моды. Соответствующее улучшение быть достигнуто может только при волн. К сожалению, использовании излучения с большими длинами вычисление β с точностью ~10% из лидарных данных полученных в ИК лиапазоне сопряжено со значительными трудностями. Кроме того, при использовании широкого спектрального диапазона, становится необходимым учет спектральной зависимость показателя преломления.

Восстановление параметров распределения по размерам для аэрозоля второго типа оказывается более стабильным, потому что в этом случае вклад крупнодисперсной моды в обратное рассеяние на длине волны λ=1064 составляет 70% при m=1.45-i0.015. Восстановленное распределение практически совпадает с исходным для обоих значений показателя

преломления. Для аэрозоля первого типа воспроизведение крупнодисперсной моды значительно хуже, поскольку ее вклад в обратное рассеяние всего лишь 18% (для того же значения *m*). Однако для первого типа аэрозоля основная доля объема (массы) содержится в мелкодисперсной моде, а потому неустойчивость восстановления крупнодисперсной моды не приводит к серьезным погрешностям в оценке параметров аэрозоля.

Ha рис.2.22 показана наиболее трудная для восстановления распределения ситуация, обе сравнимы когда моды ПО величине. Соответствующее распределение получено из аэрозоля второго типа: при неизменной крупнодисперсной моде, радиус и ширина мелкодисперсной моды увеличены до $r_f^v = 0.41$ мкм и $\ln \sigma_f = 0.65$. В этом случае, вклад крупнодисперсной моды в полное рассеяние на длине волны 1064 нм составляет 28%.

Для ситуации, когда показатель преломления m=1.45-i0.015 предполагается известным, исходное распределение хорошо воспроизводится для обоих наборов данных: $3\beta+2\alpha$ и $6\beta+2\alpha$. Однако, если *m* не известно априори, погрешности восстановления крупнодисперсной моды сильно увеличиваются. Погрешности оценки N_t, S_t, V_t и r_{eff} для $3\beta+2\alpha$ ($6\beta+2\alpha$) данных составляют 30% (37%), 3% (8%), 9% (16%) и 11% (7%) соответственно.



Рис.2.21 Восстановление распределения по размерам для аэрозоля первого (а) и второго (б) типа. Моделирование проводилось для 3β+2α (штрихи, пунктир) и 6β+2α (штрих-пунктир) наборов данных. Показатели m=1.45-i0.015 (штрихи, штрих-пунктир) m=1.65-i0.015 преломления И (пунктир) предполагались неизвестными, погрешности в оптических данных Сплошная отсутствуют. бимодальное линия показывает исходное распределение.



Рис.2.22. Распределение по размерам, восстановленное при известном (штрихи) и неизвестном (пунктир, штрих-пунктир) показателе преломления m=1.45-i0.015. Моделирование проводилось для $3\beta+2\alpha$ (штрихи) и $6\beta+2\alpha$ (пунктир, штрих-пунктир) наборов оптических данных. Погрешности в оптических данных отсутствуют. Сплошная линия показывает исходное бимодальное распределение. Результаты, полученные при неизвестном *m* и наборе данных $3\beta+2\alpha$ близки к результатам, полученным для набора $6\beta+2\alpha$.

2.3.3. Усреднение решений для случая бимодального распределения по размерам.

Погрешности измерения оптических ланных приводят К неустойчивости решения обратной задачи. Дополнительная стабилизация процедуры достигается при усреднении решений вблизи минимума невязки ρ_{min}. В предыдущем разделе было продемонстрировано, что для одномодового распределения погрешность восстановления параметров слабо зависит от выбора интервала усреднения [ρ_{min} , ρ_{max}]. Обычно, усреднение проводилось внутри интервала, содержащего около 10% от полного количества решений. В случае бимодального распределения, включающего частицы больших корректный выбор интервала усреднения становится более размеров, критичным. Для корректного выбора ρ_{max} был разработана специальная методика, основанная на рассмотрении невязки усредненного решения р^{аve}, определяемая как:

$$\mathbf{r}^{ave} \equiv \frac{1}{N_{opt}} \sum_{i} \left| \frac{g_{i} - g_{i}^{ave}}{g_{i}} \right|$$

Величины g_i соответствуют исходным оптическим данным, а g_i^{ave} – данные, вычисленные из решений усредненных на интервале [ρ_{min} , ρ_{max}].

Рис.2.23 иллюстрирует выбор интервала усреднения, на основе невязки $\rho^{\text{ave}}.$ Величины $N_t,~S_t,~V_t,~r_{\text{eff}},$ и ρ^{ave} показаны в зависимости от выбранного интервала усреднения р_{тах}. Вычисления проводились для аэрозоля второго типа с m=1.45-i0.01, используя ядра поверхностной и объемной плотности. Погрешности определения оптических данных (3β+2α) составляют 10%. На основе результатов, полученных из многократно проведенного моделирования, можно заключить, что наилучшая точность восстановления параметров достигается для величин ρ_{max} , при которых невязка ρ^{ave} становится стабильной, (она может осциллировать около некоторого постоянного уровня). Выбираемый интервал усреднения определяется величиной ρ_{max} , при превышении которой *р*^{аve} начинает быстро возрастать.

Рис.2.23а показывает зависимость ρ^{ave} от ρ_{max} , вычисленную с использованием ядер объемной плотности. Величина ρ^{ave} при $\rho_{max} > 14\%$ быстро возрастает, в соответствие с вышесказанным, мы выбираем эту величину в качестве границы интервала усреднения. После усреднения погрешность определения параметров значительно уменьшается. Для эффективного радиуса погрешность уменьшается с 105% до 27%, а погрешность определения объемной плотности уменьшается с 80% до 16%. Числовая и поверхностная концентрации, для рассматриваемого примера, менее чувствительны к выбору интервала усреднения. Моделирование, проведенное для других наборов данных (с другими распределениями погрешностей между оптическими коэффициентами) показывает, что N_t и S_t, также могут сильно зависеть от ρ_{max} . Хотя минимальные погрешности оценки различных параметров могут достигаться при различных ρ_{max} , интервал усреднения, выбранный описанным методом, как правило, позволяет достичь разумного компромисса.

На рис.2.236 показаны те же зависимости, но вычисленные с использованием ядер поверхностной плотности. Зависимость усредненной невязки р^{аve} от р_{max} в этом случае становится более осциллирующей, что усложняет выбор интервала усреднения. Для рассмотренного набора данных восстановление параметров аэрозоля с использованием ядер поверхностной плотности характеризуется большими погрешностями, по сравнению с результатами для ядер объемной плотности, приведенными на рис.2.23а. Этот результат, тем не менее, зависит от распределения погрешностей измерения между оптическими коэффициентами, и в ряде случаев ядра поверхностной дополнительная плотности оказываются предпочтительней. Некоторая стабилизация процедуры инверсии наблюдается, также при использовании обеих типов ядер и усреднении получаемых результатов.

На рис.2.24 показаны зависимости величины реальной и мнимой частей показателя преломления в зависимости от интервала усреднения для того же набора данных, что и на рис.2.23. Восстановленные значения показателя преломления для обоих типов ядер оказываются близкими: m=1.43-i0.0125 и

m=1.44-i0.0125 для ядер объемной и поверхностной плотности соответственно.

Как видно из рисунка, значение *m* оказывается завышенным, если выбирается только одно решение, соответствующее минимуму невязки, однако после усреднения значения *m* оказываются близкими к исходной величине 1.45-i0.01.

Рис.2.25 иллюстрирует процедуры влияние усреднения на восстановление распределения по размерам. На рисунке приведено решение, соответствующее минимуму невязки, усредненное решение и исходное бимодальное распределение. Набор данных тот же, что и на рис.2.23, среднеквадратичное пунктирная ЛИНИЯ показывает отклонение индивидуальных решений от их среднего значения. Крупнодисперсная мода в решении, соответствующем минимуму невязки, значительно превосходит соответствующую моду исходного распределения, однако после усреднения эти моды становятся близкими.



Рис.2.23. Погрешности определения числовой N_t , поверхностной S_t , объемной V_t концентрации, эффективного радиуса r_{eff} и усредненной невязки ρ^{ave} в зависимости от интервала усреднения ρ_{max} . При инверсии набора данных $3\beta+2\alpha$ использовались ядра объемной (а) и поверхностной (б) плотности. Погрешность оптических данных составляет 10%. Вертикальная пунктирная линия показывает выбранный интервал усреднения.



Рис.2.24. Реальная (квадраты) и мнимая (окружности) части показателя преломления, вычисленные с использованием ядер объемной (сплошные символы) и поверхностной (полые символы) плотности в зависимости от интервала усреднения ρ_{max}. Исходный показатель преломления m=1.45-i0.01. Вертикальная пунктирная линия показывает выбранный интервал усреднения.



Рис.2.25. Эффект усреднения решений. Показаны: решение соответствующее минимуму невязки (штрих-пунктир), усредненное решение (штрихи), И исходное бимодальное распределение (сплошная линия). Пунктирная показывает среднеквадратичные линия отклонения индивидуальных решений от средней величины.

2.3.4. Влияние типов ядер интегрального уравнения и количества базовых функций на стабильность решения обратной задачи

В данном разделе приведены результаты исследования стабильности решения обратной задачи, при использовании различных типов ядер интегральных уравнений (2.1, 2.2). В моделировании использовались ядра числовой, поверхностной и объемной плотности, а также ядра четвертого (K_{i4}) и пятого (K₁₅) порядков. Набор оптических данных 3β+2α для аэрозоля второго типа содержал погрешности δ=20%. В таблице 2.4 приведены погрешности восстановления параметров аэрозоля для различных типов ядер и трех реализаций процедуры инверсии. Результаты, полученные в процессе каждой из реализаций, значительно отличаются друг от друга. Это связано с тем, что результат существенно зависит от распределения погрешностей между оптическими коэффициентами, и этот факт необходимо иметь в виду при анализе результатов моделирования. Обычно, наиболее точные оценки числовой концентрации получаются при использовании ядер низкого порядка (числовой либо поверхностной плотности), в то время как объемная концентрация лучше восстанавливается при использовании ядер более высокого порядка (объемной плотности и К_{i4}). Использование ядер пятого порядка приводило к деградации точности.

Решение, соответствующее минимуму невязки И, полученное С использованием ядер числовой плотности, значительно отличается OT исходного распределения и содержит осцилляции. Однако после усреднения точность оценки параметров становится сопоставимой с результатами, полученными для ядер поверхностной и объемной плотности, хотя вид распределения воспроизводится хуже. Кроме того, результаты, соответствующие ядрам числовой концентрации более чувствительны к выбору интервала усреднения. Вследствие этого, данный вид ядер не использовался для обработки результатов регулярных измерений. Наиболее предпочтительными в использовании оказываются ядра поверхностной и

объемной плотности. Точность повышается, когда используются оба типа ядер и соответствующие результаты усредняются. Тип ядер практически не влияет на точность восстановления комплексного показателя преломления. Отклонения m_R от начального значения не превосходили ± 0.05 , а для мнимой части m_I эта погрешность не превосходила 50%.

Ha рис.2.26 приведены распределения аэрозоля по размерам, восстановленные для пяти различных типов ядер и погрешности оптических данных 20%. Общая тенденция – это увеличение среднего радиуса r₀ крупнодисперсной моды с увеличением порядка ядра. В рассмотренном примере, использование ядер высокого порядка улучшает воспроизведение крупнодисперсной моды, в то время как восстановление мелкодисперсной моды ухудшается. В других реализациях, эта эволюция не всегда, столь отчетливо выражена, как на рис.2.26, хотя общая тенденция сохраняется. в результате проведенного моделирования мы можем Таким образом, наиболее удобными в использовании являются заключить. что ядра поверхностной и объемной плотности, позволяющие достичь компромисса в восстановлении крупно и мелкодисперсной мод.

При проведении численного моделирования исследовалась также зависимость стабильности работы алгоритма от количества используемых базовых функций. Моделирование показало, что лог-эквидистантное расположение базовых функций всегда приводит к лучшим результатам, по сравнению с их равномерным распределением. Поэтому все приведенные ниже результаты были получены для лог-эквидистантного расположения базовых функций.

На рис.2.27 показаны результаты восстановления распределения dv(r)/dlnr аэрозоля второго типа для 5, 8, и 12 базовых функций из набора данных 3β+2α. При восстановлении использовались ядра объемной плотности. Комплексный показатель преломления m=1.45-i0.01 предполагался неизвестным. Полученные решения усреднялись, как это было описано в предыдущем разделе. Интервал усреднения определялся для каждого набора

базовых функций. При отсутствии погрешностей в оптических данных, результаты, полученные для различного количества базовых функций, практически не отличались, и восстановленные распределения были близки к исходному. Различия, однако, появляются при введении в оптические данные 10% погрешности. Как видно из рис. 2.27, увеличение количества базовых функций N_{bf} не улучшает ситуацию. Наилучшая точность достигается, когда количество базовых функций совладает с количеством оптических данных. Для $N_{bf} = 5$ точность определения V_t, S_t и N_t составляет 12%, 20%, и 52%, соответственно. Точность определения тех же параметров для $N_{\rm bf}=8$ составляет 13%, 32%, и 110%. При N_{bf} = 12 точность ухудшается до 18%, 45%, и 150%. Моделирование для аэрозоля первого типа приводит к тем же результатам: восстановление оптимально, когда N_{bf} = N_{opt}. Как видно из рисунка, даже при небольшом количестве базовых функций, восстановленные распределения получаются достаточно гладкими. Это обусловлено двумя факторами. Во-первых, малое количество базовых функций накладывает ограничение на тип найденных решений: чем меньше количество базовых функций, тем меньше степеней свободы в инверсии. Во вторых, хотя малое базовых функций количество позволяет проводить лишь грубую аппроксимацию распределения, этот эффект компенсируется эффектом решений. усреднения множества что приводит К сглаживанию восстановленного распределения.



Рис.2.26. Распределение по размерам, восстановленное при использовании ядер числовой (NK), поверхностной (SK), объемной (VK)плотности, а также ядер четвертого (К-4) и пятого (К-5) порядков. Сплошная Погрешность линия показывает исходное бимодальное распределение. оптических данных 20%.



Рис.2.27. Распределение по размерам, восстановленное с использованием различного количества базовых функций: 5 (штрих-пунктир), 8 (штрихи) и 12 (пунктир). Сплошная линия показывает исходное распределение. Набор оптических данных 3β +2 α содержит 10% погрешность. Комплексный показатель преломления предполагался неизвестным.

2.3.5. Погрешности восстановления основных микрофизических параметров аэрозоля.

В процессе моделирования погрешности в оптические данные вводятся случайным образом. Для оценки погрешности метода процедура инверсии повторялась 10 раз для каждого типа аэрозоля. Максимальная ошибка, полученная в этих десяти реализациях, принималась как погрешность метода. Моделирование проводилось с использованием ядер поверхностной и объемной плотности. В таблице 2.5 приводятся результаты, полученные при использовании $3\beta+2\alpha$ набора данных и 10% погрешности определения оптических коэффициентов. Аэрозоль второго типа характеризуется более высокой погрешностью определения объемной концентрации и эффективного радиуса по сравнению с первым типом. Это обусловлено тем, что для аэрозоля второго типа основной объем частиц приходится на крупнодисперсную моду, а ее восстановление менее стабильно по сравнению с мелкодисперсной модой. Напротив, погрешности восстановления числовой И поверхностной концентрации меньше для аэрозоля второго типа. Усреднение величин, получаемых с использованием обоих типов ядер, ведет к дополнительному уменьшению погрешностей, что особенно заметно при вычислении N_t. Если предварительная информация о типе аэрозоля отсутствует, то погрешности восстановления параметров частиц оцениваются как: $\varepsilon_{Nt}=70\%$, $\varepsilon_{St}=40\%$, $\varepsilon_{\rm Vt}=45\%$. $\epsilon_{reff}=40\%$. Точность определения комплексного показателя преломления не зависит от типа ядра. Для реальной части m_R погрешность не превышает ± 0.05 , а для мнимой части m_I погрешность менее 50%.

На рис.2.18 приведены вариации распределения по размерам, полученные в результате десяти реализаций процедуры инверсии для первого и второго типа аэрозолей. Набор оптических данных 3β+2α содержал 10% погрешность. Для аэрозоля второго типа параметры крупнодисперсной моды могут быть оценены, в то время как для первого типа, рассеяние получаемых решений слишком велико для надежной оценки параметров моды.

Как уже отмечалось выше, критерий выбора интервала усреднения для бимодального распределения был модифицирован. Однако этот критерий работает также и в случае одномодового распределения, что иллюстрируется рис.2.29. Моделирование проводилось для тех же параметров, что и на рис.2.30.

Восстановление комплексного показателя преломления становится проблематичным для частиц с размерами превосходящими ~2 мкм, потому что коэффициенты α и β для различных *m* становятся близкими, как это видно из рис.2.3. Для оценки погрешности восстановления размеров таких частиц, было проведено моделирование, В котором использовались параметры крупнодисперсной моды: $r_c^{v}=5.3$ мкм и $\ln\sigma_c=0.6$. Мелкодисперсная мода была та же, что и для аэрозоля второго типа. Эффективный радиус такого распределения составлял 2.25 мкм. Результаты, полученные для 3β +2 α набора, представлены на рис.2.30. Моделирование проводилось при *m*=1.35-i0, что соответствует аэрозолю с высоким содержанием воды либо случаю чисто водяных облаков. Для указанного распределения коэффициенты обратного рассеяния на длинах волн 532 и 1064 нм отличаются менее чем на 5%, поэтому даже в отсутствие погрешностей измерения, неопределенность в определении параметров аэрозоля становится значительной. Восстановленный показатель преломления m=1.44-i0 оказывается выше исходного. Погрешности определения N_t, S_t, V_t и r_{eff} составляют 29%, 15%, 34% и 27% соответственно. При 10% погрешности В введении оптические данные, указанные неопределенности становятся еще больше. Для приведенного примера они составляют 51%, 15%, 57%, 51%, соответственно, а восстановленный показатель преломления m=1.51-i0.

Точность решения обратной задачи увеличивается, если показатель преломления известен априори. Для известного m и того же набора данных с 10% погрешностями, соответствующие неопределенности становятся равными 68%, 14%, 14%, 24%, то есть точность определения крупнодисперсной моды значительно улучшается.

Интересно отметить, что с увеличением мнимой части m точность восстановления улучшается. Этот результат можно было предвидеть, в процессе анализа результатов представленных на рис.2.2, показывающих, что для m_I=0.02 коэффициенты обратного рассеяния на длинах волн 532 и 1064 нм становятся различными. Основным критерием того, что решение обратной задачи все еще достоверно, является отношение $\frac{|b_{532} - b_{1064}|}{b_{532}}$, которое должно превосходить погрешность измерения.

Таблица 2.4. Погрешности оценки числовой (N_t), поверхностной (S_t), объемной (V_t) концентрации и эффективного радиуса (r_{eff}) полученные с использованием ядер числовой (NK), поверхностной (SK), объемной (VK) плотности, а также ядер четвертого (K-4) и пятого (K-5) порядка для трех реализаций процедуры инверсии. Погрешности измерения оптических данных (3β+2α) составляют 20%.

| Тип ядер | | Nt ,% |) | | St ,% | | | Vt ,% | 6 | | reff, | % |
|----------|-----|-------|-----|----|-------|----|----|-------|----|----|-------|----|
| NK | 55 | 35 | 60 | 15 | 10 | 10 | 25 | 30 | 20 | 35 | 20 | 35 |
| SK | 30 | 70 | 30 | 15 | 35 | 10 | 20 | 35 | 40 | 30 | 50 | 45 |
| VK | 50 | 100 | 40 | 30 | 35 | 10 | 20 | 30 | 30 | 35 | 50 | 10 |
| K-4 | 140 | 160 | 120 | 50 | 60 | 30 | 10 | 30 | 25 | 40 | 55 | 15 |
| K-5 | 200 | 210 | 180 | 60 | 75 | 50 | 10 | 55 | 15 | 50 | 75 | 40 |

Таблица 2.5. Погрешности оценки параметров на основе 3β+2α набора оптических данных с 10% погрешностями для первого и второго типа аэрозоля. В таблице приведены результаты, полученные с использованием ядер объемной плотности (VK), а также среднее результатов использования ядер объемной и поверхностной плотности (VK+SK).

| Распределение | N _t ,% | | S _t ,% | | V _t ,% | | r _{eff} ,% | | m _R | m _{I,} % |
|---------------|-------------------|-----|-------------------|-----|-------------------|-----|---------------------|-----|----------------|-------------------|
| | VK | VK | VK | VK | VK | VK | VK | VK | | |
| | | +SK | | +SK | | +SK | | +SK | | |
| Тип I | 90 | 70 | 50 | 40 | 25 | 25 | 40 | 40 | ±0.05 | 50 |
| Тип II | 60 | 40 | 17 | 15 | 45 | 45 | 55 | 40 | ±0.05 | 50 |



Рис.2.28. Восстановление распределения аэрозоля по размерам для десяти реализаций. Вычисления проводились для аэрозоля тип I (а) и тип II (б) с использованием 3β+2α входных данных. Погрешность измерений 10%.



Рис.2.29. То же, что и на рис.2.28, но для одномодового распределения по размерам.



Рис.2.30. Восстановление распределения по размерам для показателей преломления m=1.35-i0 (пунктир, штрих, штрих-пунктир-пунктир) и m=1.35-i0.02 (штрих-пунктир, укороченный пунктир). Вычисления проводились в отсутствие погрешностей (штрих-пунктир, штрих), и при погрешности 10% (укороченный пунктир, пунктир, штрих-пунктир-пунктир) для 3β+2α набора данных. Сплошная линия показывает исходное распределение. Штрих-пунктир-пунктир-пунктир соответствует 10% погрешности и известному m=1.35-i0.

2.3.6. Восстановление распределения по размерам в ситуации, когда показатели преломления частиц в каждой из мод могут различаться

До сих пор при проведении моделирования предполагалось, что крупно и мелкодисперсная моды имеют одинаковый показатель преломления, хотя для реального аэрозоля они могут различаться. Этот эффект особенно значителен для аэрозоля второго типа, когда вклад крупнодисперсной моды в полное Рис.2.31 оказывается существенным. иллюстрирует рассеяние влияние различия показателей преломления частиц в двух модах на восстановление распределения по размерам. Распределения восстанавливаются из 3β+2α набора данных при $\delta=0$ и различных соотношениях m_f и m_c . Для $m_f=1.55-i0$ и m_c=1.35-i0 крупнодисперсная мода оказывается сдвинутой в область больших размеров. Этот сдвиг становится больше при увеличении мнимой части m_f от 0 до 0.02. В ситуации, когда $m_c > m_f$, то есть $m_f=1.35-i0$ и $m_c=1.55-i0$ восстановленное распределение сдвигается в сторону меньших размеров.

Для оценки неопределенности, вносимой зависимостью показателя преломления от размера, было проведено моделирование решения обратной задачи для аэрозоля второго типа, используя $3\beta+2\alpha$ набор данных с 10% погрешностью. Вычисления проводились для двух комбинаций m_f и m_c. В первом случае, использовались m_f=1.55-i0.01 и m_c=1.35-i0. Во втором случае, брались m_f=1.35-i0 и m_c=1.55-i0.01. Показатель преломления поглощающей моды соответствует индустриальному аэрозолю с умеренным поглощением, в то время как не поглощающая мода соответствует частицам морского происхождения. Для каждой комбинации индексов вычисления проводились 10 раз, и максимальная из неопределенностей, полученных в этих 20 инверсиях, принималась, как погрешность метода. Погрешности определения г_{eff}, N_t, S_t, и V_t составляют 55%, 60%, 30% и 50% соответственно. В основном, эти погрешности не превосходят величины, приведенные в таблице 2.5, за исключением S_t, которая увеличивается с 17% до 30%.

Рис.2.32 иллюстрирует рассеяние распределений, восстановленных в десяти реализациях. Приведенные результаты получены при m_f =1.55-i0.01 и m_c =1.35-i0. Средний радиус крупнодисперсной моды сдвинут в сторону больших размеров, по сравнению с исходным. Амплитуда крупнодисперсной моды подвержена значительным осцилляциям. Таким образом, можно заключить, что даже в ситуации, когда моды распределения характеризуются различными индексами преломления, и погрешность оптических данных составляет при 10%, параметры аэрозоля могут быть восстановлены с приемлемой точностью.



Рис.2.31. Восстановление распределения по размерам для различных показателей преломления мелкодисперсной (m_f) и крупнодисперсной (m_c) мод. Входной набор данных 3β+2α не содержит погрешностей. Сплошная линия показывает исходное бимодальное распределение.



Рис.2.32 Восстановление распределения по размерам для m_f=1.55-i0.01 и m_c=1.35-i0. Погрешности входных данных 3β+2α составляют 10%. Пунктирные линии отображают решения, полученные при 10 реализациях процедуры инверсии. Сплошная линия показывает исходное бимодальное распределение.

§ 2.4. Определение параметров аэрозоля по экспериментальным данным многоволновых лидарных измерений.

Разработанный алгоритм определения параметров аэрозоля использовался для обработки экспериментальных результатов лидарных измерений. Используемые данные были получены на двух лидарных системах. Первая была спроектирована в ЦФП ИОФ РАН, в рамках совместного проекта с НАСА. Вторая – это многоволновый лидар Института Тропосферных Исследований (Лейпциг). Для обеспечения достоверности, одни и те же данные обрабатывались различными алгоритмами, а, кроме того, проводилось сравнение результатов лидарных измерений с результатами локального забора проб с борта самолета.

2.4.1. Описание многоволнового лидара

Как было продемонстрировано в предыдущих разделах, измерение коэффициента обратного рассеяния и экстинкции на трех и двух длинах волн соответственно, позволяет извлекать значительную часть информации о параметрах аэрозоля, которая, В принципе, содержится В ланных многоволновых лидарных измерений. Поэтому для регулярного мониторинга тропосферного аэрозоля была разработана относительно недорогая лидарная система, на базе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники. Оптическая схема лидара показана на рис.2.33, а его основные параметры приведены в таблице 2.6. Пучок выходного излучения лазера содержит три длины волны, и его коллимация сопряжена с трудностями. Во-первых, линзовый коллиматор для спектрального диапазона 0.355 – 1.064 мкм, равно как и передающие зеркала, оказываются дорогими и сложными в изготовлении. Во вторых, расходимость излучения третьей гармонике несколько отличалась от первых двух. Поэтому выходной пучок лазера разделялся на два. Первый, содержащий излучение третьей гармоники, коллимировался линзовым телескопом. Второй пучок излучения, с длинами волн 532 и 1064 нм, коллимировался зеркальным

- 131 -

телескопом. Диаметр обоих пучков на выходе коллиматоров составлял 50 мм.

Рассеянное в атмосфере излучение собиралось телескопом Кассегрена с апертурой 400 мм и фокусировалось на оптическое волокно, используемое для передачи оптического сигнала в анализатор спектра. В процессе работы использовался набор волокон с диаметрами от 1 мм до 2 мм. Диаметр волокна определял поле зрения телескопа, которое могло изменяться от 0.25 до 0.5 мрад.

Внешний вид телескопа и приемного модуля показаны на рис.2.34. Излучение на выходе волокна коллимировалось внеосевым параболическим хроматических аберраций. Спектральные зеркалом, для исключения компоненты выделялись дихроичными зеркалами и направлялись в каналы регистрации. В лидаре использовалось пять каналов регистрации: 355 нм, 387 532 607 1064 HM. Оптические HM. HM. HM. сигналы выделялись интерференционными фильтрами и регистрировались ФЭУ. Ширина полосы интерференционных фильтров 0.3 пропускания составляла HM при коэффициенте пропускания около 60%. Подавление упругого рассеяния в рамановских каналах составляло более 12 порядков. ФЭУ и фильтры для каждого из каналов располагались в отдельных модулях, которые крепились на общую оптическую плиту.

Для регистрации УФ излучения использовались фотоумножители Нататаtsu R-7400 работающие в аналоговом режиме и в режиме счета фотонов. Для регистрации сигнала на длине волны 607 нм использовался фотомодуль Hamamatsu H 7422P-40 с системой охлаждения и квантовой эффективностью фотокатода на длине волны 607 нм свыше 20%. Сигнал на длине волны 1064 нм регистрировался лавинным фотодиодом с размером приемной площадки 4×4 мм, работающим в аналоговом режиме. Квантовая эффективность фотодиода для длины волны 1064 нм составляла около 10%. Одновременная реализация аналогового режима работы ФЭУ и режима счета фотонов достигалась за счет использования приемной электронной системы Licel. Электрический сигнал с ФЭУ в этом блоке разделяется на два канала с использованием высокочастотного фильтра. В одном канале реализуется аналоговое измерение, а в другом счет фотонов. Соответствующие лидарные сигналы, "сшиваются" с использованием специального алгоритма.

Типичные лидарные сигналы регистрируемые системой представлены на рис.2.34. Максимальная дальность измерений определялась рамановским каналом для длины волны 607 нм и в условиях хорошей видимости, при ночных измерениях, составляла 5-7 км.



Рис.2.33. Оптическая схема многоволнового рамановского лидара

Таблица.2.6 Параметры многоволнового рамановского лидара

| Лазер | 355 нм - 300 мДж |
|----------------------------|---|
| Nd:YAG, частота повторения | 532 нм - 350 мДж |
| 30 Гц | 1064 нм - 450 мДж |
| Телескоп | Кассегрен, апертура 400 мм |
| Приемные каналы | Упругое рассеяние: 355, 532, 1064 нм |
| | рамановское рассеяние от азота: 387, 607 нм |
| Детектирование | Аналоговое и счет фотонов одновременно |



Рис.2.34 Внешний вид телескопа и приемного модуля многоволнового лидара



Рис. 2.35. Лидарные сигналы упругого (355, 532, 1064 нм) и рамановского рассеяния азота (387, 607 нм) используемые в многоволновом аэрозольном лидаре.

2.4.2. Методика вычисления коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля

Как было показано в главе 1, стабильность решения обратной задачи во многом определяется погрешностью, с которой определены входные оптические данные. В данном разделе приводится описание методов решения лидарного уравнения, использовавшихся при обработке лидарных сигналов.

Основное уравнение лидарного зондирования обычно записывается в виде:

$$P(z) = A \ \frac{b(z)}{z^2} \exp[-2\int_0^z \ a(z') \ dz')], \qquad (2.20)$$

где P(z) – мощность рассеянного сигнала с дистанции z, A – аппаратная константа, включающая мощность лазера, апертуру приемного телескопа и эффективность системы регистрации, b(z) и a(z) - коэффициенты обратного рассеяния и экстинкции. Это уравнение содержит два неизвестных, и не может быть решено без введения функциональной зависимости между β и α .

Метод Клетта

Одним из наиболее распространенных методов решения лидарного уравнения является метод Клетта [21, 151]. Упомянутая неопределенность в этом методе устраняется в предположении постоянства лидарного отношения

$$\frac{b(z)}{a^{k}(z)} = R$$
, где k –параметр, зависящий от типа аэрозоля. В этом случае

лидарное уравнение, после дифферинцирования обеих частей, может быть записано в виде:

$$\frac{dS}{dz} = \frac{k}{a(z)} \frac{da(z)}{dz} - 2a(z)$$
(2.21)

Это уравнение известно, как уравнение Рикатти. Его решение:

$$a(z) = \frac{\exp[(S - S_{max})/k]}{a_{max}^{-1} + \frac{2}{k} \int_{z}^{z_{max}} \exp[(S - S_{max})/k] dz'},$$
(2.22)
$$- 135 -$$

где $S_{max} = S(z_{max})$ и $a_{max} = a(z_{max})$. Граничное условие, таким образом, задается в некой удаленной точке z_{max} .

Для двухкомпонентной атмосферы рассеяние обусловлено молекулярным и аэрозольным вкладами:

$$a(z) = a^{m}(z) + a^{a}(z),$$

 $b(z) = b^{m}(z) + b^{a}(z)$

Полный коэффициент обратного рассеяния записывается в виде:

$$b(z) = \frac{1}{R^m} a^m(z) + \frac{1}{R^a} a^a(z), \qquad (2.23)$$

где R^m =8 $\pi/3$ – лидарное отношение для молекулярного рассеяние, а R^a – лидарное отношение для аэрозоля. Уравнение (2.21) переписывается как: $\frac{dS}{dz} = \frac{1}{b(z)} \frac{db(z)}{dz} - 2 \left[R^a b^a(z) + R^m b^m(z) \right] =$ (2.24)

$$=\frac{1}{b(z)}\frac{db(z)}{dz} - 2R^{a}b(z) + 2(R^{a} - R^{m})b^{m}(z)$$

Вводя новую переменную S', описывающую некоторый модифицированный сигнал,

$$S' - S'_{\max} = S - S_{\max} - 2R^{m} \int_{z}^{z_{\max}} b_{m}(z')dz' + 2\int_{z}^{z_{\max}} R^{a}b_{m}(z')dz'$$

решение уравнения (2.24) может быть получено в виде [151]:
$$b^{a}(z) = \frac{\exp\left[(S' - S'_{\max})\right]}{\frac{z_{\max}}{z_{\max}}} - b^{m}(z)$$
(2.25)

$$\boldsymbol{b}^{*}(z) = \frac{1}{\boldsymbol{b}_{\max}^{-1} + 2\int_{z}^{z_{\max}} R^{a} \exp\left[(S' - S'_{\max})\right] dz'}$$
(2.25)

Для задания граничного условия предполагается, что на некоторой высоте рассеяние обусловлено только молекулами $b_{max} \approx b_{max}^m$ и, следовательно, может быть вычислено как [1]:

$$b^{m}(z) = N^{m}(z) 5,45 \times \left[\frac{550}{l}\right]^{4} \times 10^{-28} \quad [cm^{-l}cp^{-l}].$$

Здесь N^m концентрация молекул воздуха. Коэффициент k обычно полагают равным единице. В тех случаях, когда не удается достичь области

атмосферы свободной от аэрозоля, использование метода Клетта в явном виде оказывается невозможным.

Рамановский метод

Лидарное уравнение может также быть решено при использовании рамановского рассеяния одной из составляющих атмосферы с известным распределением плотности. В качестве такой молекулярной составляющей обычно выбирается азот, поскольку его рамановский сигнал максимален. В этом случае мы имеем два лидарных уравнения для упругого и неупругого рассеяния на длинах волн λ и $\lambda_{\rm R}$ соответственно.

$$P_{I}(z) = P_{0} A_{I} \frac{b_{I}^{a}(z) + b_{I}^{m}(z)}{z^{2}} \exp[-2\int_{0}^{z} \left(a_{I}^{m}(z') + a_{I}^{a}(z')\right) dz'],$$

$$P_{I_{R}}(z) = P_{0} A_{I_{R}} N_{R}(z) \frac{s_{p, \pi_{R}}}{z^{2}} \exp[-\int_{0}^{z} \left(a_{I}^{m}(z') + a_{I}^{a}(z') + a_{I_{R}}^{m}(z') + a_{I_{R}}^{a}(z')\right) dz'], \quad (2.26)$$

Здесь $P_{I}(z)$, $P_{I_{R}}(z)$ – мощность рассеянного излучения на длинах волн l и I_{R} ; A_{I} и $A_{I_{R}}$ аппаратные константы; $b_{I}^{a}(z)$ и $b_{I}^{m}(z)$ – коэффициенты обратного аэрозольного и молекулярного рассеяния; $a_{I}^{a}(z)$, $a_{I}^{m}(z)$, $a_{I_{R}}^{a}(z)$ и $a_{I_{R}}^{m}(z)$ коэффициенты экстинкции на исходной и смещенной длине волны; $S_{p, \pi_{R}}$ – дифференциальное сечение комбинационного рассеяния и $N_{R}(z)$ –концентрация молекул, на которых происходит комбинационное рассеяние.

Как показано в [24], коэффициент экстинкции аэрозоля может быть вычислен из выражения:

$$a_{I}^{a}(z) = \frac{\frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N_{R}(z)}{P_{I_{R}}(z) * z^{2}} \right) - a_{I}^{m}(z) - a_{I_{R}}^{m}(z)}{1 + \left(\frac{I_{R}}{I} \right)^{d}}, \qquad (2.27)$$

где единственным неизвестным параметром является коэффициент - 137 - Амстронга d, определяющий спектральную зависимость коэффициента экстинкции аэрозоля. Обычно этот коэффициент выбирается d = 1, хотя в многоволновом лидаре существует возможность выбирать этот коэффициент более точно, используя итерационную процедуру. Следует отметить, что даже двукратная ошибка в определении коэффициента Амстронга, приводит к погрешности в определении $a^{a}(z)$ всего лишь на уровне нескольких процентов.

Коэффициент обратного рассеяния может быть вычислен из отношения упругого и рамановского сигналов [24]

$$b_{l}^{a}(z) = -b_{l}^{m}(z) + \left[b_{l}^{a}(z_{ref}) + b_{l}^{m}(z_{ref}) \right] \times$$

$$\frac{\mathbf{P}_{l_{R}}(z_{ref})\mathbf{P}_{l}(z)N_{R}(z)}{\mathbf{P}_{l}(z_{ref})\mathbf{P}_{l_{R}}(z)N_{R}(z_{ref})} \times \frac{\exp\left\{ -\int_{z_{0}}^{z} \left[a_{l_{R}}^{a}(z') + a_{l_{R}}^{m}(z') \right] dz' \right\}}{\exp\left\{ -\int_{z_{0}}^{z} \left[a_{l}^{a}(z') + a_{l}^{m}(z') \right] dz' \right\}},$$

$$(2.28)$$

В точке привязки $b_1^m(z_{ref}) >> b_1^a(z_{ref})$. Данное условие, обычно, с хорошей точностью выполняется в верхней тропосфере.

Метод Клетта с переменным лидарным отношением

Одной из проблем, возникающих при использовании рамановского метода, является малое сечение рассеяния, которое почти на три порядка Поэтому вычисление коэффициента Рэлеевского. меньше экстинкции возможно, лишь для достаточно мощных лазерных источников (как правило, это третья и вторая гармоники Nd:YAG лазера). Вычисление коэффициентов обратного рассеяния на других длинах волн, (не обладающих достаточной энергетикой), возможно при использовании лидарных отношений измеренных на длинах волн 355 и 532 нм и их интерполяций. Лидарное уравнение, в этом быть решено модифицированным случае, может методом Клетта, с использованием переменного по высоте лидарного отношения, которое измеряется на других длинах волн [152]. Можно показать, что в этом случае выражение для коэффициента экстинкции (2.25) примет вид:
$$a^{a}(z) = \frac{R^{a}(z)P(z)z^{2}\exp(-2\int_{z}^{z_{\max}}\left[\frac{R^{a}(z')}{R^{m}}-1\right]a^{m}(z')dz')}{\frac{R^{a}(z_{\max})P(z_{\max})z_{\max}^{2}}{a^{a}(z_{\max})+\frac{R^{a}(z_{\max})}{R^{m}}a^{m}(z_{\max})} + 2\int_{z}^{z_{\max}}\left[R^{a}(z')P(z')z'^{2}\exp(2\int_{z'}^{z_{\max}}\left[\frac{R^{a}(z'')}{R_{1}}-1\right]a^{m}(z'')dz''\right]dz'} - \frac{R^{a}(z)}{R^{m}}a^{m}(z)$$

$$(2.29)$$

где лидарное отношение $R^{a}(z)$ и коэффициент экстинкции на дистанции z_{max} , являются входными параметрами.

2.4.3. Использование разработанного алгоритма решения обратной задачи для обработки экспериментальных данных лидарного зондирования.

В параграфах 1-4 текущей главы приведено описание алгоритма для определения параметров аэрозоля по данным многоволнового зондирования и проведено математическое моделирование, позволяющее оценить погрешности метода. В данном разделе разработанный алгоритм используется для обработки реальных данных зондирования.

Ha рис.2.36 приведены типичные результаты восстановления распределение аэрозоля по размерам dn(r)/dr, полученные с использованием ядер числовой (NK) и (VK) объемной плотности. Результаты, получаемые с использованием ядер поверхностной плотности всегда находились между этими двумя. Оценка параметров аэрозоля проиллюстрирована на рис.2.37. Эффективный радиус частиц, числовая, поверхностная И объемная концентрации отображены в зависимости от интервала усреднения. Для набора 2α+6β минимум невязки, при использовании ядер числовой плотности, достигается при ρ_{min} =1.2%, а максимальная плотность решений соответствует интервалу [1.2%, 8%]. Для набора $2\alpha+3\beta$ величина $\rho_{min}<0.1\%$ для всех типов ядер. Внутри интервала усреднения, величина r_{eff} для ядер объемной плотности плавно изменяется от 0.26 мкм до 0.31 мкм. Таким образом, r_{eff} должно

выбираться в середине этого интервала, а соответствующая погрешность должна перекрывать минимальную и максимальную величину, что дает r_{eff} = 0.28±0.04 µm. Для ядер числовой плотности r_{eff} варьируется внутри интервала усреднения от 0.27 мкм до 0.35 мкм, таким образом, $r_{eff} = 0.31 \pm 0.04$ мкм. Использование ядер объемной плотности приводит к более высокой концентрации N_t (185±90 см⁻³), по сравнению с ядрами числовой плотности (160± 80см⁻³). Однако это различие меньше погрешности определения радиуса, приведенной в таблице 2.5. Поверхностная концентрация варьируется в диапазоне 118-125 мкм²см⁻³ для ядер объемной плотности, и в диапазоне 117-125 мкм²см⁻³ для ядер числовой плотности. При решении обратной задачи этот параметр наиболее стабилен. Объемная концентрация варьируется в диапазоне 10.5 - 14.5 мкм³см⁻³ для различных типов ядер. Реальная часть показателя преломления изменяется от 1.62 до 1.52 для ядер объемной плотности, и от 1.61 до 1.48 для ядер числовой плотности. Хотя средние величины, получаемые с использованием обоих типов ядер, близки, решения, получаемые с использованием ядер объемной плотности, оказываются более устойчивыми. Величина мнимой части показателя преломления составляет 0.03 для всех типов ядер. Восстановление параметров из сокращенного набора оптических данных (2α+3β) приводит к похожим результатам. Отметим также, что отсутствие осцилляций на распределениях представленных рис.41 при $\rho_{max} < 8\%$ погрешности измерения показывает. что средние оптических данных составляют менее 10%.

Отличия в величинах восстановленных параметров, при использовании ядер числовой и объемной плотности, оказываются более существенными, чем можно было бы ожидать, основываясь на результатах моделирования для логнормального распределения: при инверсии модельных оптических данных мы не наблюдали существенного отличия для различных типов ядер. Проведенные исследования показали, что наблюдаемые различия обусловлены, главным образом, присутствием второй (крупнодисперсной) моды в распределении аэрозоля по размерам. Эта мода может содержать небольшое количество частиц и поэтому незаметна на распределении dn(r)/dr, однако объем частиц в этой моде может быть заметным, что и приводит к наблюдаемым различиям. Вопросы, связанные с восстановлением параметров крупнодисперсной моды в распределении аэрозоля и ее влиянием на стабильность работы алгоритма, уже разбирались нами в параграфе 2.3.

Происхождение аэрозоля, анализируемого на рис.2.36, 2.37, обусловлено, главным образом, процессами горения, поэтому вклад крупнодисперсной моды относительно невелик. Для иллюстрации возможности восстановления бимодального распределения по размерам, на рисунке 2.38 представлены три типичных результата измерений в аэрозольных слоях, содержащих крупные частицы. Измерения проводились на лидарной системе, описанной в разделе 2.4.1. Крупнодисперсная мода во всех представленных распределениях является превалирующей.

Для сравнения результатов, полученных с использованием различного количества длин волн, на рис.2.39 приведены распределения по размерам, восстановленные по данным лидарной системы Института Тропосферных Исследований [153-156]. Измерения обратного рассеяния проводились на шести длинах волн 355, 400, 532, 710, 800, и 1064 нм. Экстинкция вычислялась по рамановским сигналам на длинах волн 387 и 607 нм. Данные были получены 7 марта 1999 [157]. Таблица 2.7 содержит коэффициенты обратного рассеяния и экстинкции, использованные в инверсии.

Рассматриваются два высотных диапазона. В диапазоне 600-1000 м наблюдались следы облаков, в то время как в диапазоне 1325-1650 м облака практически отсутствовали. Для обоих диапазонов наблюдается выраженная крупнодисперсная мода, и на малых высотах ее вклад более существенен. Параметры частиц восстанавливались с использованием 6β +2 α и 3 β +2 α набора данных. Как показано в таблице 2.7, в инверсии использовались два различных значения β_{1064} . Эти два значения β_{1064} . Параметры аэрозоля, восстановленные в

- 141 -

процессе решения обратной задачи, сведены в таблицу 2.8. Обратная задача решалась для обоих значений β_{1064} .

Инверсия 6 β +2 α данных дает величину эффективного радиуса 0.34±0.13 мкм. Вычисления, проведенные для нижней границы β_{1064} , уменьшают эффективный радиус до 0.29 µm. Обработка укороченного набора 3 β +2 α не приводит к существенному изменению результатов. Вследствие неопределенности вычисления коэффициента обратного рассеяния на длине волны 1064 нм, величина объемной концентрации варьировалась в диапазоне 52 - 74 мкм³см⁻³. Эта неопределенность, однако, не влияла на величину комплексного показателя преломления.

Для верхнего слоя величина эффективного радиуса была значительно меньше: 0.19-0.24 мкм. Объемная и поверхностная концентрации были меньше на 50% и 20%, соответственно. Комплексный показатель преломления при этом практически не менялся. Во всех случаях результаты, полученные с использованием $3\beta+2\alpha$ и $6\beta+2\alpha$ наборов данных, были близки. Величина полученного показателя преломления позволяет заключить, что наблюдаемые частицы имеют океаническое происхождение.



Рис. 2.36. Распределение аэрозоля по размерам, восстановленное по данным лидарных измерений от 9 августа 1998 г. для высотного интервала 3500-4000 м. Распределения получены с использованием ядер числовой (квадраты) и объемной (круги) плотности. В процедуре инверсии использовались 2α+6β (сплошные символы) и 2α+3β (полые символы) наборы данных.









Рис.2.37. Восстановление параметров аэрозоля по данным многоволнового лидарного зондирования от 9 августа 1998 г. для интервала высот 3500–4000 m. Эффективный радиус (а), числовая (б), поверхностная (в) и объемная (г) концентрации, а также реальная (д) и мнимая (е) части показателя преломления показаны в зависимости от выбранного интервала усреднения. Решения получены с использованием ядер числовой (NK), поверхностной (SK) и объемной (VK) плотности. В процедуре инверсии использовался полный $(2\alpha+6\beta,$ сплошные символы) и сокращенный $(2\alpha+3\beta,$ полые символы) набор оптических ланных. Штриховая линия на рис. 2.37**a** соответствует относительному количеству решений N_{sol} внутри интервала усреднения. Штрихпунктирная линия показывает границу интервала усреднения используемого в процедуре.



Рис.2.38. Три примера восстановления распределения по размерам в аэрозольном слое, содержащем крупные частицы. Крупнодисперсная мода в полученных распределениях является превалирующей.



Рис.2.39. Распределение по размерам, восстановленное в слое 600-1000 м (а) и 1325-1650 м (б), с использованием 6 β +2 α (сплошная линия, штрихпунктир) и 3 β +2 α (штрих, пунктир) данных. Результаты получены для максимальных (сплошная линия, штрихи) и минимальных (штрих-пунктир, пунктир) значений β_{1064} .

Таблица 2.7. Коэффициенты обратного рассеяния и экстинкции для высот 600-1000 м и 1325-1650 м, по которым восстанавливались распределения на Рис. 2.39.

| Длина | 600-1000 |) m | 1325-1650 m | | |
|---------|-----------------------------|---------------------------------------|-----------------------------|--------------------------------------|--|
| волны | α , км ⁻¹ | β, кмm ⁻¹ cp ⁻¹ | α , км ⁻¹ | β, км ⁻¹ ср ⁻¹ | |
| 355 nm | 0.394 | 0.00592 | 0.233 | 0.00332 | |
| 400 nm | | 0.00503 | | 0.00292 | |
| 532 nm | 0.274 | 0.00339 | 0.133 | 0.00192 | |
| 710 nm | | 0.0028 | | 0.00169 | |
| 800 nm | | 0.0026 | | 0.0016 | |
| 1064 nm | | 0.00214 [0.00145] | | 0.000869 [0.00144] | |

Таблица 2.8. Параметры частиц на высоте 600 – 1000 м, восстановленные по 6β +2 α и 3β +2 α данным. Величины в квадратных скобках соответствуют β_{1064} =0.00145 км⁻¹ср⁻¹.

| Параметры | $6\beta+2\alpha$ | | $3\beta+2\alpha$ | |
|---|------------------|---------------|-------------------|---------------------|
| r _{eff} мкм | 0.34±0.13 | [0.29±0.12] | 0.32±0.12 | [0.26±0.1] |
| $N_t cm^{-3}$ | 2500±1700 | [2800±1900] | 2000±1400 | [2100±1400] |
| S_t мкм ² см ⁻³ | 680±270 | [680±270] | 670±270 | [610±240] |
| V_t мкм ³ см ⁻³ | 74±30 | [65±30] | 67±30 | [52±20] |
| m _R | 1.4±0.05 | [1.4±0.05] | 1.4±0.05 | [1.4±0.05] |
| mI | 0.007±0.0035 | [0.006±0.003] | 0.006 ± 0.003 | $[0.006 \pm 0.003]$ |

Таблица 2.9. Параметры частиц на высоте 1325 – 1650 м, восстановленные по 6β +2 α и 3β +2 α данным. Величины в квадратных скобках соответствуют β_{1064} =0.00144 км⁻¹ср⁻¹.

| Параметры | $6\beta+2\alpha$ | | $3\beta+2\alpha$ | |
|---|--------------------|---------------|--------------------|----------------|
| r _{eff} мкм | 0.19±0.08 | [0.24±0.1] | 0.2±0.08 | [0.26±0.1] |
| $N_t cm^{-3}$ | 3900±2700 | [4800±3300] | 2700±1900 | [2200±1500] |
| S_t мкм ² см ⁻³ | 560±220 | [480±190] | 490±190 | [450±180] |
| V_t мкм ³ см ⁻³ | 34±15 | [38±15] | 31±14 | [39±17] |
| m _R | 1.42±0.05 | [1.43±0.05] | 1.4±0.05 | [1.43±0.05] |
| m _I | 0.007 ± 0.0035 | [0.07±0.0035] | 0.005 ± 0.0025 | [0.007±0.0035] |

2.4.4. Сравнение результатов лидарных измерений с результатами локального забора проб

Одним из этапов тестирования разработанного алгоритма, стало его использование для обработки лидарных данных, полученных в ходе различных международных экспериментов. В подобных экспериментах, одновременно лидарными измерениями, производились локальные заборы проб с борта самолета, а также использовались пассивные спектральные инструменты (солнечные радиометры, спектрометры) и метеорологические зонды. Все это делало возможным сравнение параметров аэрозоля, измеренных многоволновым лидаром, с результатами традиционных методик и, таким образом, оценивать достоверность лидарного метода.

В данном разделе приводятся результаты обработки данных, полученных в ходе Линденберского эксперимента. Эксперимент проводился в июле-августе 1998 года. Для обработки данных, помимо описанного алгоритма, использовалось еще два: алгоритм Института Тропосферы (Лейпциг) [30], и алгоритм Института Математики (Потсдам) [133]. Все измерения проводились в ночное время.

Для иллюстрации полученных результатов рассматриваются два набора данных. Первый, это данные, полученные 9 августа 1998 г. в диапазоне высот 3-6 км. Соответствующий слой содержал аэрозоль, обусловленный горением биомассы на северо-западе Канады, примерно за шесть дней до описываемых измерений. Восстановление параметров аэрозоля проводилось для двух слоев: 4200–5400 м и 3500-4000 м, последний находился в центре аэрозольного выброса. Второй набор включает данные, полученные 11 Августа 1998. В этом случае, рассматривался пограничный слой, содержавший аэрозольные загрязнения, сформировавшиеся над Европой.

В обоих случаях результаты лидарных измерений сравнивались с результатами забора локальных проб с борта самолета.

Все три используемые алгоритма: Центра Физического Приборостроения ИОФАН (ЦФП), Института Тропосферы (ИТ) и Института Математики (ИМ) обрабатывали, как полные наборы данных, состоящие из шести коэффициентов обратного рассеяния и двух коэффициентов экстинкции (2α +6 β), так и наборы из трех коэффициентов обратного рассеяния и двух коэффициентов экстинкции (2α +3 β).

Результаты, полученные 9 августа 1998, при измерении параметров аэрозоля в атмосферном слое 4400-5000 м, сведены в таблицу 2.11. Полный и укороченный наборы оптических данных обрабатывались с использованием ядер числовой и объемной плотности. Разброс параметров аэрозоля, восстановленных для различных наборов данных и типов ядер, не превосходит погрешность метода, приведенную в таблице 2.5. Эффективный радиус, восстановленный с использованием ядер числовой плотности, составляет 0.112 мкм, а для ядер объемной плотности эта величина ~0.110 мкм. Числовая концентрация различается сильнее: она составляет 850 см⁻³ для ядер объемной 700 см⁻³ для ядер числовой плотности. Поверхностная плотности и концентрация варьируется между 95 и 100 мкм² см⁻³, а объемная между 3.5 and 3.7 мкм³см⁻³ для различных типов ядер. Реальная часть показателя преломления изменяется от 1.58 до 1.60, мнимая часть характеризуется значительной неопределенностью и по нашим оценкам лежит в пределах 0.01±0.01.

При восстановлении размера частиц по результатам измерений от 9 августа 1998 в нижней части слоя, все три алгоритма дают близкие величины, согласующиеся внутри интервала, определяемого погрешностью измерений. Наибольшие различия между алгоритмами возникают при вычислении численной концентрации, величина N_t, вычисленная с использованием алгоритма ИМ, значительно превосходит соответствующую величину для алгоритма ЦФП. Все алгоритмы дают близкие величины реальной части показателя преломления. Как правило, реальная часть показателя преломления, полученная при локальных измерениях, была ниже величины, восстановленной из лидарных данных. Тем не менее, эти величины согласуются в пределах

- 151 -

погрешности измерений. Здесь следует отметить, что комплексный показатель преломления аэрозоля в локальных измерениях вычислялся в предположении внутренней смеси частиц, в то время как показано в [158], эта смесь в большей степени является внешней, то есть представляет собой смесь частиц с различными *m*. В этом контексте, показатель преломления, восстанавливаемый из лидарных измерений, есть средняя величина, характеризующая данный набор частиц.

Верхняя часть рассматриваемого слоя характеризуется сильной временной вариацией коэффициентов обратного рассеяния. Параметры аэрозоля, восстановленные по трем алгоритмам, достаточно сильно разнятся. Алгоритм ЦФП приводит к меньшим значениям реальной части показателя преломления по сравнению с остальными двумя. Среднее отклонение параметров измеренных лидаром от данных локальных измерений для алгоритма ЦФП составляет 45%, для алгоритмов ИТ и ИМ соответствующие величины составляют 53% и 75%.

В таблице 2.12 представлены результаты для высотного диапазона 1420-1700 м, измеренные 11 августа 1998 г. Сравнение результатов лидарных измерений с локальными в этом случае усложняется необходимостью вводить коррекцию на гигроскопический рост. Для 75% относительной влажности среднее отклонение результатов, полученных с использованием алгоритма ЦФП, от локальных измерений составляет 25%. Для алгоритмов ИТ и ИМ соответствующие величины составляют 50% и 40%. При этом числовая концентрация не рассматривалась вообще, поскольку два последних алгоритма приводят к физически недостоверным результатам, и только алгоритм ЦФП позволяет получать разумные значения концентрации. Таким образом, предлагаемый алгоритм оказывается более устойчивым и обеспечивает лучшую точность восстановления параметров.

Таблица 2.13 представляет результаты за 11 августа 1998 г. для нижнего высотного диапазона. Алгоритм ЦФП и в этом случае обеспечивает наилучшее согласие с самолетными измерениями. Как и в предыдущем примере,

- 152 -

алгоритмы ИТ и ИМ оказываются не способными восстановить числовую концентрацию аэрозоля

Результаты, полученные из укороченного набора данных $(3\beta+2\alpha)$, при использовании, как алгоритма ЦФП, так и алгоритма ИТ оказываются близки к результатам, полученным из полного набора. Тем не менее, погрешность восстановления для $3\beta+2\alpha$ набора несколько увеличивается. Полученные результаты демонстрируют, что даже при использовании в лидарной системе одного лишь Nd:YAG лазера, оказывается оценивать основные микрофизические параметры аэрозоля, что позволяет упростить схему лидара и значительно уменьшить его стоимость.

Таблица 2.10. Физические параметры частиц в слое 3500-4000 м, восстановленные из лидарных данных от 9 августа 1998 г., а также результаты локальных измерений с борта самолета. В алгоритме использовались ядра числовой (NK) и объемной (VK) плотности, а также полные (6β+2α) и укороченные (3β+2α) наборы данных.

| Параметр | Алгоритм ИТ | | ритм ИТ Алгоритм Алгоритм ЦФП | | | | Самолетн. | |
|---|------------------|------------------|-------------------------------|------------------|-----------------|------------------|------------------|-----------------|
| | $6\beta+2\alpha$ | $3\beta+2\alpha$ | ИМ | $6\beta+2\alpha$ | 3β+2α | $6\beta+2\alpha$ | $3\beta+2\alpha$ | измерения |
| | VK | VK | $6\beta+2\alpha$ VK | VK | VК | NK | NK | |
| | | | | | | | | |
| $r_{ m eff,}$ МКМ | 0.27±0.04 | 0.27 ± 0.04 | 0.24±0.01 | 0.28±0.04 | 0.28 | ±0.04 | 0.31±0.04 | 0.25 ± 0.07 |
| | | | | 0.31±0.04 | | | | |
| $n_t, c M^{-3}$ | 291±70 | 305±120 | 506±131 | 185±90 | 20 | 0±100 | 160±80 | 271±74 |
| | | | | 155±80 | | | | |
| V_t , MKM ³ CM ⁻³ | 13±2 | 13±2 | 11±1 | 12±3 | 12±3 | | 12.5±3 | 8±5 |
| | | | | 13.5±4 | | | | |
| s_t , MKM ² CM ⁻³ | 139±7 | 145±8 | 136±5 | 122±20 | 122±20 125±20 | | 95±55 | |
| | | | | 126±20 | | | | |
| m _R | 1.64±0.09 | 1.63±03 | 1.66±0.02 | 1.57±0.05 | 1.58±0.06 1.55± | | 1.55±0.07 | 1.56 |
| | | | | 1.52 ± 0.07 | | | | |
| mI | 0.05±0.02 | 0.05 ± 0.02 | 0.053±0.004 | 0.03±0.015 | 0.03±0 |).015 | 0.03±0.015 | 0.07 |
| | | | | 0.035±0.015 | | | | |

Таблица 2.11. То же, что и в таблице 2.10, но для слоя 4400-5000 м.

| Параметр | Алгоритм ИТ | Алгоритм ИМ | Алгоритм Ц | Алгоритм ЦФП | | | |
|---|-------------|-------------|-----------------|------------------|------------------|-----------|--|
| | 6β+2α VK | 6β+2α VK | 6β+2α | $3\beta+2\alpha$ | $6\beta+2\alpha$ | измерения | |
| | | | NK | NK | VK | | |
| r _{eff,} мкм | 0.23±0.02 | 0.16±0.01 | 0.11±0.02 | 0.11±0.03 | 0.11±0.02 | 0.18±0.05 | |
| n_t, cM^{-3} | 663±224 | 973±316 | 700±350 | 750±400 | 850±400 | 354±74 | |
| V_t , MKM ³ CM ⁻³ | 3.4±0.4 | 2.3±0.2 | 3.5±1 | 3.7±1 | 3.7±1 | 6±3 | |
| s_t , MKM ² CM ⁻³ | 44±1 | 44±3 | 95±40 | 100±50 | 100±40 | 91±53 | |
| m _R | 1.76±0.05 | 1.77±0.02 | 1.60±0.07 | 1.58 ± 0.08 | 1.59±0.07 | - | |
| mI | 0.046±0.005 | 0.043±0.01 | 0.01 ± 0.01 | 0.01±0.01 | 0.01±0.01 | - | |

Таблица 2.12. Физические параметры частиц в слое 1420-1700 м, восстановленные из лидарных данных от 11 августа 1998 г., а также результаты локальных измерений с борта самолета. В алгоритме использовались ядра числовой (NK) и объемной (VK) плотности, а также полные (6β+2α) и укороченные (3β+2α) наборы данных.

| Параметр | Алгоритм | Алгоритм ИМ | Алгоритм I | ĮФΠ | Самолетны | Самолетные измерения | |
|---|-----------|--------------|-----------------|------------------|------------------|----------------------|-----------------|
| | ИТ | 6β+2α VK | 6β+2α | $3\beta+2\alpha$ | $6\beta+2\alpha$ | сухие | 75% |
| | 6β+2α VK | | NK | NK | VK | частицы | влажность |
| r _{eff,} мкм | 0.12±0.02 | 0.11±0.002 | 0.19±0.02 | 0.2 ± 0.02 | 0.17±0.02 | 0.17±0.03 | 0.24 ± 0.05 |
| n _t , см ⁻³ | - | - | 1860±900 | 1430±700 | 2940±1500 | 858±56 | 858±56 |
| V_t , MKM ³ CM ⁻³ | 35±7 | 23±1 | 34±8 | 34±8 | 33±8 | 11±3 | 32±8 |
| S_t , MKM ² CM ⁻³ | 921±221 | 624±30 | 535±200 | 515±200 | 590±200 | 194±54 | 400±130 |
| m _R | 1.58±0.1 | 1.74±0.02 | 1.51±05 | 1.52±0.05 | 1.61±0.07 | | 1.53 |
| mI | 0.01±0.02 | 0.031±0.0001 | 0.01 ± 0.01 | 0.01±0.01 | 0.03±0.015 | | 0.02 |

Таблица 2.13. То же, что и в таблице 2.12, но для измерений в слое 900 –1000 м.

| Параметр | Алгоритм | Алгоритм ИМ | Алгоритм L | Ι ΦΠ | Самолетные измерения | | |
|---|-------------|-------------|------------------|------------------|----------------------|-----------|-----------|
| | ИТ | 6β+2α VK | $6\beta+2\alpha$ | $3\beta+2\alpha$ | $6\beta+2\alpha$ | сухие | 75% |
| | 6β+2α VK | - | NK | NK | VK | частицы | влажность |
| r _{eff,} мкм | 0.13±0.02 | 0.15±0.02 | 0.14±0.02 | 0.14±0.02 | 0.14 ± 0.02 | 0.14±0.01 | 0.16±0.01 |
| n _t , см ⁻³ | 11193±6609 | 18455±5312 | 1450±700 | 1440±700 | 1740±800 | 607±89 | 607±89 |
| V_t , MKM ³ CM ⁻³ | 29±3 | 18±1 | 13±4 | 12±4 | 13.5±5 | 5±1 | 7±1 |
| $s_t, \mu m^2 cm^{-3}$ | 696±38 | 616±45 | 280±50 | 250±50 | 300±60 | 100±19 | 131±20 |
| m _R | 1.48±0.03 | 1.62±0.02 | 1.56±05 | 1.6±0.07 | 1.56±0.05 | | 1.53 |
| mI | 0.008±0.003 | 0.008±0.003 | 0.01±0.01 | 0.01±0.01 | 0.01±0.01 | | 0.02 |

§2.5. Основные результаты

В данной главе разработан алгоритм восстановления параметров аэрозоля по данным многоволнового лидарного зондирования. Он использует метод регуляризации Тихонова с достаточно простой модификацией критерия минимума невязки. Проведенное численное моделирование показывает, что алгоритм способен решать обратную задачу, даже при относительно небольшом Использование количестве исходных оптических ланных. указанного алгоритма (алгоритм ЦФП) для обработки реальных лидарных измерений приводит к лучшему согласию с локальными заборами проб с борта самолета, по сравнению с другими существующими алгоритмами. Основные результаты, полученные во второй главе можно сформулировать, как следующие.

Предложена процедура усреднения для стабилизации решения обратной задачи. Общепринятый подход при использовании метода регуляризации состоит в использовании единственного решения, выбранного на основе метода минимума невязки. В приведенном алгоритме производится усреднение индивидуальных решений в окрестности минимума невязки. В результате значительно возрастает стабильность работы алгоритма, особенно при восстановлении числовой концентрации.

Продемонстрировано, что лидар на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники, измеряющий коэффициенты обратного рассеяния аэрозоля на длинах волн 355, 532 и 1064 нм и коэффициенты экстинкции для 355, 532 нм, может быть использован для получения информации о микрофизических параметрах аэрозоля, таких как средний, эффективный радиус, числовая, поверхностная и объемная концентрации, а также для определения комплексного показателя преломления. Разработка такого, относительно недорогого, измерительного комплекса позволяет значительно расширить область применения лидаров. Точность измерений может быть улучшена при

- 156 -

использовании Nd:YAG лазера совместно с водородным ВКР преобразотелем, позволяющим дополнительно измерять два коэффициента обратного рассеяния на длинах волн 416 и 683 нм.

Проведено математическое моделирование возможности восстановления параметров бимодального распределения аэрозоля ПО размерам c коэффициентов обратного использованием трех рассеяния И **ДВУХ** коэффициентов экстинкции. Показано, что при 10% погрешности измерений, эффективный радиус, концентрация, поверхностная и объемная плотности могут быть восстановлены с точностью 40%, 70%, 40%, и 45%, соответственно. Реальная часть показателя преломления оценивается с точностью ±0.05. Погрешность определения мнимой части не превышает 50%.

Для бимодального распределения исследовано влияние зависимости показателя преломления от размера частицы на точность решения обратной задачи. Для этого численное моделирование проводилось при различных показателях преломления мелко и крупнодисперсной фракций аэрозоля. В этом случае, в диапазоне типичных вариаций показателя преломления атмосферного аэрозоля, погрешности оценки эффективного радиуса, концентрации, поверхностной и объемной плотности не превосходят 55%, 70%, 40%, и 50%, соответственно.

Проведено сравнение результатов, получаемых при использовании алгоритма ЦФП с алгоритмами Института Тропосферы (Лейпциг) и Института Математики (Потсдам), которые на сегодняшний день используются в Европейской лидарной сети. При измерении в пограничном слое расхождения между алгоритмами возрастали, и алгоритм ЦФП обеспечивал наилучшее согласие с локальными измерениями. Стабильность работы алгоритма ЦФП обусловлена использованием описанной выше процедуры усреднения.

Глава III. МОДЕЛИРОВАНИЕ РАМАНОВСКОГО РАССЕЯНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ МИКРОСФЕРАМИ

Как уже отмечалось во введении, одним из методов определения содержания воды в облаках в жидкой фазе, является использование рамановского рассеяния лазерного излучения каплями воды. Спектроскопия рамановского рассеяния излучения и флуоресценции микросфер широко используется для получения информации об их размерах и химическом составе [159, 160]. Тем не менее, количественная интерпретация полученных спектров сталкивается со значительными трудностями, поскольку распределение электромагнитного поля внутри капли зависит ОТ размера частицы, коэффициента преломления и длины волны падающего излучения. Для того чтобы соотнести измеренный спектр рассеянного излучения с физическими параметрами частицы, необходимо выбрать соответствующую физическую модель.

Наиболее широко используемая модель, основанная на рассмотрении диполей расположенных внутри микросферы, была предложена и исследована в работах [78 - 85]. В рамках этой дипольной модели, электрическое поле излучения внутри частицы индуцирует классические электрические диполи. Эти диполи переизлучают на частоте, соответствующей рамановскому сдвигу. Вследствие некогерентности процесса спонтанного рассеяния, для получения интенсивности рассеянного излучения в дальней зоне, необходимо провести интегрирование интенсивности по всем диполям микросферы. Однако интегрирование выражений, предложенных в работе [82]. численное оказывается чрезвычайно трудным и вычисления, представленные в этих работах, проводились для параметров размера не превосходящих х~20.

Для ускорения расчета предлагались различные модификации дипольной модели. Для сферически симметричного распределения диполей, интеграл интенсивности излучения диполей по объему может быть представлен в виде двух сомножителей, один из которых содержит только интегрирование по

углам, а второй только интегрирование по радиусу. При этом интегрирование по углам может быть проведено аналитически [81]. Таким образом, формула для интенсивности рассеянного излучения сводится к одномерному интегралу, что значительно упрощает вычисления [85]. Однако рассмотрение интегральных параметров рассеянного излучения, полученных на основе такого подхода, не позволяет вычислять угловые характеристики рассеянного излучения (фазовую функцию), а также эффекты, связанные с поляризацией излучения.

Упрощение вычислений достигается также при рассмотрении быстро вращающихся диполей [161], поскольку в этом приближении проводится усреднение по их различным ориентациям, и нет необходимости рассматривать векторные соотношения между излучением накачки и рассеянным излучением. Такой подход может приводить к корректным результатам при описании флуоресценции молекул с большим временем рекомбинации. Однако при рамановском рассеянии диполи ориентированны В соответствие С электрическим полем падающего излучения, поэтому рассмотрение упомянутых векторных соотношений становится необходимым.

В данной главе выводятся общие формулы для вычисления некогерентного рамановского рассеяния микросферами с использованием классической дипольной модели. Использование теоремы сложения позволяет избежать двойного суммирования в конечных выражениях, что упрощает процедуру численного интегрирования. Полученные формулы позволяют вычислять угловые характеристики рассеянного излучения и интенсивности резонансов для различных поляризаций падающего излучения.

Основной целью, при написании данной главы диссертации, было получение ответов на вопросы:

Как зависят угловые характеристики рамановского рассеяния от размера частицы для различных ориентаций поляризации падающего излучения?

Каков вклад морфологических (структурных) резонансов в интенсивность рассеянного излучения?

- 159 -

Как соотносится эффективное сечение обратного рамановского рассеяния микросфер с сечением рассеяния сплошной среды?

Решению этих вопросов посвящена третья глава диссертации, написанная на основании работ автора [86, 87, 162].

§ 3.1. Вывод математических выражений для расчета характеристик рамановского рассеяния излучения микросферами в рамках дипольной модели

B классической дипольной модели вычисление поля рассеянного излучения проводится в предположении, что наведенные диполи параллельны вектору электрического поля, и активные молекулы не меняют ориентацию за период времени между возбуждением и переизлучением. Это приближение рассеяния применимо для рамановского молекулами с изотропной Предполагается, поляризуемостью. что активные молекулы однородно внутри микросферы. Несмотря на распределены TO, что эта модель соответствует достаточно идеализированной ситуации, она позволяет выявить основные особенности неупругого рассеяния излучения микросферами.

3.1.1 Постановка задачи в рамках дипольной модели и получение основных соотношений

Плоская электромагнитная волна, с частотой ω_0 распространяющаяся вдоль оси *z* в среде с коэффициентом преломления n_2 может быть разложена по сферическим векторным гармоникам [75, 163, 164],

$$\mathbf{E}_{inc}(\mathbf{r}) = \sum_{l'm'} \left\{ \frac{i c}{n_2^2 \omega_0} \alpha_E(l', m') \nabla \times [j_{l'}(k_{02} r) \mathbf{X}_{l'm'}(\theta, \varphi)] + \alpha_M(l', m') j_{l'}(k_{02} r) \mathbf{X}_{l'm'}(\theta, \varphi) \right\}$$
(3.1)

$$\mathbf{B}_{inc}(\mathbf{r}) = \sum_{l'm'} \left\{ \alpha_E(l',m') \nabla \times \left[j_{l'}(k_{02} r) \mathbf{X}_{l'm'}(\theta, \varphi) \right] - \frac{i c}{\omega_0} \alpha_M(l',m') j_{l'}(k_{02} r) \mathbf{X}_{l'm'}(\theta, \varphi) \right\}$$
(3.2)

Горизонтальная **E**^{OX}_{inc} и вертикальная **E**^{OY}_{inc} поляризации падающего излучения по рассеяния отношению к плоскости X-Z, записываются как $\mathbf{E}_{inc}^{OX} = E_0 \mathbf{e}_x \exp(i k_{02} z)$ $\mathbf{E}_{inc}^{OY} = E_0 \mathbf{e}_v \exp(i k_{02} z)$

Соответствующие коэффициенты разложения:

$$\alpha_{E}^{OX}(l',m') = i^{l'}\sqrt{4\pi(2l'+1)} \frac{\delta_{m',1} - \delta_{m',-1}}{2i} n_{2}E_{0}$$

$$\alpha_{M}^{OX}(l',m') = i^{l'}\sqrt{4\pi(2l'+1)} \frac{\delta_{m',1} + \delta_{m',-1}}{2}E_{0}$$

$$\alpha_{E}^{OY}(l',m') = -i^{l'}\sqrt{4\pi(2l'+1)} \frac{\delta_{m',1} + \delta_{m',-1}}{2} n_{2}E_{0}$$

$$\alpha_{M}^{OY}(l',m') = i^{l'}\sqrt{4\pi(2l'+1)} \frac{\delta_{m',1} - \delta_{m',-1}}{2i}E_{0}$$

Где k₀₂=n₂ ω_0/c – волновое число для внешней среды, $j_{l'}(k_{02}r)$ сферические функции Бесселя. Все выражения здесь и далее записаны в Гауссовой системе единиц. Временной фактор записывается в виде $exp(-i\omega t)$.

Поле прошедшее внутрь частицы с коэффициентом преломления n₁ и магнитной проницаемостью μ_1 , расположенной в начале координат, может быть разложено как [163, 164]

$$\mathbf{E}_{tra}(\mathbf{r}') = \sum_{l'm'} \left\{ \frac{i c}{n_1^2 \omega_0} \gamma_E(l', m') \nabla \times [j_{l'}(k_{01} r') \mathbf{X}_{l'm'}(\theta', \phi')] + \gamma_M(l', m') j_{l'}(k_{01} r') \mathbf{X}_{l'm'}(\theta', \phi') \right\}$$
(3.3)

с коэффициентами

$$\gamma_{E}(l',m') = g_{E}(l') \alpha_{E}(l',m'), \quad g_{E}(l') = \frac{i\mu_{1}M^{2}}{\mu_{2}M \psi_{l'}(Mx)\xi_{l'}'(x) - \mu_{1}\xi_{l'}(x)\psi_{l'}'(Mx)}$$

 $\gamma_{M}(l',m') = g_{M}(l') \alpha_{M}(l',m'), \quad g_{M}(l') = \frac{i\mu_{1}M}{\mu_{1}\psi_{l'}(Mx)\xi_{l'}'(x) - \mu_{2}M\xi_{l'}(x)\psi_{l'}'(Mx)}$
где $\psi_{l}(\rho) = \rho j_{l}(\rho), \quad \xi_{l}(\rho) = \rho h_{l}^{(1)}(\rho), \quad \psi_{l}'(\rho), \quad \xi_{l}'(\rho) - \phi$ ункции Рикатти-Бесселя и их
производные, $h_{l}^{(1)}(\rho)$ - функции Ханкеля первого рода,; $k_{01} = \frac{W_{0}}{c}n_{1}$ есть волной
вектор излучения внутри частицы; $M = \frac{n_{1}}{n_{2}} = \frac{k_{01}}{k_{02}}$ - относительный коэффициент

 n_2

преломления, $x = k_{02}a$. Мы будем использовать, главным образом, функции Рикатти-Бесселя вместо сферических функций Бесселя, поскольку они более удобны для программирования и вычислений.

Предполагая, что поляризуемость среды a_1 изотропна, электрический дипольный момент, наведенный прошедшим полем, определяется как $a_1 E_{tra}(r)$. Переизлучение ансамбля диполей на частоте ω приводит к появлению поля рассеянного излучения $E_2(\omega)$ во внешней среде. Предполагая, что относительное изменение частоты $p=\omega_0/\omega$ не сильно отличается от 1, будем считать, что $n_1(\omega)=n_1(\omega_0)$. В дальней зоне электрическое поле излучения, рассеянного на сфере содержащей один диполь, определяется выражением [78, 80, 81, 85]

$$\mathbf{E}_{2}^{1} = \frac{\exp(ik_{2}r)}{k_{2}r} \sum_{l,m} (-i)^{l+1} \left[c_{M}^{1}(l,m) \mathbf{X}_{lm}(u,\phi) - \frac{1}{n_{2}} c_{E}^{1}(l,m) \mathbf{e}_{r} \times \mathbf{X}_{lm}(u,\phi) \right]$$
(3.4)

Верхний индекс 1 в формуле обозначает, что поле обусловлено одним диполем, отсутствие этого индекса будет обозначать, что проведено интегрирование по объему. Вывод коэффициентов $c_E^1(l,m), c_M^1(l,m)$ приведен в работе [78]:

$$c_{E}^{1}(l,m) = d_{E}(l) a_{E}^{1}(l,m), \quad d_{E}(l) = \frac{i\mu_{2}}{M \left[\mu_{2}M \psi_{l}(pMx)\xi_{l}'(px) - \mu_{1}\xi_{l}(px)\psi_{l}'(pMx)\right]},$$

$$c_{M}^{1}(l,m) = d_{M}(l) a_{M}^{1}(l,m), \quad d_{M}(l) = \frac{i\mu_{2}}{\mu_{1}\psi_{l}(pMx)\xi_{l}'(px) - \mu_{2}M \xi_{l}(px)\psi_{l}'(pMx)},$$

Коэффициенты разложения

$$a_{E}^{1}(l,m) = 4\pi k^{2} M n_{2} \mu_{1} \alpha_{1} \mathbf{E}_{tra} \cdot \left\{ \nabla \times [j_{l}(pk_{01}r')\mathbf{X}_{lm}^{*}(\theta', \phi')] \right\}$$

$$a_{M}^{1}(l,m) = 4\pi i k^{3} M n_{2} \mu_{1} \alpha_{1} j_{l}(pk_{01}r')\mathbf{E}_{tra} \cdot \mathbf{X}_{lm}^{*}(\theta', \phi')$$

определяют поле диполя \mathbf{E}_{dip}^{1} , которое создается возбужденной молекулой с координатами (r', θ', ϕ') внутри частицы; $k=\omega/c$. Векторные сферические гармоники могут быть записаны как [163] :

$$\mathbf{X}_{lm}(\theta, \phi) = \frac{i}{\sqrt{l(l+1)}} \left(\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{e}_{\theta} - \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \theta} \mathbf{e}_{\phi} \right)$$
(3.5)

где $Y_{lm}(\theta, \phi)$ - скалярные сферические гармоники, \mathbf{e}_{θ} , \mathbf{e}_{ϕ} - орты сферической системы координат. Соответственно компоненты $\mathbf{E}_{2}^{1}(\omega)$ могут быть записаны как

$$E_{2\theta}^{1} = \frac{\exp(ik_{2}r)}{k_{2}r} \sum_{l,m} (-i)^{l+1} \frac{i}{\sqrt{l(l+1)}} \left[c_{M}^{1}(l,m) \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial Y_{lm}}{\partial \phi} - \frac{c_{E}^{1}(l,m)}{n_{2}} \frac{\partial Y_{lm}}{\partial \theta} \right]$$
(3.6)

$$E_{2\varphi}^{1} = -\frac{\exp(ik_{2}r)}{k_{2}r}\sum_{lm}(-i)^{l+1}\frac{i}{\sqrt{l(l+1)}}\left[\frac{c_{E}^{1}(l,m)}{n_{2}}\frac{1}{\sin\theta}\frac{\partial Y_{lm}}{\partial\varphi} + c_{M}^{1}(l,m)\frac{\partial Y_{lm}}{\partial\theta}\right]$$
(3.7)

Используя выражения для $c_{M}^{1}(l,m)$, $c_{E}^{1}(l,m)$, компоненты переписываются как:

$$E_{2\theta}^{1} = 4\pi k^{3} M n_{2} \mu_{1} \alpha_{1} \frac{\exp(ik_{2}r)}{k_{2}r} \sum_{l,m} \frac{i(-i)^{l+1}}{\sqrt{l(l+1)}} \left[id_{M}(l) \frac{1}{\sin\theta} j_{l}(pk_{01}r') \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\phi)}{\partial\phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{X}_{lm}^{*}(\theta',\phi') - \frac{d_{E}(l)}{kn_{2}} \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\phi)}{\partial\theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \left\{ \nabla \times [j_{l}(pk_{01}r')\mathbf{X}_{lm}^{*}(\theta',\phi')] \right\} \right]$$

$$E_{2\phi}^{1} = -4\pi k^{3} M n_{2} \mu_{1} \alpha_{1} \frac{\exp(ik_{2}r)}{k_{2}r} \sum_{l,m} \frac{i(-i)^{l+1}}{\sqrt{l(l+1)}} \left[\frac{d_{E}(l)}{kn_{2}} \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\phi)}{\partial\phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \left\{ \nabla \times [j_{l}(pk_{01}r')\mathbf{X}_{lm}^{*}(\theta',\phi')] \right\} + id_{M}(l) j_{l}(pk_{01}r') \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\phi)}{\partial\theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{X}_{lm}^{*}(\theta',\phi') \right]$$

$$(3.9)$$

Конечная цель нашего рассмотрения это получение выражений для вычисления сечения рассеяния. В случае одного диполя дифференциальное сечение рассеяния определяется как:

$$\frac{d\sigma^{1}}{d\Omega} = \frac{\left|\mathbf{E}_{2}^{1}\right|^{2}}{E_{0}^{2}}r^{2} = \frac{\left|E_{2\theta}^{1}\right|^{2} + \left|E_{2\phi}^{1}\right|^{2}}{E_{0}^{2}}r^{2}$$

(3.10)

Рассеяние ансамблем диполей для случая параллельной и перпендикулярной поляризаций определяется соответствующими интегралами по объему:

$$\frac{ds^{OX}}{d\Omega} = \int_{v} N \frac{ds^{1,OX}}{d\Omega} d^{3}r' = \int_{v} N \frac{\left|E_{2q}^{1,OX}\right|^{2}}{E_{0}^{2}} r^{2} d^{3}r' + \int_{v} N \frac{\left|E_{2j}^{1,OX}\right|^{2}}{E_{0}^{2}} r^{2} d^{3}r' = \frac{ds^{OX}_{2q}}{d\Omega} + \frac{ds^{OX}_{2j}}{d\Omega}$$

$$\frac{ds^{OY}}{d\Omega} = \int_{v} N \frac{ds^{1,OY}}{d\Omega} d^{3}r' = \int_{v} N \frac{\left|E_{2q}^{1,OY}\right|^{2}}{E_{0}^{2}} r^{2} d^{3}r' + \int_{v} N \frac{\left|E_{2j}^{1,OY}\right|^{2}}{E_{0}^{2}} r^{2} d^{3}r' = \frac{ds^{OY}_{2q}}{d\Omega} + \frac{ds^{OY}_{2j}}{d\Omega}$$
(3.11)

где v – полный объем частицы и N – плотность диполей излучающих на частоте ω . Для удобства дальнейшего анализа, мы приведем также соотношения, связывающие дифференциальные сечения рассеяния, используемые в наших формулах, с интенсивностями рассеянного излучения H_H, V_H, H_V, V_V введенными в работе [80]. Эти обозначения часто используются при моделировании и анализе экспериментальных данных:

$$\frac{ds_{2q}^{OX}}{d\Omega} \equiv \frac{H_H}{I_{inc}}, \qquad \frac{ds_{2j}^{OX}}{d\Omega} \equiv \frac{V_H}{I_{inc}}, \qquad \frac{ds_{2q}^{OY}}{d\Omega} \equiv \frac{H_V}{I_{inc}}, \qquad \frac{ds_{2j}^{OY}}{d\Omega} \equiv \frac{V_V}{I_{inc}}$$

где I_{inc} - интенсивность падающего излучения.

К сожалению, количество мультипольных коэффициентов разложения пропорционально $(l \cdot m)_{\text{max}} = l_{\text{max}}^2$, где l_{max} - максимальное значение индекса l, $l_{\text{max}} = x + 4x^{1/3} + 2^{-14}$. Количество рассматриваемых мультипольных членов может быть уменьшено при использовании теоремы сложения [163], которая позволяет избавиться от двойного суммирования в выражении для $\mathbf{E}_2^1(\mathbf{r})$.

Для того чтобы избавиться от двойного суммирования в выражении для $\mathbf{E}_{2}^{1}(\mathbf{r})$, выразим комплексно-сопряженный вектор $\mathbf{X}_{lm}^{*}(\boldsymbol{\theta}', \boldsymbol{\varphi}')$ и $\{\nabla \times [j_{l}(pK_{1}r')\mathbf{X}_{lm}(\boldsymbol{\theta}', \boldsymbol{\varphi}')]\}^{*}$ через их компоненты в сферической системе координат:

$$\mathbf{X}_{lm}^{*}(\theta, \varphi) = \frac{-i}{\sqrt{l(l+1)}} \left(\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta, \varphi)}{\partial \varphi} \mathbf{e}_{\theta} - \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta, \varphi)}{\partial \theta} \mathbf{e}_{\varphi} \right)$$
(3.12)

С использованием этих выражений компоненты поля записываются как

$$\begin{split} E_{2\theta}^{1} &= 4\pi k^{3} M n_{2} \mu_{1} \alpha_{1} \frac{\exp(ik_{2}r)}{k_{2}r} \\ &\times \sum_{l,m} \frac{(-i)^{l+1}i}{\sqrt{l(l+1)}} \left[\frac{d_{M}(l)}{\sqrt{l(l+1)}} \frac{1}{\sin \theta \sin \theta'} j_{l}(pk_{0l}r') \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta, \phi')}{\partial \phi} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &- \frac{d_{M}(l)}{\sqrt{l(l+1)}} \frac{1}{\sin \theta} j_{l}(pk_{0l}r') \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta, \phi')}{\partial \theta'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\phi} \\ &+ \frac{id_{E}(l)}{kn_{2}} \sqrt{l(l+1)} \frac{1}{in \theta'} \frac{1}{r'} \frac{d[r_{0}j_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta, \phi')}{\partial \phi'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\phi} \\ &+ \frac{id_{E}(l)}{kn_{2}} \sqrt{l(l+1)} \frac{1}{in \theta'} \frac{1}{r'} \frac{d[r_{0}j_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta', \phi')}{\partial \theta'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &+ \frac{id_{E}(l)}{kn_{2}} \sqrt{l(l+1)} \frac{1}{r'} \frac{d[r'_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta, \phi')}{\partial \theta'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &+ \frac{id_{E}(l)}{kn_{2}} \sqrt{l(l+1)} \frac{1}{r'} \frac{d[r'_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta, \phi')}{\partial \theta'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &= \frac{-4\pi k^{3} M n_{2} \mu_{1} \alpha_{1}}{\sqrt{l(l+1)}} \left[\frac{d_{M}(l)}{\sqrt{l(l+1)}} \frac{1}{\sin \theta'} j_{l}(pk_{0l}r') \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta', \phi')}{\partial \theta'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &= \frac{-\frac{d_{M}(l)}{\sqrt{l(l+1)}} j_{l}(pk_{0l}r') \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta', \phi')}{\partial \theta'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{r} \\ &- \frac{id_{E}(l)}{\sqrt{l(l+1)}} \frac{1}{\sin \theta} \frac{j_{l}(pk_{0l}r')}{r'} Y_{lm}^{*}(\theta', \phi') \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &- \frac{id_{E}(l)}{kn_{2}\sqrt{l(l+1)}} \frac{1}{\sin \theta \sin \theta'} \frac{l}{r'} \frac{d[r'_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta', \phi')}{\partial \phi'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &- \frac{id_{E}(l)}{kn_{2}\sqrt{l(l+1)}} \frac{1}{\sin \theta \sin \theta'} \frac{1}{r'} \frac{d[r'_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta', \phi')}{\partial \phi'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &- \frac{id_{E}(l)}{kn_{2}\sqrt{l(l+1)}} \frac{1}{\sin \theta \sin \theta'} \frac{1}{r'} \frac{d[r'_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \frac{\partial Y_{lm}^{*}(\theta', \phi')}{\partial \phi'} \frac{\partial Y_{lm}(\theta, \phi)}{\partial \phi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \\ &- \frac{id_{E}(l)}{kn_{2}\sqrt{l(l+1)}} \frac{1}{\sin \theta \sin \theta'} \frac{1}{r'} \frac{d[r'_{l}(pk_{0}$$

Используя теорему сложения [163]:

$$P_{l}(\cos\gamma) = \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^{l} Y_{lm}^{*}(\theta', \phi') Y_{lm}(\theta, \phi) = \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^{l} Y_{lm}^{*}(\theta, \phi) Y_{lm}(\theta', \phi')$$

где $P_l(\cos \gamma)$ - полиномы Лежандра и

 $\cos \gamma = \cos \theta' \cos \theta + \sin \theta' \sin \theta \cos(\phi' - \phi)$. Дифференцируя правую и левую части, получаем соотношения:

$$\begin{split} S_{\varphi\varphi} &= \frac{1}{\sin\theta'\sin\theta} \cdot \frac{\partial^2 P_l(\cos\gamma)}{\partial\varphi'\partial\varphi} = \frac{4\pi}{2l+1} \cdot \frac{1}{\sin\theta'\sin\theta} \cdot \sum_{m=-l}^{l} \frac{\partial Y_{lm}^*(\theta',\varphi')}{\partial\varphi'} \cdot \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\varphi)}{\partial\varphi'}, \\ S_{\theta\varphi} &= \frac{1}{\sin\theta} \cdot \frac{\partial^2 P_l(\cos\gamma)}{\partial\theta'\partial\varphi} = \frac{4\pi}{2l+1} \cdot \frac{1}{\sin\theta} \cdot \sum_{m=-l}^{l} \frac{\partial Y_{lm}^*(\theta',\varphi')}{\partial\theta'} \cdot \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\varphi)}{\partial\varphi}, \\ S_{\theta} &= \frac{\partial P_l(\cos\gamma)}{\partial\theta} = \frac{4\pi}{2l+1} \cdot \sum_{m=-l}^{l} Y_{lm}^*(\theta',\varphi') \cdot \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\varphi)}{\partial\theta}, \\ &- 165 - \end{split}$$

$$S_{\varphi\theta} = \frac{1}{\sin\theta'} \cdot \frac{\partial^2 P_l(\cos\gamma)}{\partial\phi'\partial\theta} = \frac{4\pi}{2l+1} \cdot \frac{1}{\sin\theta'} \cdot \sum_{m=-l}^{l} \frac{\partial Y_{lm}^*(\theta'\phi')}{\partial\phi'} \cdot \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\phi)}{\partial\theta},$$

$$S_{\theta\theta} = \frac{\partial^2 P_l(\cos\gamma)}{\partial\theta'\partial\theta} = \frac{4\pi}{2l+1} \cdot \sum_{m=-l}^{l} \frac{\partial Y_{lm}^*(\theta',\phi')}{\partial\theta'} \cdot \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\phi)}{\partial\theta},$$

$$S_{\varphi} = \frac{1}{\sin\theta} \cdot \frac{\partial P_l(\cos\gamma)}{\partial\phi} = \frac{4\pi}{2l+1} \cdot \frac{1}{\sin\theta} \cdot \sum_{m=-l}^{l} Y_{lm}^*(\theta',\phi') \cdot \frac{\partial Y_{lm}(\theta,\phi)}{\partial\phi}$$

Теперь компоненты поля могут быть переписаны без двойных суми:

$$E_{2\theta}^{1} = k^{3} M n_{2} \mu_{1} \alpha_{1} \frac{\exp(ik_{2}r)}{k_{2}r} \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} \frac{2l+1}{l(l+1)} \left[id_{M}(l) j_{l}(pK_{1}r') S_{\varphi\varphi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \right]$$

$$- id_{M}(l) j_{l}(pK_{1}r') S_{\theta\varphi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\varphi} - \frac{d_{E}(l)}{kn_{2}} l(l+1) \frac{j_{l}(pK_{1}r')}{r'} S_{\theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{r}$$

$$- \frac{d_{E}(l)}{kn_{2}} \frac{1}{r'} \frac{d[r'j_{l}(pK_{1}r')]}{dr'} S_{\varphi\theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\varphi} - \frac{d_{E}(l)}{kn_{2}} \frac{1}{r'} \frac{d[r'j_{l}(pK_{1}r')]}{dr'} S_{\theta\theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta}$$

$$= -k^{3} M n_{2} \mu_{1} \alpha_{1} \frac{\exp(ik_{2}r)}{k_{2}r} \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} \frac{2l+1}{l(l+1)} \left[id_{M}(l) j_{l}(pK_{1}r') S_{\varphi\theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta} \right]$$

$$= -id_{M}(l) j_{l}(pK_{1}r') S_{\theta\theta} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\varphi} + \frac{d_{E}(l)}{kn_{2}} l(l+1) \frac{j_{l}(pK_{1}r')}{r'} S_{\varphi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{r}$$

$$+ \frac{d_{E}(l)}{kn_{2}} \frac{1}{r'} \frac{d[r'j_{l}(pK_{1}r')]}{dr'} S_{\varphi\varphi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\varphi} + \frac{d_{E}(l)}{kn_{2}} l(l+1) \frac{j_{l}(pK_{1}r')}{r'} S_{\theta\varphi} \mathbf{E}_{1}(\mathbf{r}') \cdot \mathbf{e}_{\theta}$$

Для удобства дальнейшего программирования, S-функции могут быть записаны как:

$$\begin{split} S_{\varphi\varphi} &= -\frac{d^2 P_l}{dx^2} \sin \theta' \sin \theta \sin^2 \varphi' + \frac{dP_l}{dx} \cos \varphi_0 \\ S_{\theta\varphi} &= \frac{d^2 P_l}{dx^2} \sin \theta' \sin \varphi' (-\sin \theta' \cos \theta + \cos \theta' \sin \theta \cos \varphi') + \frac{dP_l}{dx} \cos \theta' \sin \varphi' \\ S_{\varphi\theta} &= \frac{d^2 P_l}{dx^2} \sin \theta \sin \varphi' (\cos \theta' \sin \theta - \sin \theta' \cos \theta \cos \varphi') - \frac{dP_l}{dx} \cos \theta \sin \varphi' \\ S_{\theta\theta} &= \frac{d^2 P_l}{dx^2} (\sin \theta' \cos \theta - \cos \theta' \sin \theta \cos \varphi') (\cos \theta' \sin \theta - \sin \theta' \cos \theta \cos \varphi') \\ &+ \frac{dP_l}{dx} (\sin \theta' \sin \theta + \cos \theta' \cos \theta \cos \varphi') \\ S_{\theta} &= \frac{dP_l}{dx} (-\cos \theta' \sin \theta + \sin \theta' \cos \theta \cos \varphi') \\ S_{\varphi} &= \frac{dP_l}{dx} \sin \theta' \sin \varphi' \sin \varphi' \end{split}$$

где $x = \cos \gamma$ и плоскости рассеяния соответствует угол $\phi = 0$. Из рекурентных соотношений для полиномов Лежандра [165]

$$(2l+1)xP_{l} - (l+1)P_{l+1} - lP_{l-1} = 0$$

мы можем записать их производные:

$$\frac{dP_l}{dx} = \frac{(2l-1)P_{l-1} + (2l-1)x\frac{dP_{l-1}}{dx} - (l-1)\frac{dP_{l-2}}{dx}}{l}$$

$$\frac{d^2 P_l}{dx^2} = \frac{2(2l-1)\frac{dP_{l-1}}{dx} + (2l-1)x\frac{d^2 P_{l-1}}{dx^2} - (l-1)\frac{d^2 P_{l-2}}{dx^2}}{l}$$

Используя значения $P_0 = 1$, $P_1 = x$, $\frac{dP_0}{dx} = 0$, $\frac{dP_1}{dx} = 1$, $\frac{d^2P_0}{dx^2} = 0$, $\frac{d^2P_1}{dx^2} = 0$ все Sфункции могут быть последовательно вычислены для значений индексов lменяющихся от l = 1 до $l = l_{\text{max}}$.

Выражения для $E_{2\theta}^1$ и $E_{2\phi}^1$ могут быть дополнительно упрощены, записывая прошедшее поле $\mathbf{E}_{tra}(\mathbf{r}')$ в виде:

$$\mathbf{E}_{tra}^{OX}(\mathbf{r}') = E_0 \left[\mathbf{e}_r A_r(\theta', \delta') \cos \varphi' + \mathbf{e}_{\theta} A_{\theta}(\theta', \delta') \cos \varphi' + \mathbf{e}_{\phi} A_{\phi}(\theta', \delta') \sin \varphi' \right]$$
(3.16)

$$\mathbf{E}_{tra}^{OY}(\mathbf{r}') = E_0 \left[\mathbf{e}_r A_r(\theta', \delta') \sin \phi' + \mathbf{e}_{\theta} A_{\theta}(\theta', \delta') \sin \phi' - \mathbf{e}_{\phi} A_{\phi}(\theta', \delta') \cos \phi' \right]$$
(3.17)

где

$$A_{r}(\theta',\delta') = \sum_{l'=1}^{\infty} i^{l'} (2l'+1) \frac{i}{M} g_{E}(l') \frac{\psi_{l'}(Mx\delta')}{(Mx\delta')^{2}} \rho_{l'}^{1}(\theta') \sin \theta', \qquad (3.18)$$

$$A_{\theta}(\theta',\delta') = \sum_{l'=1}^{\infty} i^{l'} \frac{(2l'+1)}{l'(l'+1)} \left[\frac{i}{M} g_{E}(l') \psi_{l'}'(Mx\delta') \tau_{l'}^{1}(\theta') - g_{M}(l') \psi_{l'}(Mx\delta') \rho_{l'}^{1}(\theta') \right] \frac{1}{Mx\delta'}$$
(3.19)

$$A_{\varphi}(\theta',\delta') = \sum_{l'=1}^{\infty} i^{l'} \frac{(2l'+1)}{l'(l'+1)} \bigg[g_M(l') \psi_{l'}(Mx\delta') \tau_{l'}^1(\theta') - \frac{i}{M} g_E(l') \psi_{l'}'(Mx\delta') \rho_{l'}^1(\theta') \bigg] \frac{1}{Mx\delta'}$$
(3.20)

$$\rho_{l'}^1(\theta') = \frac{P_{l'}^1(\theta')}{\sin \theta'}, \quad \tau_{l'}^1(\theta') = \frac{dP_{l'}^1(\theta')}{d\theta'}, \quad \delta' = \frac{r'}{a}, \quad \mu P_{l'}^1(\theta') -$$
присоединенные функции

Лежандра. В итоге приходим к выражениям:

$$E_{2\theta}^{10X} = E_0 \frac{\exp(ik_2 r)}{k_2 r} k^3 M n_2 \mu_1 \alpha_1 \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} \frac{2l+1}{l(l+1)} \left[i A_{\theta}(\theta') d_M(l) \frac{\Psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi\phi} \cos\phi' - i A_{\phi}(\theta') d_M(l) \frac{\Psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi\phi} \cos\phi' - i (l+1) M A_r(\theta') d_E(l) \frac{\Psi_l(pMx\delta')}{(pMx\delta')^2} S_{\theta} \cos\phi' - M A_{\phi}(\theta') d_E(l) \frac{\Psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi\theta} \sin\phi' - M A_{\theta}(\theta') d_E(l) \frac{\Psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\theta\theta} \cos\phi' \right]$$
(3.21)

$$E_{2\varphi}^{1OX} = E_0 \frac{\exp(ik_2 r)}{k_2 r} k^3 M n_2 \mu_1 \alpha_1 \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} \frac{2l+1}{l(l+1)} \left[-i A_{\theta}(\theta') d_M(l) \frac{\Psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\varphi\theta} \cos\varphi' + i A_{\varphi}(\theta') d_M(l) \frac{\Psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\theta\theta} \sin\varphi' - l(l+1)MA_r(\theta') d_E(l) \frac{\Psi_l(pMx\delta')}{(pMx\delta')^2} S_{\varphi} \cos\varphi' \right]$$

$$- MA_{\varphi}(\theta') d_E(l) \frac{\Psi_l'(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\varphi\varphi} \sin\varphi' - M A_{\theta}(\theta') d_E(l) \frac{\Psi_l'(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\theta\varphi} \cos\varphi' \right]$$
(3.22)

$$E_{2\theta}^{10Y} = E_0 \frac{\exp(ik_2 r)}{k_2 r} k^3 M n_2 \mu_1 \alpha_1 \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} \frac{2l+1}{l(l+1)} \left[i A_{\theta}(\theta') d_M(l) \frac{\psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi\phi} \sin \phi' + i A_{\phi}(\theta') d_M(l) \frac{\psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\theta\phi} \cos \phi' - l(l+1) M A_r(\theta') d_E(l) \frac{\psi_l(pMx\delta')}{(pMx\delta')^2} S_{\theta} \sin \phi' \right]$$

$$+ M A_{\phi}(\theta') d_E(l) \frac{\psi_l'(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi\theta} \cos \phi' - M A_{\theta}(\theta') d_E(l) \frac{\psi_l'(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\theta\theta} \sin \phi' \right]$$

$$= E_0 \frac{\exp(ik_2 r)}{k_2 r} k^3 M n_2 \mu_1 \alpha_1 \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} \frac{2l+1}{l(l+1)} \left[-i A_{\theta}(\theta') d_M(l) \frac{\psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi\theta} \sin \phi' - i A_{\phi}(\theta') d_E(l) \frac{\psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi} \sin \phi' - i A_{\phi}(\theta') d_M(l) \frac{\psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\theta\theta} \cos \phi' - l(l+1) M A_r(\theta') d_E(l) \frac{\psi_l(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi} \sin \phi' + (3.24) + M A_{\phi}(\theta') d_E(l) \frac{\psi_l'(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\phi\phi} \cos \phi' - M A_{\theta}(\theta') d_E(l) \frac{\psi_l'(pMx\delta')}{pMx\delta'} S_{\theta\phi} \sin \phi' \right]$$

Деполяризацию рассеянного излучения мы будем определять как отношения:

$$d^{OX}(q,x) = \frac{V_H(q,x)}{H_H(q,x)} , \qquad (3.25)$$

$$d^{OY}(q,x) = \frac{H_V(q,x)}{V_V(q,x)}$$
(3.26)

Для сравнения рассеивающих свойств аэрозоля и сплошной среды мы введем нормализованное сечение рассеяния, определяемое как:

$$\frac{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{aerosol}}{\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{bulk}}$$
(3.27)

где в знаменателе стоит сечение обратного рассеяния вычисляемое как:

$$\left(\frac{ds}{d\Omega}\right)_{bulk} = \frac{4}{3}pa^3 N a_1^2 k^4 m_1 m_2 M$$
(3.28)

Вывод формулы (3.27) аналогичен, приведенному в работах [81,85]. Следует отметить, что после интегрирования по всем направлениям, мы приходим к выражению для сечения рассеяния полученному в [85]. Формулы (3.21 – 3.24) дают общие выражения для компонент рассеянного поля. Далее мы рассмотрим некоторые практически важные частные случаи.

3.1.2 Рассмотрение некоторых предельных случаев

Рассеяние малыми частицами

В случае малых частиц выражения для компонент рассеянного поля могут быть получены аналитически. Для функций Рикати-Бесселя с малым аргументом $\rho \rightarrow 0$ можно записать[165]:

$$\frac{Y_{l'}(r)}{r^2} = \begin{cases} 1/3 \text{ npu } l' = 1\\ 0 \text{ npu } l' > 1 \end{cases},$$
$$\frac{Y_{l'}(r)}{r} = \begin{cases} 2/3 \text{ npu } l' = 1\\ 0 \text{ npu } l' > 1 \end{cases},$$
$$\frac{Y_{l'}(r)}{r} = 0 \text{ при всех } l'$$

Принимая во внимание, что $\rho_1^1(\theta') = -1$, $\tau_1^1(\theta') = -\cos \theta'$ для поля $\mathbf{E}_1(\mathbf{r}')$ мы получаем выражения:

$$A_r = \frac{3}{M^2 + 2} \sin \theta', \ A_{\theta} = \frac{3}{M^2 + 2} \cos \theta', \ A_{\phi} = -\frac{3}{M^2 + 2}$$

После преобразований мы приходим к выражениям для компонент рассеянного поля:

$$E_{2\theta}^{1OX} = \frac{9k^{3}\mu_{1}\alpha_{1}E_{0}\exp(ik_{2}r)}{(M^{2}+2)^{2}k_{2}r}\cos\theta$$
$$E_{2\phi}^{1OX} = 0$$
$$E_{2\theta}^{1OY} = 0$$
$$E_{2\phi}^{1OY} = \frac{9k^{3}\mu_{1}\alpha_{1}E_{0}\exp(ik_{2}r)}{(M^{2}+2)^{2}k_{2}r}$$

Таким образом, для малых частиц деполяризация рассеянного излучения

отсутствует. Сечение рассеяния записывается как:

$$\frac{d\sigma_{\theta}^{OX}}{d\Omega} = \frac{216\pi^2 N\alpha_1^2 p^4 x^3 \mu_1^2}{n_2^6 (M^2 + 2)^4 \lambda_0} \cos^2 \theta$$

$$\frac{d\sigma_{\phi}^{OY}}{d\Omega} = \frac{216\pi^2 N\alpha_1^2 p^4 x^3 \mu_1^2}{n_2^6 (M^2 + 2)^4 \lambda_0}$$
(3.29)

где λ₀ – длина волны падающего излучения. Как видно из формулы (3.29) сечение рассеяния в этом случае пропорционально объему рассеивающей частицы.

Обратное рассеяние

При анализе выражений для компонент рассеянного поля, особый интерес для нас представляет рассмотрение обратного рассеяния, поскольку именно эта ситуация соответствует лидарному зондированию. При $\theta = 180^{\circ}$ выражения (3.21 – 3.24) могут быть значительно упрощены. Из свойств присоединенных полиномов Лежандра следует [165]:

$$\frac{m}{\sin\theta} P_l^m(\theta) \bigg|_{180^\circ} = \frac{dP_l^m(\theta)}{d\theta} \bigg|_{180^\circ} = 0 \quad \Pi P \Pi \quad |m| \neq 1$$
(3.30)

$$\frac{m}{\sin\theta} P_l^m(\theta) \bigg|_{180^\circ} = \frac{dP_l^m(\theta)}{d\theta} \bigg|_{180^\circ} = (-1)^l \frac{1}{2} \quad \Pi p_{\mathcal{H}} \quad m = -1$$
(3.31)

$$\frac{m}{\sin\theta} P_l^m(\theta) \bigg|_{180^\circ} = (-1)^l \frac{l(l+1)}{2}, \quad \frac{dP_l^m(\theta)}{d\theta} \bigg|_{180^\circ} = -(-1)^l \frac{l(l+1)}{2} \quad \text{при} \quad m=1$$
(3.32)

Следовательно, для случая обратного рассеяния нет необходимости использовать теорему сложения, поскольку все члены с $|m| \neq 1$ будут равны нулю.

После подстановки выражений (3.30-3.32) в компоненты рассеянного поля $\mathbf{E}_{2}^{1}(\mathbf{r}')$ получаем:

$$\begin{cases} E_{2\theta} = \frac{\exp(ik_2r)}{k_2r} \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} (-1)^l \frac{i\sqrt{2l+1}}{2\sqrt{4\pi}} \left[i(c_M(l,1) + c_M(l,-1)) + \frac{c_E(l,1) - c_E(l,-1)}{n_2} \right] \\ E_{2\varphi} = \frac{\exp(ik_2r)}{k_2r} \sum_{l=1}^{\infty} (-i)^{l+1} (-1)^l \frac{i\sqrt{2l+1}}{2\sqrt{4\pi}} \left[c_M(l,1) - c_M(l,-1) - i \frac{c_E(l,1) + c_E(l,-1)}{n_2} \right] \end{cases}$$
(3.33)

Дальнейшее упрощение может быть достигнуто, объединяя комплексно сопряженные векторные сферические гармоники с одинаковыми индексами *l* и записывая соответствующие пары как:

$$\begin{split} \mathbf{X}_{l,1}^{*} + \mathbf{X}_{l,-1}^{*} &= \frac{2\sqrt{2l+1}}{l(l+1)\sqrt{4\pi}} \left[\mathbf{e}_{\varphi} \frac{dP_{l}^{1}(\theta')}{d\theta'} \sin \varphi' - \mathbf{e}_{\theta} \frac{P_{l}^{1}(\theta')}{\sin \theta'} \cos \varphi' \right] \\ \mathbf{X}_{l,1}^{*} - \mathbf{X}_{l,-1}^{*} &= \frac{2i\sqrt{2l+1}}{l(l+1)\sqrt{4\pi}} \left[\mathbf{e}_{\varphi} \frac{dP_{l}^{1}(\theta')}{d\theta'} \cos \varphi' + \mathbf{e}_{\theta} \frac{P_{l}^{1}(\theta')}{\sin \theta'} \sin \varphi' \right] \\ \nabla \times \left[j_{l}(pk_{0l}r')(\mathbf{X}_{l,1}^{*} + \mathbf{X}_{l,-1}^{*}) \right] &= -\frac{2\sqrt{2l+1}}{l(l+1)\sqrt{4\pi}} \left[\mathbf{e}_{r}l(l+1) \frac{j_{l}(pk_{0l}r')}{r'} P_{l}^{1}(\theta') \sin \varphi' + \frac{1}{r'} \frac{d[r'j_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \left(\mathbf{e}_{\theta} \frac{dP_{l}^{1}(\theta')}{d\theta'} \sin \varphi' + \mathbf{e}_{\varphi} \frac{P_{l}^{1}(\theta')}{\sin \theta'} \cos \varphi' \right) \right] \\ \nabla \times \left[j_{l}(pk_{0l}r')(\mathbf{X}_{l,1}^{*} - \mathbf{X}_{l,-1}^{*}) \right] &= -\frac{2i\sqrt{2l+1}}{l(l+1)\sqrt{4\pi}} \left[\mathbf{e}_{r}l(l+1) \frac{j_{l}(pk_{0l}r')}{r'} P_{l}^{1}(\theta') \cos \varphi' + \frac{1}{r'} \frac{d[r'j_{l}(pk_{0l}r')]}{dr'} \left(\mathbf{e}_{\theta} \frac{dP_{l}^{1}(\theta')}{d\theta'} \sin \varphi' - \mathbf{e}_{\varphi} \frac{P_{l}^{1}(\theta')}{\sin \theta'} \sin \varphi' \right) \right] \end{split}$$

Для обеих поляризаций падающего излучения компоненты рассеянного поля записываются как:

$$E_{2\theta}^{10X} = -E_{2\phi}^{10Y} = E_0 \frac{\exp(ik_2 r)}{r} k^2 M \mu_1 \alpha_1$$

$$\times \left[\cos^2 \varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^l \frac{(2l+1)}{l(l+1)} d_M(l) A_{\theta} j_l(pk_{01}r') \frac{P_l^1(\theta')}{\sin \theta'} - \sin^2 \varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^l \frac{(2l+1)}{l(l+1)} d_M(l) A_{\varphi} j_l(pk_{01}r') \frac{dP_l^1(\theta')}{d\theta'} - \cos^2 \varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^l (2l+1) i d_E(l) A_r \frac{j_l(pk_{01}r')}{k_2 r'} P_l^1(\theta') - \cos^2 \varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^l \frac{(2l+1)i}{l(l+1)} d_E(l) A_{\theta} \frac{1}{k_2 r'} \frac{d[r'j_l(pk_{01}r')}{dr'} \frac{dP_l^1(\theta')}{d\theta'} d\theta' + \sin^2 \varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^l \frac{(2l+1)i}{l(l+1)} d_E(l) A_{\varphi} \frac{1}{k_2 r'} \frac{d[r'j_l(pk_{01}r')}{dr'} \frac{P_l^1(\theta')}{d\theta'} d\theta'$$
(3.34)

$$E_{2\varphi}^{10X} = -E_{2\theta}^{10Y} = E_{0} \frac{\exp(ik_{2}r)}{r} k^{2} M \mu_{1} \alpha_{1}$$

$$\times \left[-\sin\varphi' \cos\varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)}{l(l+1)} k d_{M}(l) A_{\theta} j_{l}(pk_{01}r') \frac{P_{l}^{1}(\theta')}{\sin\theta'} -\sin\varphi' \cos\varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)}{l(l+1)} k d_{M}(l) A_{\varphi} j_{l}(pk_{01}r') \frac{dP_{l}^{1}(\theta')}{d\theta'} +\sin\varphi' \cos\varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} (2l+1) i d_{E}(l) A_{r} \frac{j_{l}(pk_{01}r')}{k_{2}r'} P_{l}^{1}(\theta') +\sin\varphi' \cos\varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)i}{l(l+1)} d_{E}(l) A_{\theta} \frac{1}{k_{2}r'} \frac{d[r'j_{l}(pk_{01}r')}{dr'} \frac{dP_{l}^{1}(\theta')}{d\theta'} +\sin\varphi' \cos\varphi' \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)i}{l(l+1)} d_{E}(l) A_{\theta} \frac{1}{k_{2}r'} \frac{d[r'j_{l}(pk_{01}r')}{dr'} \frac{P_{l}^{1}(\theta')}{d\theta'} \right]$$
(3.35)

Заменяя сферические функции Бесселя на функции Рикатти-Бесселя, получаем:

$$E_{2\theta}^{10X} = -E_{2\phi}^{10Y} = E_0 \frac{\exp(ik_2 r)}{r} k^2 M \mu_1 \alpha_1$$

$$\times \left[B_1(r', \theta') \cos^2 \phi' - B_2(r', \theta') \sin^2 \phi' - iB_3(r', \theta') \cos^2 \phi' - iB_4(r', \theta') \cos^2 \phi' + iB_5(r', \theta') \sin^2 \phi' \right]$$

$$E_{2\phi}^{10X} = -E_{2\theta}^{10Y} = E_0 \frac{\exp(ik_2 r)}{r} k^2 M \mu_1 \alpha_1$$

$$\times \left[-B_1(r', \theta') - B_2(r', \theta') + iB_3(r', \theta') + iB_4(r', \theta') + iB_5(r', \theta') \right] \sin \phi' \cos \phi'$$

После интегрирования этих выражений по углу^{ф'} получаем окончательные формулы:

$$\int_{0}^{2\pi} d\varphi' \frac{d\sigma_{\theta}^{1OX}}{d\Omega}$$

$$= \frac{\pi}{4} |k^{2} M \mu_{1} \alpha_{1}|^{2} \Big[3 \Big(|B_{1}|^{2} + |B_{3}|^{2} + |B_{4}|^{2} - 2 \operatorname{Im}(B_{1}B_{3}^{*}) - 2 \operatorname{Im}(B_{1}B_{4}^{*}) + 2 \operatorname{Re}(B_{3}B_{4}^{*}) \Big)$$

$$+ 3 \Big(|B_{2}|^{2} + |B_{5}|^{2} - 2 \operatorname{Im}(B_{2}B_{5}^{*}) \Big)$$

$$+ \Big(- 2 \operatorname{Re}(B_{1}B_{2}^{*}) + 2 \operatorname{Im}(B_{1}B_{5}^{*}) + 2 \operatorname{Im}(B_{2}B_{3}^{*}) + 2 \operatorname{Im}(B_{2}B_{4}^{*}) - 2 \operatorname{Re}(B_{4}B_{5}^{*}) - 2 \operatorname{Re}(B_{3}B_{5}^{*}) \Big) \Big] \quad (3.36)$$

$$= \frac{\pi}{4} |k^{2} M \mu_{1} \alpha_{1}|^{2} \Big(|B_{1}|^{2} + |B_{2}|^{2} + |B_{3}|^{2} + |B_{4}|^{2} + |B_{5}|^{2} + 2 \operatorname{Re}(B_{1}B_{2}^{*}) - 2 \operatorname{Im}(B_{1}B_{3}^{*})$$

$$-2\operatorname{Im}(B_{1}B_{4}^{*}) - 2\operatorname{Im}(B_{1}B_{5}^{*}) - 2\operatorname{Im}(B_{2}B_{3}^{*}) - 2\operatorname{Im}(B_{2}B_{4}^{*}) - 2\operatorname{Im}(B_{2}B_{5}^{*}) + 2\operatorname{Re}(B_{3}B_{4}^{*}) + 2\operatorname{Re}(B_{3}B_{5}^{*}) + 2\operatorname{Re}(B_{4}B_{5}^{*})\Big)$$
(3.37)

где:

$$B_{1}(\delta',\theta') = A_{\theta}(\delta',\theta') \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)}{l(l+1)} d_{M}(l) \frac{\Psi_{l}(pMx\delta')}{pMx\delta'} \rho_{l}^{1}(\theta')$$

$$B_{2}(\delta',\theta') = A_{\varphi}(\delta',\theta') \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)}{l(l+1)} d_{M}(l) \frac{\Psi_{l}(pMx\delta')}{pMx\delta'} \tau_{l}^{1}(\theta')$$

$$B_{3}(\delta',\theta') = MA_{r}(\delta',\theta') \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)}{l(l+1)} l(l+1) d_{E}(l) \frac{\Psi_{l}(pMx\delta')}{(pMx\delta')^{2}} \rho_{l}^{1}(\theta') \sin \theta'$$

$$B_{4}(\delta',\theta') = MA_{\theta}(\delta',\theta') \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)}{l(l+1)} d_{E}(l) \frac{\Psi_{l}(pMx\delta')}{pMx\delta'} \tau_{l}^{1}(\theta')$$

$$B_{5}(\delta',\theta') = MA_{\varphi}(\delta',\theta') \sum_{l=1}^{\infty} i^{l} \frac{(2l+1)}{l(l+1)} d_{E}(l) \frac{\Psi_{l}(pMx\delta')}{pMx\delta'} \rho_{l}^{1}(\theta')$$

Интегрирование по остальным координатам проводится численно. Формулы приведены только для одной поляризации падающего излучения, поскольку при обратном рассеянии результаты для обеих поляризаций совпадают. Использование выражений (3.36 - 3.37), полученных для случая обратного рассеяния, позволяют на несколько порядков сократить время вычисления по сравнению с общими выражениями (3.21-3.24).

Таким образом, полученные в данном параграфе формулы позволяют существенно сократить время вычислений. Как следствие, становится возможным моделирование неупругого рассеяния излучения частицами значительно больших размеров.

§ 3.2. Численное моделирования рамановского рассеяния излучения микросферами

Формулы, полученные в предыдущем разделе, были использованы при создании программы, позволяющей вычислять дифференциальное сечение неупругого рассеяния, для различных углов наблюдения и ориентаций поляризации падающего излучения. Вычисления проводились с малым шагом по параметру размера, что позволило выявить влияние резонансов на интенсивность и угловое распределение рассеянного излучения. Особое внимание уделяется моделированию обратного рассеяния водяными сферами, поскольку эта ситуация особенно важна при использовании рамановского лидара для изучения облаков.

Спектроскопия комбинационного рассеяния и флуоресценция широко используются для анализа микрочастиц [159, 160, 166-176] и биологических аэрозолей [177-179]. Одной из характеристик, отличающих некогерентное неупругое рассеяние от упругого (Ми), является вид фазовой функции (зависимость интенсивности рассеянного излучения от угла), которая для некогерентного рассеяния является достаточно гладкой и не содержит характеристического пика при рассеяния вперед. Другим отличием, является структура морфологических резонансов. При неупругом рассеянии наблюдаются два типа резонансов 1) резонансы падающей волны (входные резонансы) и 2) резонансы рассеянного излучения (выходные резонансы).

В данной работе вычисления проводились для прозрачных сред. Хотя алгоритм и позволяет работать с комплексными значениями коэффициента преломления, в рамках рассматриваемой задачи мы не моделировали эффекты, связанные с поглощением рассеивающей среды. Отношение длин волн рассеянного и падающего излучения предполагалось фиксированным, то есть неупругое рассеяние происходит на одной частоте. Молекулы рассматривались, как однородно поляризуемые, что допустимо во многих случаях. Например, для воды, которая является одним из основных объектов нашего исследования, интенсивность изотропного спектра более чем на порядок превосходит интенсивность анизотропного [180] (для частоты 3200 см⁻¹ и температуры 10 C^{0}).

Более сложная модель флуоресценции и комбинационного рассеяния, учитывающие различную ориентацию поглощающих, излучающих диполей и анизотропию поляризуемости молекул, представлена в работах [84, 181]. Несмотря на идеализированность рассматриваемой нами модели, она позволяет выявить основные эффекты, связанные с морфологией частиц и их оптическими свойствами.

Разработка подобных программных пакетов связана со значительными

- 174 -
трудностями. Одним из способов проверки корректности программы, является сравнение полученных результатов с существующими экспериментальными данными, а также с результатами расчетов для малых параметров размера, представленных в других работах. Существует несколько "точек привязки" такого рода, которые можно использовать при тестировании программы. Для больших частиц коэффициент обратного рассеяния должен быть линейно связан с объемом частицы, поскольку подобные линейные зависимости наблюдались во многих экспериментальных исследованиях [159, 160, 176]. Фазовая функция рассеяния для малых частиц должна согласовываться с расчетами работы [82], поскольку их результаты хорошо описывают основные особенности углового распределения интенсивности флуоресценции капель содержащих краситель [182, 183]. Деполяризация излучения рассеянного под углом 90⁰, для падающей волны с вертикальными результатами [184].

Особое внимание в исследовании уделено моделированию обратного рассеяния. поскольку именно оно соответствует случаю лидарного зондирования. рамановские лидары широко используются для измерения содержания водяного пара, и эта методика может быть использована, также для измерения параметров водяных капель в облаках. Первые эксперименты, однако, продемонстрировали, что рамановский сигнал от жидкой воды в атмосфере значительно превосходит величину, которую следовало бы ожидать исходя из типичных значений содержания воды в пограничном слое и известного сечения рамановского рассеяния [92, 94, 95-97]. В числе возможных причин такого расхождения называлось увеличения рассеяния в обратном направлении вследствие модификации фазовой функции, а также влияние морфологических резонансов. Для оценки вклада этих факторов в полное сечения обратного рамановского рассеяния, и определения зависимости мощности рассеянного излучения от размера микросферы, моделирование проводилось в широком диапазоне размеров частиц (до параметра размера x=500).

- 175 -

3.2.1. Угловые характеристики рамановского рассеяния излучения микросферами

Для падающего излучения с вертикальной (V) и горизонтальной (H) ориентацией поляризации, относительно плоскости рассеяния, в диссертации вычислялись интенсивности рассеянных компонент С поляризациями параллельными исходной (H_H , V_V), а также деполяризованные компоненты (V_H , H_V). Интенсивность рассеянного излучения нормализовалась на рассеяние сплошной среды, содержащей то же число диполей, что и микросфера. В процессе численного интегрирования использовалось 100 шагов по углу, соответственно $\Delta \theta = 1.8^{\circ}$ и $\Delta \phi = 3.6^{\circ}$. При радиальном интегрировании разбиение производилось на 100 интервалов, поэтому шаг интегрирования зависел от микросферы. При таком количестве размера радиальных интервалов вычисления могли производиться до х~150. При моделировании обратного вычисления (3.36,3.37), рассеяния для использовались формулы обеспечивающие большую скорость счета. Шаг интегрирования при этом мог быть уменьшен, и вычисления становились возможными до х~500.

Угловое распределение четырех рассеянных компонент: V_v, H_H, V_H, H_v представлено на рис. 3.1. Вычисления проводились при параметре x=20; угловом разрешении 2⁰; показателе преломления частицы n_1 =1.5, показателе преломления внешней среды n_2 =1, и отношении длин волн рассеянного и падающего излучения λ/λ_0 =1.196. Для сравнения, на этом же рисунке приведена фазовая функция рассеяния Ми, вычисленная при тех же параметрах. В отличие от рассеяния Ми, обладающего характерным пиком при рассеянии вперед, соответствующая компонента неупругого рассеяния Примерно вдвое превосходит соответствующие величины для других углов. Компонента H_H демонстрирует характерный минимум при рассеянии под углом 90⁰, этот

минимум обычно наблюдается при измерении углового распределения интенсивности флуоресценции капель красителя [182, 183]. Другое важное отличие от рассеяния Ми связано с деполяризацией рассеянного излучения. Деполяризация внутреннего поля приводит к появлению компонент V_H и H_v, что является специфической особенностью некогерентного рассеяния.

Для иллюстрации эволюции фазовой функции при изменении параметра размера, на рис.3.2 показаны компоненты H_H и V_v вместе с соответствующими коэффициентами деполяризации, как функции угла рассеяния, для x=0.2, 1, 2, 15 20. Величины n₁=1.5 и λ/λ_0 =1.196 взяты из публикации [82], поэтому можно сравнить результаты, полученные с использованием этих двух алгоритмов. Угловое распределение H_H на рис.3.2 соответствует рис.5 из [82], и полученные результаты хорошо согласуются. Для x=0.2 величина H_H зависит от угла примерно как cos² θ , и с увеличением размера частицы минимум, соответствующий углу 90⁰ постепенно замывается. Рассеяние волны с вертикальной поляризацией при x<0.2 не зависит от угла (рис.3.2б). Для x=1 сечение рассеяния уменьшается при θ =90⁰, но оно возрастает для обратного и попутного рассеяния. При x>15 минимум для θ =90⁰ исчезает, а обратное рассеяние в 2-3 раза превосходит попутное.

Рис.3.2в, г иллюстрирует угловую зависимость деполяризации компонент Н_н и V_v. Деполяризация вычисляется, как отношения V_H/H_H и H_v/V_v. Для Н волны минимум H_H при 90⁰ обуславливает сильную деполяризацию излучения, рассеянного под этим углом наблюдения: даже небольшая деполяризация внутреннего поля приводит к более эффективной генерации V_H по сравнению с H_H. С заполнением этого минимума, пик деполяризации становится шире, и его амплитуда уменьшается. Для x>2 деполяризация Н волны возрастает для всех углов. Для малых параметров размера (x<0.2) деполяризация V волны отсутствует, появляется с увеличением параметра но она размера. Деполяризация V волны меньше чем деполяризация Н волны и не превосходит 20%.

Зависимости интенсивностей $V_{\rm v}$ и $H_{\rm H}$ компонент, рассеянных под углами - 177 -

 θ =90⁰ и 180⁰, от параметра размера для n_1 =1.5 и 1.33 представлены на рис.3.3. Соответствующие зависимости являют собой медленно меняющиеся функции, расположены очень vзкие морфологические на которых резонансы. Вычисления проводились до параметра размера x=70 с шагом $\Delta x=0.005$. Полученные результаты сглаживались с интервалом Δx_{sm} =0.05, чтобы выявить поведение нерезонансной составляющей. Для компьютера с процессором Pentium III вычисление занимает ~100 часов для каждой величины показателя преломления. В соответствие с результатами предыдущего параграфа, для малых параметров размера x<0.01 нормализованная интенсивность рассеяния не зависит от размера частицы. В интервале 0.01<x<10, нормализованное рассеяние возрастает и достигает постоянного уровня, то есть оно становится пропорциональным объему микросферы. Для n₁=1.5 и 1.33 при θ=180⁰ асимптотические нерезонансные величины составляют V_V≈2.2 и 1.75 соответственно; при θ=90⁰ эти величины составляют V_V≈0.65; 0.8 и H_H ≈0.2; 0.15. Отношение интенсивностей рассеяния при 180° и 90° (I₁₈₀/I₉₀) возрастает с увеличением показателя преломления: ДЛЯ вертикальной поляризации $I_{180}/I_{90}=3.4$ и 2.2 для $n_1=1.5$ и 1.33 соответственно. Вычисления, проведенные в [185] в приближении быстро вращающихся диполей, при х~70, и n₁=1.36 дают величину І₁₈₀/І₉₀≈1.9. Отношение I₁₈₀/I₉₀ для ориентированных диполей рассчитанное в работе [186] в приближении геометрической оптики для больших сфер с n₁=1.33 дает величину I₁₈₀/I₉₀=2.9. Полученные нами результаты, также хорошо согласуются с результатами экспериментальных измерений увеличения интенсивности флуоресценции капель в обратном направлении [187]. Так, для n₁=1.59 и 1.34 экспериментально измеренные отношения составляют $I_{180}/I_{90}=3.2\pm0.3$ и 2.0±0.3 соответственно.

Деполяризация V_V и H_H компонент представлена на рис.3.4 как функция параметра размера при углах рассеяния $\theta = 90^{0}$ и 180^{0} . Вычисления проводились для показателя преломления n₁=1.5, остальные параметры соответствуют величинам, указанным на рис.3.3. Зависимость деполяризации

от размера, также может быть представлена в виде медленно меняющейся функции (пьедестала) на которой расположены морфологические резонансы. Для x>20 "пьедестал" деполяризации V_v компоненты при $\theta =90^{\circ}$ и 180[°] составляет около 10%, что согласуется с малыми величинами деполяризации, измеренными в работе [184]. Деполяризация H_H компоненты при угле рассеяния 90[°], для малых размеров (x<0.5) составляет около 40%, и в диапазоне 0.5<x<2 она резко уменьшается. Наблюдаемое уменьшение может быть понято из рис.3.2, где минимум H_H при угле 90[°] замывается с увеличением размера частицы. Для x>2 деполяризация снова начинает расти, достигая величины ~ 40%. Таким образом, при угле рассеяния 90[°] электромагнитные волны с горизонтальной и вертикальной ориентацией поляризации деполяризуются поразному.

3.2.2. Структурные резонансы при рамановском рассеянии

Влияние морфологических резонансов на интенсивность рассеянного излучения широко исследовалось как теоретически, так и экспериментально [166-168, 170-175, 188-191]. Экспериментальные исследования проводились в основном для 90⁰ геометрии рассеяния, в то время как вычисления, проводились для рассеянного излучения, проинтегрированного по всем углам, поскольку только в этом случае удавалось обеспечить достаточную скорость вычислений. Следовательно, ни угловые свойства, ни поляризационные характеристики морфологических резонансов исследованы не были. В данном разделе мы приводим результаты вычислений, иллюстрирующих влияние морфологических резонансов на интенсивность рассеянного излучения и его деполяризацию для различных углов рассеяния и ориентаций поляризации падающего излучения.

Для разделения входных и выходных резонансов удобно рассматривать рассеянное излучение вместе с резонансами внутреннего поля (функция

источника). Нормализованная, усредненная по объему функция источника

записывается как, $\frac{\int_{v}^{|\mathbf{E}_{1}|^{2}} dv}{v}$ где $v = \frac{4}{3}pa^{3}$ - объем частицы, а \mathbf{E}_{1} внутреннее поле.

На рис.3.5 показаны нормализованная функция источника, V_v компонента и ее деполяризация при θ =180⁰, в зависимости от параметра размера, в диапазоне 63.0 <x< 65.0. В вычислениях использовался показатель преломления n₁=1.33, волновой сдвиг λ/λ_0 =1.1 и шаг Δx =0.0001. Входные и выходные резонансы указаны на рис.3.5а и рис.3.5б соответственно. Резонансы идентифицировались, используя алгоритм, описанный в [192]. Интенсивность рассеянного излучения в резонансе может увеличиваться на несколько порядков. Амплитуды выходных резонансов на рис. 3.5 превосходят амплитуды соответствующих входных резонансов, за исключением резонанса TE¹₇₁, который является двойным, то есть входной и выходной резонансы накладываются друг на друга. Для параметров размера х соответствующих морфологическим резонансам, рассеянного прохождения резонансной волны вдоль поверхности сферы.

Относительные интенсивности резонансов зависят от угла рассеяния. На рис.3.6 показаны резонансы, для угла рассеяния $\theta = 90^{0}$ при вертикальной и горизонтальной ориентации поляризации падающего излучения. Расчеты проводились при тех же параметрах, что и на рис.3.5. Вычисления с разрешением $\Delta x = 0.0001$ занимали на компьютере с процессором Pentium III около двух недель. Для сравнения, на этом же рисунке показаны резонансы соответствующие обратному рассеянию. Положения резонансов при углах рассеяния 180⁰ и 90⁰ совпадают, но относительная интенсивность ТЕ и TM мод становится различной. Для V волны TM моды возбуждаются более эффективно, в то время как для H волны TE моды являются преобладающими.

Рис.3.7 иллюстрирует влияние резонансов на деполяризацию излучения при рассеянии под углом 90⁰. Как видно, в этом случае картина становится

более обратным рассеянием. сложной. ПО сравнению с поскольку интенсивность резонансов зависит от типа возбуждаемой моды. Для V волны деполяризация ТМ резонансов уменьшается, в то время как деполяризация ТЕ резонансов, наоборот, растет. Для Н волны ситуация обратная. Такое поведение объяснимо. Например, сильная деполяризация Н_н компоненты для угла 90°, в отсутствие резонансов, есть результат малой эффективности рассеяния Н волны по сравнению с V. ТЕ резонансы увеличивают эффективность рассеяния Н волны и, как следствие, деполяризация уменьшается. Напомним, что мы определяем деполяризацию как H_V/H_H. Для ТМ резонансов, наоборот, эффективность рассеяния V волны возрастает, и деполяризация также увеличивается. Следует заметить, что отношение V_H/H_H может превосходить 1, вследствие эффективного рассеяния деполяризованной компоненты на резонансе.

Входные и выходные резонансы влияют на деполяризацию рассеянного излучения различным образом. Для V волны (рис.3.7а) максимальное уменьшение деполяризации наблюдается для TM^{inp} резонансов, и эти же резонансы приводят к максимальной деполяризации Н волны (рис.3.7б). Поведение деполяризации становится особенно сложным для случая двойных резонансов. Так, например, резонанс TE_{71}^{1} на рис.3.7б проявляется, как пик внутри провала.

Морфологические резонансы приводят также к модификации фазовой функции рассеяния. Угловые распределения интенсивности рассеянного излучения, для параметров размера, соответствующих различным ТЕ и ТМ резонансам, показаны на рис.3.8. Угловое распределение интенсивности для x=63.02, при котором параметр размера находится вне резонанса представлено на рис.3.8a. Для этого параметра размера, фазовая функция рассеяния близка к представленной на рис.3.1 и не содержит значительных осцилляций. Угловое распределение изменяется, если параметр размера соответствует одному из резонансов. Для ТМ резонансов V_v компонента возрастает для всех углов, и фазовая функция становится сильно осциллирующей (рис.3.86). Для TE

- 181 -

(рис.3.8в), резонансов наоборот. H_H компонента рассеивается более эффективно, соответствующее угловое распределение И осциллирует. Подобные осцилляции углового распределения интенсивности излучения наблюдались. в частности. в экспериментах по вынужденному комбинационному рассеянию в каплях этанола [193], когда одна из мод была резонансной. Модификация углового распределения V_V и H_H компонент для различных типов слабых резонансов рассчитывалась также в работе [186] с использованием приближения геометрической оптики. Их результаты качественно согласуются с нашими, однако подход, используемый в [186] не позволял разрешать резонансную угловую структуру.

3.2.3. Рамановское рассеяние излучения микросферами в применении к задаче лидарного зондировани

Одной из основных целей данного исследования было моделирование ситуации, соответствующей рамановскому рассеянию излучения водяными каплями в облаках, при лидарных измерениях. Для получения количественной информации о содержании жидкой воды из лидарных измерений, необходимо знать величину сечения обратного рассеяния капель по отношению к сечению рассеяния сплошной среды, и зависимость этого отношения от размера капель. Использование формул (3.36, 3.37), выведенных для случая обратного рассеяния, позволяет производить вычисления для относительно больших микросфер. На рис.3.9 показаны нормализованное сечение рамановского рассеяния и деполяризация излучения, в зависимости от параметра размера. Вычисления проводились до x=500, при n_1 =1.33 и шаге Δx =0.05. Результаты, полученные при расчете деполяризации, сглаживались с интервалом $\Delta x_{av} = 0.5$. Для x>20 интенсивность рассеянного излучения пропорциональна объему микросферы. В вычислениях, приведенных на рис.3.9, не удается разрешить все резонансы, особенно для больших размеров, поскольку использованный шаг вычислений Δx был для этого недостаточен. Для оценки вклада морфологических резонансов в полную интенсивность рассеяния были проведены вычисления с шагом $\Delta x=5*10^{-5}$ в интервалах x=60÷65; 100÷105; и 200÷205. Интегрирование по всем резонансам дает величину V_v≈2 для x=60 и 100. Для x=200 эта величина была несколько меньше V_v≈1.9, что может быть, либо результатом недостаточно мелкого шага вычислений при таких размерах, либо результатом недостаточного количества используемых мультипольных коэффициентов l_{max} . Количество l_{max} определялось из соотношения $l_{max} = x + 4x^{1/3} + 2$, что достаточно для расчета упругого рассеяния плоской волны, но может оказаться недостаточным для вычисления высокодобротных резонансов внутреннего поля. Из проведенного моделирования можно заключить, что нормализованное сечение комбинационного рассеяния слабо зависит от размера микросфер, и для водяных капель сечение обратного рассеяния увеличивается примерно вдвое по сравнению со сплошной средой.

Деполяризация рассеянного излучения, как функция параметра размера, показана на рис.3.96. Максимальное значение деполяризации 12% достигается x~10, для больших размеров микросфер величина деполяризации при уменьшается до 4%. Деполяризация воды на участке спектра рамановского рассеяния, который может быть использован для лидарного зондирования, составляет 15-20% [194]. Таким образом, дополнительная деполяризация, вносимая микросферами, вряд ли может быть надежно зарегистрирована в процессе лидарных измерений. Экспериментально наблюдаемое увеличение деполяризации рамановского сигнала жидкой воды [96] должно быть обусловлено другими причинами. Это увеличение может быть связано с рассеянием излучения на твердых частицах в водяной оболочке, с влиянием вращательного спектра водяного пара, а также с рядом других факторов. Представленные результаты были получены для достаточно идеализированной ситуации. Реальный спектр рамановского рассеяния воды соответствует области частот от ~3100 cm⁻¹ до ~3600 cm⁻¹ [180]. Вследствие этого, пульсации интенсивности рассеянного излучения, обусловленные морфологическими резонансами, будут сглажены. Капли в реальных облаках представлены спектром размеров в диапазоне 0.5-20 мкм, что также приводит к сглаживанию резонансных эффектов. Тем не менее, это сглаживание не влияет на основной результат: интенсивность рамановского рассеяния пропорциональна объему капельной фазы, поэтому одновременное измерение рамановского сигнала жидкой воды и сигнала упругого рассеяния позволяет определять содержание жидкой воды.

В использованной модели предполагалось, что излучение диполя полностью поляризовано, однако в реальных молекулах деполяризация всегда присутствует. Учет молекулярной анизотропии незначительно влияет на результаты при рассмотрении падающей волны с вертикальной поляризацией, но для волны с горизонтальной поляризацией при рассеянии под углами близким к 90^0 учет молекулярной анизотропии становится существенным. Для корректного описания процесса рассеяния в этом случае необходимо рассматривать тензор поляризуемости [181]. Скорость вычислений, также может быть увеличена, используя переменный шаг Δx : более мелкий в окрестности резонансов и более грубый в интервалах между ними. Однако даже на этой стадии, разработанная программа позволяет понять основные особенности некогерентного рассеяния и может быть использована для анализа данных рамановского лидара, полученных при зондировании облаков.



Рис.3.1. Сравнение углового распределения интенсивности рассеянного излучения для рамановского рассеяния (а) и рассеяния Ми (б). Вычисления проводились для параметра размера x=20; углового шага $\Delta \theta = 2^0$; показателя преломления n₁=1.5 и отношения $\lambda/\lambda_0=1.196$.







Рис.3.2. H_H (а) и V_V (б) компоненты вместе с их деполяризациями V_H/H_H (в) и H_V/V_V (г) в зависимости от угла рассеяния при параметрах размера x=0.2, 1, 2, 15, 20; n_1 =1.5, λ/λ_0 =1.196.



Рис.3.3. Нормализованные V_V и H_H компоненты в зависимости от параметра размера для углов рассеяния 180^0 и 90^0 . Вычисления проводились при n_1 =1.5 (а) и 1.33 (б) с шагом Δx =0.005. Результаты сглажены с интервалом Δx_{sm} =0.05.



Рис.3.4. Деполяризация V_V и H_H компонент для углов рассеяния 90^0 (сплошная линия) и 180^0 (пунктир). Вычисления проводились для показателя преломления $n_1=1.5$ с шагом $\Delta x=0.005$. Результаты вычислений сглажены с интервалом $\Delta x_{sm}=0.05$.



Рис.3.5. Нормализованная функция источника (а), обратное рассеяние (б) и деполяризация (в) в зависимости от параметра размера; $n_1=1.33$, $\lambda/\lambda_0=1.1$, $\Delta x=0.0001$.



Рис.3.6. Нормализованная интенсивность рассеяния для углов 180^{0} (а) и 90^{0} (б, в) в зависимости от параметра размера для вертикальной (б) и горизонтальной (в) поляризации падающего излучения. Показатель преломления n_1 =1.33, волновой сдвиг λ/λ_0 =1.1, шаг Δx =0.0001.



Рис.3.7. Деполяризация излучения рассеянного под углом 90^0 для вертикальной (а) и горизонтальной (б) ориентации падающего излучения. Показатель преломления n₁=1.33; λ/λ_0 =1.1; Δx =0.0001.





Рис.3.8 Угловое распределение компонент V_V и H_H для параметра размера х вне резонанса (а) и для х соответствующих входным резонансам $TM_{71}^{1}(6)$ и $TE_{67}^{2}(B)$. Вычисления проводились с угловым шагом $\Delta\theta$ =0.5⁰; n₁=1.33.



Рис.3.9. Зависимость нормализованной интенсивности обратного рассеяния (а) и деполяризации (б) от параметра размера. Вычисления проводились для $\Delta x=0.05$, $n_1=1.33$, $\theta=180^0$ и $\lambda/\lambda_0=1.1$. Результаты для деполяризации сглажены с интервалом $\Delta x_{av}=0.5$.

§ 3.3. Основные результаты

Основные результаты, полученные в этой главе, могут быть сформулированы, как следующие:

Использование классических формул дипольной модели для описания некогерентного рамановского рассеяния для больших частиц оказывается невозможным, вследствие очень большого времени вычислений. Использование теоремы сложения для сферических гармоник в данном исследовании позволило исключить двойное суммирование в конечных выражениях и, как следствие, увеличить скорость вычислений.

Для геометрии соответствующей обратному рассеянию интегрирование по одному из углов было проведено аналитически, что увеличило скорость вычислений в ~ 200 раз. Полученные формулы позволили проводить моделирование рассеяния частиц, с параметрами размера х~500, что прежде не представлялось возможным.

Разработанная программа позволила рассчитать угловые и поляризационные характеристики рамановского рассеяния микросфер для широкого диапазона параметров размера. Несмотря на многочисленные упрощения, дипольная модель описывает базовые свойства некогерентного неупругого рассеяния и согласуется с существующими экспериментальными результатами.

Показано, что морфологические резонансы модифицируют угловое распределение интенсивности рассеянного излучения. Для параметра размера соответствующего ТМ или ТЕ резонансу, наблюдается резонансное увеличение V_V или H_H компоненты соответственно. Угловое распределение возросшей компоненты при этом становится осциллирующим. Резонансы влияют также на деполяризацию рассеянного излучения. Для обратного рассеяния все типы резонансов приводят к увеличению деполяризации. При рассеянии под углом 90⁰ деполяризация может либо возрастать, либо

- 196 -

уменьшаться, в зависимости от типа резонансов (ТЕ или ТМ) и ориентации поляризации падающего излучения.

Для частиц с параметром размера x>20 интенсивность излучения рассеянного под углом 180^0 пропорциональна объему частицы, при этом для $n_1=1.33$ (капли воды) сечение обратного рассеяния увеличивается примерно вдвое, по сравнению со сплошной средой. Таким образом, рамановское рассеяние может быть использовано в лидарных измерениях для определения содержания воды в облаках в жидкой фазе, и для оценки средних размеров капель.

Глава IV. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ РАМАНОВСКОГО ЛИДАРА ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ВАРИАЦИЙ СОДЕРЖАНИЯ ВОДЫ В АТМОСФЕРЕ В РАЗЛИЧНЫХ АГРЕГАТНЫХ СОСТОЯНИЯХ

Облака играют важную роль в формировании климата, вследствие их воздействия на радиационный баланс и гидрологический цикл. Одной ключевых характеристик облаков является содержание воды в различных фазах: жидкой, кристаллической и паровой. В данном разделе будет рассмотрена возможность использования рамановских лидаров для получения информации о содержании воды в различных агрегатных состояниях.

В первом параграфе приводится описание лидара, способного одновременно регистрировать сигналы упругого рассеяния и рамановские сигналы от основных составляющих атмосферы (N₂, O₂, H₂O, CO₂). Во втором параграфе исследуется возможность использования рамановского метода для определения содержания жидкой воды в капельных облаках. В третьем параграфе приведены результаты определения содержания льда в циррусных облаках с использованием рамановского лидара. Производится сравнение рамановского метода с результатами радарных измерений. В четвертом параграфе продемонстрирована возможность измерения содержания углекислого газа в тропосфере до высот в пять километров с использованием рамановского лидара. В пятом параграфе формулируются основные результаты, полученные в главе.

Глава написана на основании работ автора [<u>54</u>, <u>84</u>, <u>85</u>, <u>95-99</u>, <u>162</u>, <u>195</u>, <u>196</u>, <u>220</u>].

§ 4.1. Разработка рамановского лидара для атмосферных исследований

Данный рамановский лидар был создан в период 2001-2003 г. в рамках сотрудничества между Центром Физического Приборостроения ИОФ РАН и Лабораторией Рамановских Лидаров Годдаровского Центра НАСА. При создании системы был использован опыт ЦФП по созданию лидаров для измерений в тропосфере, стратосфере и мезосфере [118, 125, 197] и опыт многолетних измерений водяного пара рамановским лидаром в Годдаровском Центре [47].

4.1.1. Описание лидара

В качестве источника излучения в лидаре используется третья гармоника Nd:YAG лазера. Энергия лазера в импульсе на длине волны 354.7 нм превосходит 400 мДж при частоте следования импульсов 50 Гц. Диаметр лазерного пучка после телескопирования составляет 50 мм при расходимости менее 0.1 мрад. Излучение направляется в атмосферу зеркалом с электронной системой юстировки, для совмещения оптических осей телескопа и лазерного пучка.

Рассеянное в атмосфере излучение собирается телескопом Кассегрена с апертурой 600 мм и фокусным расстоянием 4 м. Поле зрения телескопа, используемое в измерениях, составляет 0.25 мрад. Конструктив анализатора спектра и его оптическая схема приведены на рисунке 4.1. Анализатор состоит из двух модулей: модуль регистрации сигналов упругого рассеяния и рамановский модуль. В первом модуле установлен поляризационный куб, для разделения сигнала на две компоненты с ортогональными ориентациями поляризаций. Пластина $\lambda/2$ перед кубом служит для согласования ориентаций поляризаций лазерного излучения и приемного устройства. Кроме того, часть оптического сигнала отводится в канал автоматической настройки лидара. Канал содержит матрицу 4×4 фоточувствительных детекторов, на которые

- 199 -

проецируется изображение входной диафрагмы телескопа. В процессе измерений система электронной юстировки способна автоматически удерживать изображение оптического сигнала с больших высот в центре входной диафрагмы.

В рамановском модуле измеряются сигналы азота (386.6 нм), кислорода (375 нм), водяного пара (407.5 нм) и жидкой воды (403 нм). При необходимости канал кислорода может быть использован для рамановского измерения углекислого газа (372 нм). Оптические сигналы разделяются между каналами при помощи дихроичных зеркал. Наиболее сложным является разделение близкорасположенных сигналов водяного пара и жидкой воды, соответствующая эффективность разделения составляет ~90%. Оптические сигналы регистрируются ФЭУ Нататаtsu R1924 работающие как в аналоговом режиме, так и в режиме счета фотонов.

Для выделения рабочих длин волн в приемном модуле используются интерференционные фильтры с ширинами полос пропускания 0.1 нм – 0.5 нм. Спектры пропускания интерференционных фильтров, используемых для измерения рамановских сигналов азота и водяного пара, приведены на рис.4.2. На этом же рисунке приведен рамановский спектр водяного пара [76]. Данный спектр имеет сложную структуру, поэтому в соответствующем канале использовался интерференционный фильтр с шириной полосы пропускания 0.3 нм. На рисунке 4.3 показаны типичные лидарные сигналы, измеряемые системой. Для оцифровки сигнала с ФЭУ использовались электронные модули LICEL позволяющие одновременную регистрацию в аналоговом режиме и в режиме счета фотонов.

Определение оптической толщины облаков

Вычисление оптической толщины облаков проводится с использованием сигнала рамановского рассеяния азота. В приближении однократного рассеяния оптическая толщина находится из выражения:

$$\int_{r_{1}}^{r_{2}} [a_{l_{L}}^{a}(r) + a_{l_{N}}^{a}(r)]dr = \ln\left(\frac{r_{1}^{2}N_{N}(r_{2}) \times P(l_{N}, r_{1})}{r_{2}^{2}N_{N}(r_{1}) \times P(l_{N}, r_{2})}\right) - \int_{r_{1}}^{r_{2}} [a_{l_{L}}^{m}(r) + a_{l_{N}}^{m}(r)]dr \quad (4.1)$$

где z_1 и z_2 определяют верхнюю и нижнюю границы облака, $\lambda_L = 354.7$ нм, λ_N длина волны рамановской компоненты азота (386.7 нм). N_N (z) концентрация азота. Для циррусных облаков экстинкция слабо зависит от длины волны, потому для определения α^a выражение (4.1) нужно разделить на 2.

Вычисление деполяризации

Одной из важнейших характеристик облаков, измеряемой лидаром, является коэффициент деполяризации излучения [198-200]. В лидарных измерениях обычно рассматриваются два типа деполяризации: полная, определяемая как

$$d^{m+a}(z) = \frac{b_{\perp}^{m}(z) + b_{\perp}^{a}(z)}{b_{\rm P}^{m}(z) + b_{\rm P}^{a}(z)} = \frac{R_{sc\perp}(z)}{R_{sc\rm P}(z)} d^{m}(z)$$
(4.2)

и аэрозольная, определяемая, как

$$d^{a}(z) = \frac{b_{\perp}^{a}(z)}{b_{\rm P}^{a}(z)} = \frac{R_{sc\perp}(z) - 1}{R_{sc\rm P}(z) - 1} d^{m}(z)$$
(4.3)

Здесь $\beta^{m,a}$ - коэффициенты обратного молекулярного и аэрозольного рассеяния; $R_{sc}(z) = \frac{b^a(z)}{b^a(z) + b^m(z)}.$

При калибровке деполяризационных измерений, в первую очередь сравнивались коэффициенты усиления ФЭУ в обоих каналах. Для этого проводились фоновые измерения в дневное время в условиях плотной облачности, поскольку солнечное излучение, рассеянное в облаках, полностью деполяризовано. Используя, определенное таким образом, отношение коэффициентов усиления, проводилось измерение деполяризации атмосферы в Измеренная величина составляла 1.67% отсутствие аэрозоля. вместо теоретически рассчитанного значения ~0.5% для ширины пропускания фильтра ~0.5А (фильтр, используемый в 354.7 нм канале). Избыточная деполяризация есть следствие расхождения ориентаций поляризации излучения лазера и оси поляризационного куба в приемном устройстве, деполяризации в оптических элементах и "просачивания" излучения между измерительными каналами. Соответствующая коррекция вводилась при обработке данных. Типичный результат измерения деполяризации циррусных облаков приведен на рис.4.4. Сильная деполяризация сигнала с максимальной величиной δ^a~60% обусловлена рассеянием на кристаллах льда.

4.1.2. Измерение содержания водяного пара

рамановские лидары широко используются для исследования содержания и переноса пара в атмосфере [47, 201-204], вследствие из высокого пространственного разрешения и относительной простоты, по сравнению с дифференциального поглощения. Дальность зондирования лидарами В подобных ограничена малой эффективностью системах рамановского рассеяния водяного пара в атмосфере, однако быстрый прогресс в разработке мощных УФ лазеров, оптических фильтров и фотодетекторов на сегодняшний день позволяют проводить измерения до высоты ~10 км в ночное время.

Типичные рамановские лидарные сигналы азота, водяного пара и углекислого газа, регистрируемые системой при времени накопления 5 минут и высотном разрешении 30 м, приведены на рис.4.3. Данная система способна обеспечить достаточную величину отношения сигнал/шум при измерении пара до высоты ~10 км и дот 5 км при измерении углекислого газа.

Содержание водяного пара вычисляется из отношения рамановских сигналов азота и водяного пара, с учетом эффекта дифференциальной экстинкции:

$$C_{vap} = K \frac{P_{vap}(z)}{P_{nitr}(z)} \times \frac{\mathbf{s}_{nitr}}{\mathbf{s}_{vap}} \times \frac{\exp\left[-\int_{z_0}^{z} (a_{nitr}^a(\mathbf{x}) + a_{nitr}^m(\mathbf{x}))\partial \mathbf{x}\right]}{\exp\left[-\int_{z_0}^{z} (a_{vap}^a(\mathbf{x}) + a_{vap}^m(\mathbf{x}))\partial \mathbf{x}\right]}$$
(4.4)

Здесь К – коэффициент, определяемый характеристиками системы; σ_{nitr;vap} – сечения рамановского рассеяния; α _{nitr;vap}^{a,m} – коэффициенты аэрозольной и молекулярной экстинкции для рамановских сигналов.

Калибровка рамановского лидара при измерении содержания водяного пара может быть осуществлена, используя коэффициенты пропускания оптических трактов приемной системы и отношение сечений рамановского рассеяния водяного пара и азота. Однако погрешность измерения данного отношения составляет ~10%, [203], что ограничивает предельную точность лидарных измерений. Альтернативным подходом к калибровке лидара служит использование интегрального по высоте содержания пара, определенного из измерений микроволновыми радиометрами или с использованием системы спутников глобального позиционирования (в этом методе производится сравнение разности фаз сигналов от различных GPS спутников). Оба эти метода использовались при калибровке описанного лидара.

Типичная временная эволюция содержания водяного пара иллюстрируется рис.4.5, измерения проводились в период с 19:30-24:00. Содержание водяного пара в пограничном слое уменьшается со временем, достигая минимального значения около полуночи. Система способна проводить измерение с 10% точностью до высот ~10 км в ночное время и до 5 км в дневное время при времени накопления сигнала 30 минут.





Рис.4.1. Конструкция и оптическая схема анализатора спектра рамановского лидара.



Рис.4.2. Спектр пропускания интерференционного фильтра используемого в измерениях рамановского сигнала азота (а) и водяного пара (б).



Рис. 4.3. Лидарные сигналы рамановского рассеяния азота, водяного пара и углекислого газа. Время накопления 5 минут, высотное разрешение 30 м.



Рис.4.4. Деполяризация δ^а лидарного сигнала в циррусных облаках измеренная в течение 10 часов.



Рис.4.5. Временные вариации содержания водяного пара за период 20:00 – 24:00. Шкала на цветной панели соответствует изменению содержания водяного пара в килограмме сухого воздуха от 0.1 до 15 г/кг.

§ 4.1. Использование рамановского лидара для определения содержания жидкой воды в атмосфере

рамановский лидар может быть использован для измерения содержания не только водяного пара, но и жидкой воды. Более того, данный метод позволяет также оценивать средний размер капель. Как уже отмечалось во введении, определение среднего размера частиц и содержания жидкой воды в облаках является одним из ключевых факторов при анализе воздействия косвенного аэрозольного эффекта на радиационный баланс планеты.

Спектр рамановского рассеяния воды приведен на рис.4.6. Наиболее интенсивные области спектра находятся в частотном диапазоне 2800 см⁻¹ – 3900 см⁻¹. Центр линии водяного пара соответствует частоте 3657 см⁻¹, таким образом, рамановские контуры жидкой воды и водяного пара до некоторой степени перекрываются. Малый частотный сдвиг рамановских контуров относительно друг друга делает необходимым использование узкополосных лазеров, при проведении измерений. Оценка относительного вклада жидкой фазой в рамановский сигнал водяного пара была проведена в работах [92- 94], где анализировались результаты зондирования облаков, и наблюдаемое увеличение сигнала водяного пара связывалось с рамановским рассеянием жидкой воды. Однако в этих работах использовалось широкополосное излучение XeF лазера, поэтому рамановские спектры жидкой и паровой фаз не могли быть разделены. В дано параграфе приводятся результаты раздельного измерения рамановских сигналов жидкой и паровой фаз воды в атмосфере.

4.2.1. Рамановское рассеяние жидкой воды в пограничном слое

Первый этап лидарных исследований рамановского рассеяния жидкой воды в атмосфере был проведен автором в 1999. Измерения проводились с использованием третьей гармоники Nd:YAG лазера. Энергия излучения в импульсе составляла 120 мДж при частоте повторения импульсов 30 Гц. - 207 -

Лидарный сигнал регистрировался с использованием Ньютоновского телескопа с апертурой 30 см. В спектроанализаторе оптический сигнал разделялся дихроичным зеркалом на два канала. Один канал использовался для регистрации рамановского сигнала азота (387 нм) либо сигнала упругого рассеяния (354.7 нм). Во втором канале измерялись рамановские сигналы жидкой воды (401.5 нм) или водяного пара (407.5 нм). Для изменения рабочей длины волны в каналах производилась замена интерференционных фильтров. Оптические сигналы регистрировались ФЭУ, работающими в аналоговом режиме и оцифровывались 12 разрядными АЦП с частотой 30 мГц. В одном измерении усреднялось 10,000 лазерных В типичном импульсов. двухканальном анализаторе водяной пар и жидкая вода не могли измеряться одновременно, и задержка между измерениями составляла 10 минут. Данная система была разработана и изготовлена в ЦФП ИОФ РАН по заказу Корейского Института Атомной Энергии. Измерения проводились в октябреноябре 1999 в Южной Корее.

Методика измерений

На рис. 4.6 приведен спектр рамановского рассеяния жидкой воды, а также спектры пропускания интерференционных фильтров, используемых в измерениях. Ширина полосы пропускания фильтров, доступных на момент проведения исследования, составляла около 3 нм, поэтому для минимизации просачивания рамановского сигнала водяного пара в канал жидкой воды, центр контура пропускания соответствующего фильтра выбирался в районе 401.5 нм.

Лидарные сигналы Р определялись из решения системы уравнений:

$$P'_{liq} = T_{liq}(\lambda_{liq})P_{liq} + T_{liq}(\lambda_{vap})P_{vap}$$

$$P'_{vap} = T_{vap}(\lambda_{vap})P_{vap} + T_{vap}(\lambda_{liq})P_{liq}$$

Где Р' – лидарные сигналы регистрируемые в процессе измерений, T_{liq}(λ), T_{vap}(λ) – спектры пропускания фильтров. Для жидкой воды коэффициент пропускания вычислялся как:

$$T_{liq}(I_{liq}) = \frac{\int_{0}^{\infty} F_{liq}(I) T_{liq}(I) dI}{\int_{0}^{\infty} F_{liq}(I) dI}$$

где $F_{liq}(\lambda)$ – спектр рамановского рассеяния жидкой воды. Просачивание сигнала жидкой воды в канал водяного пара характеризовалось коэффициентом

$$T_{vap}(l_{liq}) = \frac{\int_{0}^{\infty} F_{liq}(l) T_{vap}(l) dl}{\int_{0}^{\infty} F_{liq}(l) dl}$$

Для данной системы T_{vap}(λ_{liq})≈9%, и просачивание сигнала пара в канал воды T_{liq}(λ_{vap})= T_{liq}(407.8 nm)= 0.15%.

Сечение рамановского рассеяния жидкой воды в расчете на молекулу в 5-6 раз превосходит соответствующую величину для пара [205-209]. Однако, в отличие от водяного пара, при определении содержания жидкой воды необходимо принимать во внимание вид фазовой функции рамановского рассеяния каплями, а также эффекты, связанные co структурными (морфологическими) резонансами. Результаты, полученные в предыдущей, главе демонстрируют, что эти факторы приводят к двукратному увеличению обратного рассеяния, и этот результат слабо зависит от размера частиц.

Дополнительная информация о процессе рассеяния может быть получена также из измерений деполяризации. Как уже отмечалось в предыдущем параграфе, эта техника широко используется в лидарах упругого рассеяния для различения капельных облаков (сферические частицы) и облаков содержащих кристаллы льда (частицы нерегулярной формы).

При проведении измерений деполяризации, в приемный модуль лидара устанавливалась призма Глана, что позволяло разделять оптический сигнал на компоненты с поляризацией параллельной P_{||} и перпендикулярной P_⊥ по отношению к поляризации лазерного излучения. Таким образом, для каждого из рамановских сигналов деполяризация могла быть рассчитана из соотношения $\delta = P_{\perp}/P_{||}$. Деполяризация сигнала при колебательном рамановском рассеянии зависит от параметров колебательного перехода молекулы, а также от вклада, обусловленного ближайшими вращательными линиями, попадающими в полосу пропускания фильтра. Деполяризация колебательной компоненты для водяного пара составляет $\delta_V < 6\%$ [210]. Однако величина, измеряемая в эксперименте, должна быть выше, вследствие вклада вращательных линий. Деполяризация рамановского сигнала жидкой воды δ_{liq} определяется деполяризацией молекул воды в сплошной среде δ_{liqB} и эффектами, обусловленными сферичностью капель δ_{liqDr} :

 $\delta_{liq} = \delta_{liqB} + \delta_{liqDr}$

Деполяризация рамановского сигнала жидкой воды δ_{liqB} зависит от частотного интервала, в котором рассматривается рамановский сигнал. Для спектра пропускания фильтра приведенного на рис.4.6 при T=21^oC, $\delta_{liqB} \approx 15\%$ [211]. Следует отметить, что в спектральном диапазоне 405 нм – 410 нм (область, где полоса пропускания фильтра в канале регистрации водяного пара перекрывается со спектром жидкой воды) спектр характеризуется высоким значением деполяризации $\delta_{liqB} \approx 30\%$. Величина δ_{liqDr} , как показывают расчеты, проведенные в главе 3, не превосходит 4-5%.

На первом этапе исследований измерения проводились только в отсутствие облаков. Для исключения эффектов, связанных с изменением состояния атмосферы, серия измерений повторялась несколько раз. При измерении деполяризации проводилась коррекция результатов на различную эффективность приемных каналов, и на эффекты просачивания сигнала из канала в канал. Следует отметить, что при вычислении деполяризации сигнала упругого рассеяния δ_{el} , вклады молекулярной и аэрозольной компонент не разделялись (полная деполяризация). Поэтому при малом содержании аэрозоля, измеряемая величина δ_{el} составляла 1.5±0.2%, что типично для молекулярного рассеяния [212].

- 210 -
Результаты

При вычисления коэффициента экстинкции аэрозоля по данным лидарного зондирования использовались метод Клетта и рамановский метод. Соответствующие формулы приведены во второй главе диссертации. Профили экстинкции рассчитывались для высот z>600 м, где геометрический фактор системы близок к единице (область соответствующая полному вхождению лазерного пучка в поле зрения телескопа). Результаты измерения содержания водяного пара жидкой воды представлены В виде отношений И соответствующих рамановских сигналов к рамановскому сигналу азота (P_{vap}/P_{nitr:} P_{lig}/P_{nitr}) с коррекцией на коэффициенты пропускания фильтров. Отношение P_{vap}/P_{nitr}=0.1 для данной системы соответствует содержанию пара в килограмме сухого воздуха 20±2 г/кг.

На рис.4.7 представлены отношения P_{vap}/P_{nitr} ; P_{liq}/P_{nitr} , и вертикальный профиль коэффициента экстинкции аэрозоля, измеренные 29 октября 1999. На рис.4.7б приведены также деполяризации рамановских сигналов и сигнала упругого рассеяния. В процессе измерений была доступна информация метеорологической станции о температуре и относительной влажности на высоте 27 м. Для профилей представленных на рис.4.7 эти величины составляли 7°С и 63%, соответствующее содержание водяного пара - 6 г/кг. Содержание пара, измеренное лидаром на высоте 400 м, составляло 4.8 г/кг. Содержание жидкой воды при данных погодных условиях должно быть очень низким. При низком содержании воды, в соответствующий сигнал P_{liq} могут вносить заметный вклад вращательные линии водяного пара и флуоресценции аэрозоля. Наблюдаемый профиль P_{liq}/P_{nitr} близок к P_{vap}/P_{nitr} , что видимо и обусловлено вкладом этих факторов.

Деполяризация рамановского сигнала азота составляла δ_{nitr} =8±0.5% и не зависела от высоты. Соответствующая величина, измеренная в работе [213] δ_{nitr} =9.8%, расхождение в результатах может быть связано с различными полосами пропускания фильтров и, как следствие, с различным вкладом вращательных компонент. Отсутствие высотной зависимости δ_{nitr} , - 211 -

подтверждает, что геометрические факторы для обоих каналов близки и не влияют на отношение сигналов при высотах z>400 м. Вертикальный профиль деполяризации рамановского сигнала азота использовались для периодической проверки корректности настройки системы.

Деполяризация сигнала водяного пара на малых высотах составляет около 14%. Для жидкой воды эта величина была значительно выше: на высоте 400 м $\delta_{liq} \approx 55\%$ и при z=1200 м $\delta_{liq} \approx 75\%$. В пограничном слое (ПС) значительная часть воды может содержаться в аэрозоле, и в виде твердых частиц с водяной оболочкой. Деполяризация сигнала, при рамановском рассеянии такими частицами, может быть высокой. Величина деполяризации δ_{liq} значительно превосходит δ_{vap} , следовательно, просачивание сигнала жидкой воды в канал пара должно приводить к увеличению δ_{vap} . Этот эффект наблюдается на высотах свыше 1300 м, где величина δ_{vap} возрастает до 20%. Деполяризация сигнала упругого рассеяния составляет около 2.5% внутри пограничного слоя и уменьшается до 1.5% за его пределами. Такое поведение δ_{el} характерно для малого содержания водного аэрозоля внутри пограничного слоя.

На рис.4.8 представлены результаты аналогичных измерений от 4 ноября. Лидарное отношение сильно варьируется V верхнего края пограничного слоя, поэтому профиль экстинкции вычислялся рамановским методом. В этот день отношение P_{lia}/P_{nitr} на малых высотах вдвое выше, чем это наблюдалось 29 октября. Увеличение экстинкции при z>800 м совпадает с ростом P_{liq}/P_{nitr} и приводит, также, к росту деполяризации рамановского сигнала пара. Деполяризация сигнала упругого на малых высотах уменьшается, но при z>1250 м δ_{el} возрастает до 4%. Подобные всплески δ_{el} у края пограничного слоя наблюдаются достаточно часто и видимо, обусловлены слоями сухого аэрозоля.

Деполяризация сигнала упругого рассеяния коррелирует с изменением относительной влажности внутри пограничного слоя. На рисунке 4.9 показаны

- 212 -

профили экстинкции и δ_{el} измеренные 8 ноября в 16:00, 17:45 и 20:45. Соответствующие температуры на высоте 27 м составляли: 17.3^oC, 15.8^o C, 13.2^o C, а относительные влажности 53%, 59%, 75.5%. Профили экстинкции рассчитывались методом Клетта. Штриховая линия на рисунке показывает также один из профилей, рассчитанных рамановским методом. Лидарное отношение в этот день варьировалось незначительно, поэтому оба метода приводят к близким результатам, однако метод Клетта позволяет определять $\alpha(z)$ до больших высот. В рассматриваемом временном интервале, верхняя граница ПС поднималась, и δ_{el} внутри ПС уменьшалась. В 16:00 у верхней границы ПС отчетливо наблюдается увеличение δ_{el} в виде "пичка", свидетельствующее о присутствии сухого аэрозоля. В процессе движения границы ПС вверх относительная влажность на рассматриваемой высоте увеличивается, аэрозоль впитывает влагу, трансформируется в сферический и пичок в поведении δ_{el} исчезает.

рамановское рассеяние жидкой водой Сильное может являться источником погрешностей при измерении водяного пара. Оценка соответствующей погрешности иллюстрируется рис.4.10 по данным от 9 ноября. На рисунке приведен профиль α(z) вместе с вертикальным профилем отношения. Данный график хорошо лидарного иллюстрирует, что использование метода Клетта в подобной ситуации приводит к серьезным погрешностям в определении α(z). Для коррекции результатов измерения водяного пара, рамановский контур жидкой воды представлялся в виде суперпозиции четырех Гауссовых функций с параметрами, взятыми из [77, 88]. Скорректированный профиль водяного пара изображен на рис.4.10 штриховой линией. После коррекции содержание пара у границы ПС уменьшилось на 20%. Рамановский сигнал жидкой воды растет одновременно с ростом экстинкции, в то время как сигнал от водяного пара после коррекции меняется незначительно. Рост содержания жидкой воды сопровождается также уменьшением δ_{el} , вследствие обводнения аэрозоля. Рассмотренный пример

- 213 -

иллюстрирует важность рассмотрения влияния рамановского рассеяния жидкой воды при измерении водяного пара, особенно при использовании широкополосных источников излучения, таких как эксимерные лазеры.

Все рассмотренные выше измерения проводились, главным образом, внутри пограничного слоя, в отсутствие облачности. Значительная часть жидкой воды при таких условиях может содержаться в водорастворимых аэрозолях, либо в виде водяной оболочки нерастворимых частиц. Косвенным подтверждением этого может служить высокая деполяризация рамановского сигнала. Количественный анализ содержания воды по данным зондирования в такой ситуации затруднен. Поэтому особый интерес представляет проведение измерений рамановского сигнала жидкой воды в облаках.

Пример такого рода измерений представлен на рис.4.11 Высотные профили отношений P_{vap}/P_{nitr} , P_{liq}/P_{nitr} измеренные 14 мая 1999 в период с 20:00 по 22:00 на рисунке смещены относительно друг друга на величину 0.1. В отличие от распределений водяного пара, временные вариации, которых не меняли общего вида распределения, вариации рамановского сигнала жидкой воды были более значительны. Изначально, в 20:18, отношение P_{vap}/P_{nitr} достаточно мало (около 0.015), однако со временем это отношение возрастает, как внутри пограничного слоя, так и на больших высотах. Граница ПС отчетливо видна на профилях водяного пара, однако она отсутствует на профилях P_{liq}/P_{nitr} . Отношения P_{vap}/P_{nitr} , P_{liq}/P_{nitr} ведут себя различным образом и на больших высотах. Уменьшение содержания водяного пара при z>2,5 км в период с 21:15 по 21:30 соответствует увеличению P_{liq}/P_{nitr} .

Результаты представленные в данном разделе демонстрируют возможности рамановской методики для изучения содержания жидкой воды в атмосфере. Опыт проведения измерений показал, однако, что возможности используемого лидара весьма ограничены. Для получения количественных результатов при зондировании облаков необходимо использование многоканального анализатора спектра для одновременной регистрации всех интересующих сигналов. Для проведения измерений на больших высотах

- 214 -

мощность лазерного источника, равно как и диаметр приемного телескопа, должны быть увеличены. Регистрация слабых сигналов рамановского рассеяния должна проводиться в режиме счета фотонов. Возможность продолжить проведение этих исследований на системе с требуемыми характеристиками представилась в период 2002-2004 при создании лидара, описание которого приведено в параграфе 4.1.

4.2.2. Рамановское рассеяние жидкой воды в облаках

Проведение измерений содержания жидкой воды в облаках проводилось на лидаре, схема приемного модуля, которого приведена на рис.4.1. Спектральные области пропускания фильтров, используемых в измерениях, вместе с рамановским спектром жидкой воды приведены на рис.4.12. Использование узкополосного фильтра для измерения водяного пара позволяет минимизировать влияние жидкой воды на соответствующие измерения.

Типичные высотные профили отношений P_{vap}/P_{nitr} ; P_{liq}/P_{nitr} измеренные в ноябре 2003 приведены на рис.4.13. На этом же рисунке показан профиль температуры, измеренный радиозондом. На высотах менее 3 км температура положительна, поэтому облака должны состоять из водяных капель. На рис.4.14 показаны также профиль относительного рассеяния R_{sc} (отношение полного рассеяния к молекулярному) и лидарный сигнал в канале измерения деполяризации. Увеличение сигнала рамановского рассеяния жидкой воды P_{liq}/P_{nitr} на высоте 2.5 км не сопровождается существенным увеличением P_{vap}/P_{nitr} . Кроме того, увеличение R_{sc} на этой высоте не сопровождается ростом деполяризации, то есть рассеяние происходит на сферических каплях.

Для проведения количественных измерений содержания жидкой воды лидарная система должна быть откалибрована. В измерениях использовалась калибровка, проведенная для водяного пара, поскольку пропускание оптики и атмосферы для этих двух рамановских сигналов близки. Калибровка проводилась по интегральному по высоте содержанию пара, измеренному микроволновым радиометром. При вычислении содержания жидкой воды учитывались спектральные характеристики дихроичного зеркала, разделяющего рамановские сигналы параметры воды И пара, интерференционных фильтров и спектр рамановского рассеяния воды. ФЭУ Коэффициенты усиления обоих были Выбор одинаковы. соответствующих напряжений питания, осуществлялся сравнением функций распределения одноэлектронных импульсов ФЭУ, а также измерением фоновой засветки. Сечение рамановского рассеяния для жидкой воды примерно в 4-6 раз превосходит соответствующее значение для водяного пара [205-209]. Кроме того, обратное рассеяние увеличивается примерно вдвое за счет сферичности капель, как это было показано в третьей главе.

На рис.4.15 показаны результаты, полученные 1 ноября 2003 при измерении низкого облака, с нижней границей на высоте 0.9 км. Измерения проводились более часа, и на рисунке приведена временная вариация содержания воды для нескольких слоев, отстоящих друг от друга на 50 м. Содержание воды быстро растет с высотой. Однако при глубине свыше 150 м, увеличиваются погрешности измерения, проникновения вследствие сильного ослабления лазерного излучения в облаке. Полученное содержание воды типично для облаков, однако для проверки корректности калибровки, необходимо сравнение результатов лидарных измерений с данными других методик.

Сравнение результатов полученных рамановским лидаром И приведено на рис.4.16. Содержание миллиметровым радаром воды, определенное рамановским методом примерно в 4 раза (ζ=4) превосходит величину, полученную из радарных измерений, но их относительные высотные Калибровочные профили согласуются достаточно хорошо. измерения проводились несколько раз, и величины ζ варьировались в диапазоне 4-5. Столь сильное расхождение лидарного и радарного метода может быть обусловлено существующим разбросом значений сечения рамановского рассеяния воды. Кроме того, фазовая функция рамановского рассеяния капель

- 216 -

вычислялась из дипольной модели и не учитывала реальную структуру молекул воды.

Определение корректных значений эффективного сечения обратного рамановского рассеяния воды в капельной фазе, возможно, видимо, лишь при проведении соответствующих экспериментов в аэрозольной камере, позволяющей контролировать содержание воды и средний размер капель. Следует отметить также, что подобные измерения необходимо проводить при одновременном контроле рамановского спектра рассеяния воды. При обработке результатов использовался спектр, измеренный в лабораторных предварительные условиях. Однако результаты лидарных измерений рамановского рассеяния воды в различных спектральных интервалах, проведенных в ИОА РАН [214], показывают, что при рассеянии в облаках рамановские спектры могут отличаться. Тем не менее, при использовании калибровочного коэффициента ζ, полученного из радарных измерений, возможно определение содержания жидкой воды в облаках существующим рамановским лидаром.



Рис.4.7. Вертикальные профили отношения рамановских сигналов пара и жидкой воды к сигналу азота P_{liq}/P_{nitr} , P_{vap}/P_{nitr} (a), а также деполяризация сигнала упругого рассеяния δ_{el} , деполяризация рамановских сигналов азота δ_{nitr} , пара δ_{vap} и жидкой воды δ_{liq} (б) по результатам измерений 29 октября 1999. Пунктирная линия показывает вертикальный профиль экстинкции аэрозоля вычисленный методом Клетта для лидарного отношения R=40 ср.



Рис.4.8 Вертикальные профили отношения рамановских сигналов пара и жидкой воды к сигналу азота P_{liq}/P_{nitr} , P_{vap}/P_{nitr} (a), а также деполяризация сигнала упругого рассеяния δ_{el} , деполяризация рамановских сигналов азота δ_{nitr} , пара δ_{vap} и жидкой воды δ_{liq} (**б**) по результатам измерений от 4 ноября 1999. Коэффициент экстинкции аэрозоля вычислен рамановским методом.



Рис.4.9 Вертикальные профили экстинкции аэрозоля, вычисленные методом Клетта (а) и деполяризации сигналов упругого рассеяния (б) измеренные 8 ноября 1999 в период с 16:00 – 20:45. Пунктирная линия показывает профиль экстинкции, вычисленный рамановским методом.



Рис.4.10 Лидарное отношение и коэффициент экстинкции аэрозоля, рассчитанный рамановским методом (сплошная линия) и методом Клетта (пунктирная линия) (а), а также отношения P_{vap}/P_{nitr} , P_{liq}/P_{nitr} и деполяризация сигнала упругого рассеяния (б) по измерениям от 9 ноября 1999. Пунктирная линия на рис.4.10б показывает профиль водяного пара, после коррекции вклада, обусловленного рамановским рассеянием жидкой воды.



Рис.4.11 Высотные профили отношений P_{vap}/P_{nitr} , P_{liq}/P_{nitr} измеренные в период с 20:00 по 22:00.



Рис. 4.12. Спектр пропускания фильтров для измерения водяного пара (407.8 нм), и жидкой воды (400 – 406 нм). На этом же рисунке показан рамановский спектр обратного рассеяния жидкой воды [89].



Рис.4.13. Отношения рамановских сигналов водяного пара и жидкой воды к сигналу азота. Штрих-пунктирная лигния показывает высотный профиль температуры, измеренный радиозондом.



Рис.4.14. Относительное рассеяние R_{sc} (отношение полного рассеяния к молекулярному) и лидарный сигнал в канале деполяризации для измерений представленных на рис.4.13.



Рис.4.15 Временная эволюция содержания жидкой воды в облаке, измеренная рамановским лидаром 1 ноября 2003. Нижняя граница облака находится на высоте z=0.9 км. Результаты приведены для слоев толщиной $\Delta z=50$ м.



Рис.4.16 Сравнение результатов измерения содержания жидкой воды в облаке рамановским лидаром и радаром. Величина, полученная из лидарных данных, уменьшена в 4 раза.

§ 4.3. Измерения содержания льда в циррусных облаках

рамановский метод позволяет измерять содержание воды не только в жидкой, но и в кристаллической фазе. Спектры рамановского рассеяния льда [74] и воды [89] приведены на рис.4.17. На этом же рисунке приведена полоса пропускания фильтра, используемого в лидарной системе. Хотя фильтр и не проектировался специально для измерения содержания льда, он пропускает значительную часть соответствующего спектра.

Спектр рамановского рассеяния льда зависит от температуры. Общим свойством рамановских спектров является их сдвиг в сторону больших частот с увеличением температуры [215]. Температурные эффекты при рамановском рассеянии в кристаллах льда достаточно хорошо изучены [216, 217]. Рамановский спектр льда зависит, также от типа кристаллической решетки. При тропосферных температурах и давлениях лед находится в основном в Ih фазе (гексагональная структура). Для этого типа решетки рамановский спектр изменяется с температурой (в диапазоне слабо типичных вариаций температуры в тропосфере). Поэтому на первом этапе исследования рамановский спектр льда предполагается неизменным. Рамановский сигнал пропорционален полному количеству молекул вещества, и содержание льда может быть рассчитано из выражения:

$$n_{ice} = \frac{P_{ice}(z)}{P_{N_2}(z)} K b_{N_2}(z) \exp(-\int_0^z (a(l_{N_2}, z') - a(l_{ice}, z')) dz')$$
(4.5)

Здесь $\beta_{N2}(z)$ высотный профиль коэффициента рамановского рассеяния азота. Параметр *K* включает отношение сечений рассеяния льда и азота, а также эффективности соответствующих оптических трактов. Выражение в экспоненте определяет дифференциальную экстинкцию атмосферы для рамановских сигналов азота и льда. Зная содержание льда и коэффициент экстинкции облака, из лидарных измерений можно определить эффективный

- 226 -

размер частиц *D*_{eff} на основе эмпирических формул [218]:

На рис.4.18приведен результат измерений от 12 ноября 2003 при времени накопления 10 минут. Циррусное облако было расположено в высотном интервале 6 - 9 км, оптическая толщина облака, определенная из лидарных измерений, составляла ~1.2. Резкое увеличение сигнала обратного рассеяния на длине волны 355 нм совпадало с увеличением рамановского сигнала в канале для измерения жидкой воды. Поскольку вода в циррусном облаке при низкой температуре находится в кристаллическом состоянии, то данный сигнал обусловлен рамановским рассеянием льда.

Калибровку лидара (определение параметра *K*), в принципе можно провести, зная коэффициенты пропускания оптических элементов и рамановское сечение рассеяния. Однако опыт измерения содержания жидкой воды показал, что погрешность такой калибровки может быть достаточно высока. Альтернативный подход к определению *K* состоит в использовании данных о содержании льда, полученных другими методиками, например при совместном использовании радара и лидара [71]. Этот (лидарно-радарный) алгоритм для оценки содержания n_{ice} использует коэффициент экстинкции циррусного облака, полученный из лидарных измерений и коэффициент отражения радарного сигнала Z_e . Точность определения n_{ice} и содержания льда в столбе $Z = \int_{-mm}^{mm} n_{ice}(z')dz'$ зависит от погрешности вычисления $\alpha(z)$ и оптической толщины $\int_{-mm}^{mmm} a(z')dz'$ соответственно. Оптическая толщина определяется с

толщины $\int_{z_{min}}^{z_{max}} a(z')dz'$ соответственно. Оптическая толщина определяется с меньшими погрешностями, поэтому именно она использовалась для нахождения калибровочного параметра *K*.

В процессе измерений рядом с рамановским лидаром располагался радар миллиметрового диапазона. Коэффициент отражения радарного сигнала от циррусных облаков совместно с рамановским сигналом азота использовался для вычисления интегрального содержания льда Z и калибровки рамановского лидара.

- 227 -

Для проверки воспроизводимости такого рода калибровки, было, рассмотрено пять различных измерений, соответствующие результаты сведены в таблицу 4.1. Рассмотренные ситуации соответствуют диапазону вариации температуры внутри облаков от -24 до -60 С⁰ при оптической толщине меняющейся от 0.05 до 2. Величина параметра К, вычисленная для этих измерений, варьировалась от 1.813 до 3.284. По сравнению с другими днями, величина К измеренная 2 ноября 2003 была достаточно мала. Это соответствовало случаю оптически тонкого облака с малой величиной и малым коэффициентом отражения радарного сигнала Z_e . Погрешность определения K в этом случае гораздо выше, вследствие меньшего отношения сигнал/шум в рамановском канале и высоких погрешностей определения оптической толщины и **Z**_e. Исключая этот случай, средняя величина *K* составляла 2.875 при стандартном отклонении 0.339, что составляет ~ 11.8% от среднего. В дальнейшем при определении содержания льда использовалось именно это среднее значение К.

Интенсивность рамановского рассеяния пропорциональна количеству молекул, хотя спектр может варьироваться с температурой. Для используемого фильтра, изменение пропускания рамановского сигнала льда при варьировании температуры в диапазоне 40 градусов, не превосходит 5 %. Поэтому величину К можно считать неизменной для данной оптической конфигурации лидара.

Используя это среднее значение *К* можно получить профили n_{ice} для всех Ha рис.4.19 приведено временное поведение случаев. интегрального содержания льда в облаке вычисленное по рамановскому сигналу и по совместным данным лидара И радара. Полученные результаты ДЛЯ большинства измерений находятся в хорошем согласии. Потенциально рамановская методика более корректна, поэтому различия, наблюдаемые в отдельных измерениях, могут свидетельствовать о погрешностях радарного Рамановская методика также может быть использована метода. ДЛЯ дополнительной проверки существующих методов дистанционного

- 228 -

определения содержания льда в циррусных облаках [219].

Таблица 4.1. Параметры циррусных облаков и калибровочный коэффициент *К* рассчитанный по результатам пяти измерений.

| Дата | 10/30/2003 | 10/31/2003 | 11/2/2003 | 11/4/2003 | 11/12/2003 |
|------------------------|------------|------------|-----------|-----------|------------|
| Высота нижней границы | 10.5 | 11.0 | 11.4 | 10.2 | 6.0 |
| облака, км | | | | | |
| Высота верхней границы | 12.0 | 13.8 | 12.2 | 12.5 | 9.1 |
| облака, км | | | | | |
| Средняя температура в | -52.4 | -59.2 | -51.5 | -48.5 | -23.8 |
| облаке, °С | | | | | |
| Оптическая толщина | 0.356 | 0.736 | 0.155 | 0.899 | 1.225 |
| K | 2.975 | 2.483 | 1.8 | 2.756 | 3.284 |



Рис.4.17. Спектры рамановского рассеяния льда [74] и воды [89]. Штрихпунктирные линии показывают полосы пропускания фильтров, используемых в измерениях.



Рис.4.18. Лидарные сигналы упругого рассеяния (355 нм) и рамановского рассеяния азота (387 нм), пара (408 нм) и льда (402 нм).



Рис.4.19. Сравнение временного поведения интегрального по высоте содержания льда измеренного рамановским лидаром и радаром.

§ 4.4. Использование рамановского лидара для измерения вертикального распределения концентрации углекислого газа в тропосфере.

Углерод является одним из базовых элементов биосферы и основным источником энергии в хозяйственной деятельности человека. Наблюдаемое в настоящее время увеличение содержания углекислого газа и метана в атмосфере, является результатом повсеместного использования углеродного топлива, а также следствием уменьшения роли процесса фотосинтеза, из-за сокращения площади лесов. Рост содержания соединений углерода в атмосфере может оказывать влияние на процесс изменения климата, поскольку эти соединения относятся к основным парниковым газам.

Основное увеличение содержания углекислого газа произошло в два последних столетия в результате промышленной революции. Естественный сток углерода посредством взаимодействия с океаном, растениями и почвой составляет примерно половину от количества CO_2 , выбрасываемого в атмосферу. Содержание углекислого газа зависит от процесса фотосинтеза, поэтому концентрация CO_2 в пограничном слое увеличивается в ночное время. В дневное время процесс фотосинтеза увеличивает отток CO_2 . Кроме того, конвекционные процессы в атмосфере приводят к увеличению высоты пограничного слоя, что также уменьшает концентрацию CO_2 .

Трудности, возникающие при моделировании и предсказании процессов в атмосфере, обусловленных изменением содержания СО₂, связаны с высокой входных данных. На сегодняшний день требуемой точностью перед спутниковыми методиками поставлена задача обеспечить измерение интегрального по высоте содержания СО₂ с точностью лучшей 1%. Однако большинство вариаций СО₂ происходит внутри пограничного слоя, где увеличение концентрации СО₂ в ночное время может достигать 5 - 10%. Системы наземного базирования ближе к области максимальных вариаций

- 231 -

CO₂, а, кроме того, они могут быть созданы в более короткое время. Одним из средств для проведения дистанционных измерений подобного рода является рамановский лидар.

Расчеты показывают, ЧТО использование рамановского лидара С параметрами, приведенными в §1 способно обеспечить измерения на высоте до 2 км с точностью 2 ppm при пространственном разрешении 500 м и времени накопления 15 минут [220]. Единственная попытка измерения содержания СО₂ лидаром (1285.5 cm-1) была предпринята в работе [24]. Однако в этой работе использовался широкополосный XeCl лазер, что не позволяло устранять вклад вращательных линий кислорода в сигнал СО₂. Расчеты показывают, что использование излучения третьей гармоники Nd:YAG лазера И интерференционных фильтров с шириной пропускания ~ 0.3 нм позволяет уменьшить соответствующую погрешность до уровня менее 0.5 ррт.

Предварительные измерения рамановского спектра излучения рассеянного атмосферы вблизи колебательных линий $CO_2 v_1 (1388.3 \text{ cm}^{-1})$ и $2v_2 (1285.5 \text{ cm}^{-1})$ были проведены с использованием сканируемого спектрометра с разрешением ~2 А. В измерениях использовался приемный телескоп с апертурой 0.4 м, мощность Nd:YAG лазера на длине волны 355 нм составляла 10 Вт. Лидарные сигналы интегрировались в диапазоне высот 0.1 – 1 км. Результаты измерений приведены на рис.4.20. Колебательная линия кислорода (1556 cm⁻¹) и колебательно-вращательные линии отмечены на рисунке вместе с v_1 и $2v_2$ колебательными переходами CO_2 . Полученные результаты сдвинуты на 0.2 нм в сторону больших длин волн, вследствие систематической погрешности калибровки спектрометра.

Относительная интенсивность спектральных линий кислорода согласуется с результатами расчета. Для фильтра с шириной 0.3 нм эквивалентный вклад вращательных линий кислорода в сигнал CO_2 на линии $2v_2$ не превосходит 0.5 ppm CO2. Кроме того, этот вклад может быть скорректирован при обработке результатов.

Результаты лидарных измерений CO₂ приведены на рис.4.21. - 232 - Зондирование проводилось при мощности излучения третьей гармоники 20 Вт и времени накопления 1 час. Из рисунка видно, что измерения могут проводиться до высоты 5 км при статистической погрешности на уровне 2 ppm.

На этом же рисунке приведен одновременно измеренный профиль водяного пара. Вариации содержания водяного пара до некоторой степени коррелируют с изменением содержания СО₂. Одновременное измерение вертикальных профилей СО₂ и H₂0 лидарным методом проведено впервые. Полученные результаты демонстрируют, что рамановский лидар предоставляет уникальную возможность для исследования водного и углеродного циклов в атмосфере и выяснения механизмов их взаимодействия.



Рис.4.20. Рамановский спектр рассеяния излучения с λ =354.7 нм атмосферой. Измерения проводились в спектральном интервале, включающем колебательно-вращательные линии O₂ и колебательные линии CO₂ v₁ и 2v₂, с разрешением 2 А. Лидарные сигналы интегрировались в диапазоне высот 0.1 – 1 км. Полученные результаты сдвинуты на 0.2 нм в сторону больших длин волн, вследствие систематической погрешности калибровки спектрометра. На рисунке приведены также расчетные значения вращательных линий O₂.

Рис.4.21. Вертикальные профили содержания CO₂ и водяного пара измеренные рамановским лидаром. Время измерения 1 час.

§ 4.5. Основные результаты

Основные результаты, полученные в данной главе можно сформулировать как следующие:

Разработан и построен рамановский лидар для исследования параметров атмосферного аэрозоля и вариаций содержания водяного пара в ночное и дневное время. Система способна производить независимое измерение коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля, определять коэффициент деполяризации рассеянного излучения и измерять содержание водяного пара до высот z~10 км.

Проведено одновременное измерение лидарных сигналов обусловленных рамановским рассеянием водяного пара и жидкой воды. Показано, что после калибровки лидара по данным радарных измерений, возможно определение содержания воды в капельных облаках.

Продемонстрирована возможность измерения содержания льда в циррусных облаках рамановским лидаром. Сравнение результатов, полученных при использовании рамановского лидара, с результатами методики, использовующей данные миллиметрового радара, демонстрирует хорошее согласие между этими методами. При этом рамановская методика является более корректной и потенциально может рассматриваться, как эталонная.

Впервые продемонстрирована возможность измерения содержания углекислого газа в свободной тропосфере с использованием рамановского лидара. Достигнутая точность измерений ~2 ppb на высоте 5 км, делает возможным использование рамановского лидара для одновременного измерения суточных вариаций CO₂ и водяного пара. Таким образом, оказывается возможным исследование взаимного влияния углеродного и водного циклов в атмосфере.

- 235 -

Глава V. МОДЕЛИРОВАНИЕ ОБРАТНОГО РАССЕЯНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ СФЕРАМИ, СОДЕРЖАЩИМИ НЕКОНЦЕНТРИЧЕСКИЕ ВКЛЮЧЕНИЯ, ПРИМЕНИТЕЛЬНО К ЗАДАЧЕ ЛИДАРНОГО ЗОНДИРОВАНИЯ ОБЛАКОВ

Перспективность использования лидарной методики для исследования физики облаков уже отмечалась во введении. Одним из быстро развивающихся направлений, подобного рода исследований, является применение лидаров для изучения оптических свойств тающих гидрометеоров (снежинки, град). Изменение оптических свойств ледяных частиц при таянии приводит к, так называемым, эффектам темных и ярких областей при лидарном зондировании [63, 221]. Эти эффекты хорошо известны в радарных исследованиях и наблюдаются в слоях, содержащих водно-кристаллическую смесь. Аналог этого явления в оптической области спектра был впервые опубликован в работе [63], однако последовательного математического описания этого эффекта до сих пор не проводилось, вследствие исключительной трудности рассматриваемой задачи. Этот процесс, хотя и не вполне строго, можно рассчитывать с привлечением модели сферических частиц: водяная сфера, содержащая внутри смещенное сферическое ледяное ядро. [222-225]. Ледяное ядро может либо плавать у поверхности водяной сферы, (оно содержит большое количество воздушных пузырьков), либо находиться вблизи дна, вследствие сдувания водяной оболочки воздушным потоком, что характерно для начальной стадии плавления ледяной сферы.

При решении подобных задач приходится использовать достаточно сложные модели рассеяния электромагнитного излучения. Теория Ми позволяет получить строгое решение задачи о рассеянии излучения на однородных сферах. Она может быть модифицирована также для описания рассеяния на концентрических сферах и сферах с градиентом показателя преломления.

Рассеяние света сферами, содержащими неконцентрические включения,

рассматривалось в работах [226-232]. Все эти алгоритмы основаны на рекуррентном подходе для вычисления скалярных И векторных коэффициентов, возникающих при трансляции сферических векторных гармоник (СВГ) из системы координат в центре основной сферы, в систему координат связанную с центром сферического включения. Хотя формулы, полученные в [226-232], позволяют проводить расчеты для любого угла рассеяния и произвольного положения включения, время вычислений быстро растет с увеличением размера. Существующие программы используются для расчета рассеяния излучения частицами с параметрами размера не превосходящими 20 (параметр размера для сферы с радиусом *a*₁ определяется, как $x = \frac{2pa_1}{l}$), в то время как для реалистичного описания процессов в облаках эта величина должна быть порядка х ~1000.

Расчетные формулы могут быть существенно упрощены при рассмотрении геометрии, соответствующей обратному рассеянию. Такой подход позволяет анализировать значительно более крупные частицы (до параметра размера ~ 1000) и сопоставлять результаты расчетов с результатами лидарного зондирования облаков.

В § 1 данной главы диссертации приводятся основные математические выражения для расчета обратного рассеяния излучения неконцентрическими сферами. В § 2 представлены результаты вычислений коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции водяных сфер, содержащих сферические ядра в зависимости от их размера и расположения, а также для различных показателей преломления ядер. В § 3 полученные результаты применяются к задаче рассеяния излучения тающими ледяными сферами, и результаты расчета сопоставляются с экспериментальными измерениями. В § 4 формулируются основные результаты. Глава написана на основании работ автора [64, 233].

§ 5.1. Основные выражения, используемые при расчете рассеяния излучения вложенными сферами

Для упрощения формул и, как следствие, ускорения вычислений, в предлагаемом алгоритме сделан ряд предположений:

рассматривается только обратное рассеяние:

- предполагается, что включение может перемещаться только в направлении распространения излучения, что должно быть справедливо для случая вертикального лидарного зондирования.

Геометрия рассеяния, вместе с основными обозначениями, представлена на рис.5.1. Поскольку рассматривается только обратное рассеяние, выражения, полученные в работах [227, 231] могут быть упрощены.

Падающая электромагнитная волна может быть разложена по мультиполям [232] :

$$\mathbf{E}_{inc,1} = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^{n} \left(a_{nm} \mathbf{M}_{nm}^{(1)} + b_{nm} \mathbf{N}_{nm}^{(1)} \right)$$

где $\mathbf{M}_{n,m}^{(j)}(\mathbf{r})$ и $\mathbf{N}_{n,m}^{(j)}(\mathbf{r})$ - сферические векторные гармоники, описанные в [232]. Падающая волна распространяется вдоль оси ОZ и, следовательно, не содержит членов с индексом $m \neq \pm 1$. В результате поле рассеянной волны:

$$\mathbf{E}_{sca} = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^{n} \left[c_{nm} \mathbf{M}_{nm}^{(3)} + d_{nm} \mathbf{N}_{nm}^{(3)} \right]$$

также не содержит этих членов. Величины мультипольных коэффициентов c_{nm}, d_{nm} при m=-1 могут быть выражены через значения соответствующих коэффициентов при положительном индексе. Следовательно, достаточно решить систему уравнений лишь однократно, при m = 1.

Сначала находятся все скалярные трансляционные коэффициенты $C_{0,n}^{0,0}$ при индексах от n = 0 до $n = n_{max}$ по формуле

$$k_1 r_{lj} C_{0,n}^{0,0} = (2n+1) y_n (k_1 r_{lj}), \quad r_j \ge r_{lj}$$

где трансляция производится из системы *l* – координатной системы, связанной

с частицей-включением, в систему *j* – координатную систему, связанную с основной сферой, причем частица-включение находится выше центра системы *j*. Если частица-включение находится ниже центра, то используется формула

$$k_1 r_{lj} C_{0,n}^{0,0} = (-1)^n (2n+1) y_n(k_1 r_{lj}), \quad r_j \ge r_{lj}$$

Далее рассчитываются скалярные коэффициенты при индексе v = 1, соответственно, при трансляции сверху вниз по формуле

 $k_1 r_{lj} C_{0,n}^{0,1} = n y_{n-1}(k_1 r_{lj}) - (n+1) y_{n+1}(k_1 r_{lj})$

и при трансляции снизу вверх по формуле

$$k_1 r_{lj} C_{0,n}^{0,1} = (-1)^{n-1} \left[n \mathbf{y}_{n-1}(k_1 r_{lj}) - (n+1) \mathbf{y}_{n+1}(k_1 r_{lj}) \right]$$

Из 1-ой дополнительной ф-лы Маковского [228], упрощенной при $\xi = \eta = 0$,

$$C_{m+1,n}^{m+1,\nu} = \frac{kZ_{lj}C_{m,n+1}^{m,\nu}}{2n+3} + \frac{kZ_{lj}C_{m,n-1}^{m,\nu}}{2n-1} + C_{m,n}^{m,\nu}$$

подставляя m = 0, $\nu = 1$, $\theta_{lj} = 180^\circ$, $Z_{lj} = r_{lj} \cos \theta_{lj} = -r_{lj} < 0$, $k_1 Z_{lj} = -k_1 r_{lj}$, получим:

$$C_{1,n}^{1,1} = C_{0,n}^{0,1} - k_1 r_{ij} \left(\frac{C_{0,n+1}^{0,1}}{2n+3} + \frac{C_{0,n-1}^{0,1}}{2n-1} \right)$$
(1*n* don. ϕ - ла Маковского, $m = 0, \nu = 1, \theta_{ii} = 180^\circ$) (5.1)

Для трансляции снизу вверх

$$C_{1,n}^{1,1} = C_{0,n}^{0,1} + k_1 r_{ij} \left(\frac{C_{0,n+1}^{0,1}}{2n+3} + \frac{C_{0,n-1}^{0,1}}{2n-1} \right)$$

$$(1 \pi \, \partial on. \, \phi - \pi a \, Makobeckoeo, \, m = 0, \, \nu = 1, \, \theta_{ij} = 0^{\circ})$$
(5.2)

Подставляя $C_{0,n}^{0,1}$, $C_{0,n+1}^{0,1}$, $C_{0,n-1}^{0,1}$ и используя рекуррентные формулы для сферических функций Бесселя

$$\frac{z_n(kr)}{kr} = \frac{1}{2n+1} [z_{n+1}(kr) + z_{n-1}(kr)]$$

$$\frac{z_{n-1}(kr)}{kr} = \frac{1}{2n-1} [z_n(kr) + z_{n-2}(kr)]$$

$$\frac{z_{n+1}(kr)}{kr} = \frac{1}{2n+3} [z_{n+2}(kr) + z_n(kr)]$$

$$- 239 -$$
(5.3)

для скалярных коэффициентов с индексом m = 1 получим при $\theta_{ij} = 180^{\circ}$

$$C_{1,n}^{1,1} = \frac{(2n+1)\psi_n(k_1r_{lj})}{(kr_{lj})^2}$$
(5.4)

и при $\theta_{lj} = 0^\circ$

$$C_{1,n}^{1,1} = (-1)^{n-1} \frac{2n+1)\psi_n(k_1 r_{lj})}{(kr_{lj})^2}$$
(5.5)

При индексе v = 2 из рекуррентных формул [228] находим коэффициенты

$$C_{1,n}^{1,2} = 3 \left(\frac{n-1}{2n-1} C_{1,n-1}^{1,1} - \frac{n+2}{2n+3} C_{1,n+1}^{1,1} \right)$$
(5.6)

(ф – ла получена из Зй осн. Маковского)

соответствующие $\theta_{ij} = 180^\circ$, и для $\theta_{ij} = 0^\circ$ используем $C_{1,n}^{1,2}(0^\circ) = (-1)^n C_{1,n}^{1,2}(180^\circ)$.

При $v = 2,3,...,v_{max}$ получим (см. [228]):

$$C_{1,n}^{1,\nu} = \frac{2\nu - 1}{\nu - 1} \left(\frac{\nu}{2\nu - 1} C_{1,n}^{1,\nu-2} - \frac{n+2}{2n+3} C_{1,n+1}^{1,\nu-1} + \frac{n-1}{2n-1} C_{1,n-1}^{1,\nu-1} \right)$$

$$(\phi - \pi a \text{ получена из 3й осн. Маковского})$$
(5.7)

причем для трансляции снизу вверх удобно использовать очевидное соотношение

$$C_{1,n}^{1,\nu}(0^{\circ}) = (-1)^{n+\nu} C_{1,n}^{1,\nu}(180^{\circ})$$

Из дополнительных ф-л Маковского для векторных трансляционных коэффициентов при $m = \mu = 1$, $\xi = \eta = 0$, $\theta_{ij} = 180^{\circ}$ получим

$$A_{1,n}^{1,\nu} = C_{1,n}^{1,\nu} - k_1 r_{lj} \left[\frac{(n+2)}{(n+1)(2n+3)} C_{1,n+1}^{1,\nu} + \frac{(n-1)}{n(2n-1)} C_{1,n-1}^{1,\nu} \right]$$

$$B_{1,n}^{1,\nu} = -ik_1 r_{lj} \frac{C_{1,n}^{1,\nu}}{n(n+1)}$$

$$(\theta_{lj} = 180^{\circ})$$
(5.8)

а при $\theta_{lj} = 0^{\circ}$ они равны

$$A_{1,n}^{1,\nu} = C_{1,n}^{1,\nu} + k_1 r_{ij} \left[\frac{(n+2)}{(n+1)(2n+3)} C_{1,n+1}^{1,\nu} + \frac{(n-1)}{n(2n-1)} C_{1,n-1}^{1,\nu} \right]$$

$$B_{1,n}^{1,\nu} = +ik_1 r_{ij} \frac{C_{1,n}^{1,\nu}}{n(n+1)}$$

$$(\theta_{ij} = 0^{\circ})$$
(5.9)

По этим формулам находятся все коэффициенты при $n = 1, 2, ..., n_{max}$, $v = 1, 2, ..., v_{max}$.

Связь между векторными коэффициентами при противоположных сдвигах координатных систем *l* относительно центра системы *j*:

$$A_{1,n}^{1,\nu}(0^{\circ}) = (-1)^{n+\nu} A_{1,n}^{1,\nu}(180^{\circ})$$
$$B_{1,n}^{1,\nu}(0^{\circ}) = -(-1)^{n+\nu} B_{1,n}^{1,\nu}(180^{\circ})$$

При необходимости значения трансляционных коэффициентов переноса при *m* = –1 могут быть вычислены по формулам:

$$C_{-1,n}^{-1,v} = \frac{n(n+1)}{v(v+1)} C_{1,n}^{1,v}$$
$$A_{-1,n}^{-1,v} = \frac{n(n+1)}{v(v+1)} A_{1,n}^{1,v}$$
$$B_{-1,n}^{-1,v} = -\frac{n(n+1)}{v(v+1)} B_{1,n}^{1,v}$$

Для вычисления мультипольных коэффициентов предварительно вычисляются неизвестные t_{vm}, u_{vm} системы уравнений

где

$$T_{n,m,v}^{A} = A_{m,n}^{m,v} \{\xi_{n}'(ka_{1}) [\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{v}'\xi_{n}(k_{1}a_{1})] - n_{1}\xi_{n}(ka_{1}) [\zeta_{n}'(k_{1}a_{1}) + Q_{v}'\xi_{n}'(k_{1}a_{1})] \}$$

$$U_{n,m,v}^{B} = B_{m,n}^{m,v} \{\xi_{n}'(ka_{1}) [\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{v}'\xi_{n}(k_{1}a_{1})] - n_{1}\xi_{n}(ka_{1}) [\zeta_{n}'(k_{1}a_{1}) + Q_{v}'\xi_{n}'(k_{1}a_{1})] \}$$

$$T_{n,m,v}^{B} = B_{m,n}^{m,v} \{n_{1}\xi_{n}'(ka_{1}) [\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{v}'\xi_{n}(k_{1}a_{1})] - \xi_{n}(ka_{1}) [\zeta_{n}'(k_{1}a_{1}) + Q_{v}'\xi_{n}'(k_{1}a_{1})] \}$$

$$\begin{aligned} U_{n,m,v}^{A} &= A_{m,n}^{m,v} \Big\{ n_{1} \xi_{n}'(ka_{1}) \Big[\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{v}^{s} \xi_{n}(k_{1}a_{1}) \Big] - \xi_{n}(ka_{1}) \Big[\zeta_{n}'(k_{1}a_{1}) + Q_{v}^{s} \xi_{n}'(k_{1}a_{1}) \Big] \Big\} \\ Q_{v}^{r} &= \frac{n_{1} \zeta_{v}'(k_{1}a_{2}) \Psi_{v}(k_{2}a_{2}) - n_{2} \zeta_{v}(k_{1}a_{2}) \Psi_{v}'(k_{2}a_{2})}{n_{2} \xi_{v}(k_{1}a_{2}) \Psi_{v}'(k_{2}a_{2}) - n_{1} \xi_{v}'(k_{1}a_{2}) \Psi_{v}(k_{2}a_{2})} \\ Q_{v}^{s} &= \frac{n_{2} \zeta_{v}'(k_{1}a_{2}) \Psi_{v}(k_{2}a_{2}) - n_{1} \zeta_{v}(k_{1}a_{2}) \Psi_{v}'(k_{2}a_{2})}{n_{1} \xi_{v}(k_{1}a_{2}) \Psi_{v}'(k_{2}a_{2}) - n_{2} \xi_{v}'(k_{1}a_{2}) \Psi_{v}(k_{2}a_{2})} \end{aligned}$$

Далее вычисляются мультипольные коэффициенты c_{nm}, d_{nm} рассеянного поля (при m = 1):

$$c_{nm} = \frac{1}{n_{1}\xi_{n}^{2}(ka_{1})} \sum_{\nu=1}^{\nu_{mx}} \left\{ \frac{t_{\nu m}T_{n,m,\nu}^{A}}{\frac{\xi_{n}^{'}(ka_{1})}{\xi_{n}(ka_{1})} - n_{1} \frac{[\zeta_{n}^{'}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]}{[\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}(k_{1}a_{1})]} + \frac{u_{\nu m}U_{n,m,\nu}^{B}}{\frac{\xi_{n}^{'}(ka_{1}) - n_{1} \frac{[\zeta_{n}^{'}(ka_{1}) - n_{1} \frac{[\zeta_{n}^{'}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]}{[\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}(k_{1}a_{1})]} \right\} - a_{nm} \frac{\psi_{n}(ka_{1})}{\xi_{n}(ka_{1})} \left\{ d_{nm} = \frac{1}{\xi_{n}^{2}(ka_{1})} \sum_{\nu=1}^{\nu_{mx}} \left\{ \frac{t_{\nu m}T_{n,m,\nu}^{B}}{n_{1} \frac{\xi_{n}^{'}(ka_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})} - \frac{[\zeta_{n}^{'}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]}{[\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]} + \frac{u_{\nu m}U_{n,m,\nu}^{A}}{n_{1} \frac{\xi_{n}^{'}(ka_{1}) - \frac{[\zeta_{n}^{'}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]}{[\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]}} \right\} - b_{nm} \frac{\psi_{n}(ka_{1})}{\xi_{n}(ka_{1})} - \frac{\psi_{n}(ka_{1})}{[\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]} \left\{ - \frac{u_{\nu m}U_{n,m,\nu}^{A}}{h_{1} \frac{\xi_{n}^{'}(ka_{1})}{\xi_{n}(ka_{1})} - \frac{[\zeta_{n}^{'}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]}{[\zeta_{n}(k_{1}a_{1}) + Q_{\nu}^{r}\xi_{n}^{'}(k_{1}a_{1})]}} \right\}$$

Для вычисления коэффициентов с индексом m = -1 используются формулы

$$c_{n,-1} = n(n+1)c_{n,1}$$

 $d_{n,-1} = -n(n+1)d_{n,1}$

Сечение рассеяния находится как

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\lambda^2}{4\pi^2} \left| \sum_{n=1}^{\infty} i^n n(n+1)(c_{n,1} - d_{n,1}) \right|^2$$
(5.11)

Сечение экстинкции для случая вертикально падающего излучения с ориентацией электрического вектора вдоль оси ОХ равно

$$\sigma_{ext}^{OX} = -\frac{2\pi}{k^2} \operatorname{Re}\left\{\sum_{n=1}^{\infty} n(n+1)i^{n+1} \left[c_{n,1}^* + (-1)^{n+1}c_{n,1} + (-1)^{n+1}d_{n,1} + d_{n,1}^*\right]\right\}$$
(5.12)

Таким образом, полученные формулы позволяют полностью описывать процесс лидарного зондирования.

§ 5.2. Результаты численного моделирования

Приведенные выше формулы были запрограммированы, и далее приводятся результаты численного расчета. Моделирования проводилось для

определения зависимости рассеивающих свойств комбинированных частиц от их размера, положения ядра внутри сферы и для выяснения того, как эти свойства частиц проявят себя в лидарных экспериментах.

Для описания оптического сигнала, регистрируемого лидаром, используются два оптических параметра аэрозоля: коэффициент обратного рассеяния β и экстинкции α. Кроме того, для характеристики аэрозоля часто используется их отношение $R=\alpha/\beta$, известное, как лидарное отношение. Именно эти параметры определялись в процессе моделирования. Показатель преломления основной сферы в вычислениях брался m_h=1.348-i0, ЧТО соответствует показателю преломления чистой воды на длине волны 355 нм. преломления МОГ быть больше или Показатель ядра меньше, чем соответствующая величина для основной сферы. В вычислениях использовались $m_i = 1.45$ -i0 для $m_i > m_h$ (частицы пыли) и $m_i = 1.25$ -i0 для $m_i < m_h$ (биологические частицы). Особый интерес представляет рассмотрение водяной сферы с ледяным ядром, соответствующий показатель преломления m_i=1.324i0.

Программа позволяет проводить вычисления для сфер с параметрами размера х~1000. Время вычисления растет с увеличением размера как x^4 , и для расчетов с x=1000 требовалось более недели на персональном компьютере с тактовой частотой 2.3 ГГц. Поэтому в процессе моделирования, как правило, использовалось ограничение x<500. Результаты вычислений для малых размеров сравнивались с программой Маковского [228]. Для концентрической геометрии сравнение производилось с соответствующим Ми кодом. В обоих предельных случаях полученные результаты совпадали с результатами существующих программ.

5.2.1. Зависимость параметров рассеяния сфер от размера сферических включений

Для выявления зависимости параметров рассеяния частицы от

- 243 -

относительного размера ядра (р определяется как отношение радиуса ядра к радиусу сферы a_2/a_1), рассмотрим ситуацию, при которой ядро "прикреплено" к верху или низу сферы, то есть $\rho+\delta\approx\pm1$. Где, $|d|=\frac{r_{ij}}{a_1}$ есть относительный сдвиг (r_{lj} расстояние между центрами сферы и ядра), $\delta=1$ соответствует бесконечно малому ядру находящемуся вверху, и при $\delta=-1$ ядро находится внизу. Таким образом, изменение ρ от 0 до 1 соответствует ситуации, когда малое ядро появляется вверху сферы и начинает расти, пока не заполняет всю сферу. До некоторой степени, такая постановка задачи соответствует, плавлению ледяной частицы, когда ледяное ядро плавает у поверхности капли.

Описанная конфигурация иллюстрируется рис.5.2. Вычисления проводились для x=4; $m_i=1.45$ и $\rho+\delta=0.995$. Штриховые линии соответствуют α и β для однородных сфер с показателями преломления 1.348 и 1.45. При малых размерах ядер коэффициенты экстинкции и обратного рассеяния определяются показателем преломления основной сферы. С увеличением ρ коэффициенты α и β также возрастают, и когда ядро заполняет всю сферу, они определяются величиной m_i .

Для больших частиц поведение α и β становится более сложным. На рис.5.3. показана зависимость этих параметров от относительного радиуса ядра для x=200. Коэффициенты β и α нормализовывались на соответствующие величины для однородных сфер. Такая нормализация позволяет сравнивать влияние ядра на рассеивающие свойства для сфер с различными размерами. Приведенные на рисунке кривые соответствуют ситуации, когда ядро находится вверху (сплошная линия), внизу (штриховая линия), а также концентрическому расположению сфер (штрих-пунктир). Шаг вычислений $\Delta \rho = 0.01$. Следует отметить, что кривые $\alpha(\rho)$ вычисленные для верхнего и ядер совпадают. Это фундаментальное свойство нижнего положения математическое доказательство экстинкции, которого приводится В Приложении 1 к данной главе. Для больших прозрачных частиц экстинкция

- 244 -

практически не отличается от 1 и слабо зависит от ρ . Зависимость β от ρ , однако, оказывается очень сложной, вследствие многочисленных резонансных эффектов.

Для того чтобы выявить в зависимости β от ρ основные тенденции, и устранить резонансные эффекты, сильно зависящие от размера частицы, проводилось моделирование для полидисперсных сфер. Распределение радиусов сфер выбиралось логнормальным, но относительный размер ядер ρ для всех частиц предполагался одинаковым. Распределение по размерам записывалось в форме:

$$n_N(a_1) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot a_1 \cdot \ln \sigma} \exp\left[-\frac{\left(\ln a_1 - \ln a_{1,mean}\right)^2}{2\ln^2 \sigma}\right]$$

где $a_{1,mean}$ - средний радиус сферы и $\ln^2 \sigma$ - дисперсия. Необходимо подчеркнуть, что распределение по размерам вводится не для соответствия реальным атмосферным условиям (для этого необходимо рассматривать более сложные модели), а для устранения резонансных эффектов. Количество точек для расчета внутри распределения выбиралось N=30.

На рис.5.4 показаны результаты для x_{mean} =300 и $ln\sigma$ =0.1, при этом х варьировалось от 200 до 400. Показатели преломления сферы и ядра составляли m_h =1.348 и m_i =1.45. Шаг вычислений выбирался $\Delta\delta$ =0.02, и полученные результаты сглаживались с интервалом усреднения 0.06. Как и на рис.5.3, рассматриваются ситуации, соответствующие положению ядра вверху, внизу и в центре сферы. При верхнем расположении ядра коэффициент обратного рассеяния увеличивается почти на 3 порядка при ρ ~0.5. При расположении ядра у дна сферы, обратное рассеяние при ρ ~0.5 увеличивается всего лишь на порядок. Для концентрического расположения сфер увеличение коэффициента обратного рассеяния незначительно. Изменение экстинкции комбинированной частицы не превосходило 1% для всех значений ρ .

Для исследования влияния величины показателя преломления ядра на параметры рассеяния, расчеты были проведены в той же геометрии, но с

- 245 -

 $m_i=1.25$ (рис.5.5). В этом случае, максимальное обратное рассеяние достигалось при расположении ядра внизу сферы ($\rho \approx 0.85$). Для меньших размеров обратное рассеяние увеличивалось незначительно. Значение нормализованного коэффициента экстинкции близко к 1, следовательно, лидарное отношение $R \approx 1/\beta$. Это означает, что лидарное отношение будет сильно отличаться для верхнего и нижнего расположения ядра. То есть лидарное отношение будет различным при проведении измерений с земли и с борта самолета.

На рис.5.4 и 5.5 приведены результаты лишь для двух значений показателя преломления ядра. Для более детального выяснения влияния величины показателя преломления ядра на рассеивающие свойства частицы, на рис.5.6 представлены результаты для более широкого набора m_i . Кривые соответствуют верхнему расположению ядра для $m_i > m_h$ и нижнему для $m_i < m_h$. То есть выбирались геометрии, в которых реализуется максимальное увеличение коэффициента обратного рассеяния. Представленные результаты можно сформулировать следующим образом: при $m_i > m_h$ максимум обратного рассеяния всегда наблюдается при $\rho \approx 0.5$. Интересно, что максимальное значение рассеяния $\beta \approx 550$ соответствует $m_i = 1.4$ и это значение уменьшается при увеличении m_i . Для случая $m_i < m_h$, максимальное увеличение β наблюдается при $\rho \approx 0.8$ для всех m_i из диапазона 1.15-1.3, и рассеяние возрастает с уменьшением m_i , достигая $\beta \approx 1200$ при $m_i = 1.15$.

Зависимость максимального обратного рассеяния от показателя преломления ядра иллюстрируется рисунком 5.7. Заметим, что максимальное значение обратного рассеяния достигается при $m_i = 1$, что соответствует воздушному пузырьку внутри водяной сферы. Для $m_i > 1.4$ максимальное значение β меняется незначительно.

Результаты аналогичных расчетов проведенных для концентрических сфер показаны на рис.5.8. Так же как и на рис.5.4, 5.5, при $m_i > m_h$ максимум обратного рассеяния наблюдается при $\rho \approx 0.5$, а для $m_i < m_h$ эта величина сдвигается к $\rho \approx 0.8$. Однако, в отличие от неконцентрической модели, β не
увеличивается столь значительно. Это особенно заметно для $m_i < m_h$. Для концентрической модели при $m_i = 1.15$ обратное рассеяние $\beta \approx 5$, что почти на 3 порядка меньше увеличения наблюдаемого для неконцентрического расположения сфер.

5.2.2. Зависимость коэффициента обратного рассеяния сфер от вертикального смещения включений

В данном разделе рассматриваются результаты моделирования, проведенного для выяснения влияния вертикального смещения ядра внутри сферы постоянного радиуса на рассеивающие свойства комбинированной частицы. Зависимость коэффициента обратного рассеяния и экстинкции от относительного сдвига ядра с $\rho=0.1$ и $m_i=1.45$ приведена на рис.5.9. Вычисления проводились для сферы с x=200, шаг вычислений составлял $\Delta \delta=0.01$. Зависимость $\alpha(\rho)$ симметрична относительно центра сферы, что находится в соответствии с результатами, представленными в приложении 1.

Приведенные зависимости трудны для анализа вследствие многочисленных резонансов. Для устранения резонансных эффектов снова вводится полидисперсность аэрозоля. Результаты соответствующих расчетов показаны на рис.5.10. Вычисления проводились для относительных размеров ядер ρ =0.1, 0.5, 0.8 и логнормального распределения радиусов сфер со средним размером x_{mean} =300 и ln σ =0.1. Показатели преломления составляли m_h =1.348 и m_i =1.45, шаг вычислений $\Delta\delta$ =0.02. Результаты, приведенные на рис.5.10 сглажены с интервалом усреднения 0.06. Как и на рис.5.4 обратное рассеяние оказывается наиболее чувствительным к трансляции ядра с ρ =0.5 и достигает максимума, когда ядро расположено вверху сферы.

Рис.5.11 показывает зависимость коэффициента обратного рассеяния от относительного сдвига δ , вычисленную для $m_i=1.25$ для тех же величин относительного радиуса, что и на рис.5.10. В этом случае, в отличие от рис.5.10, рассеяние максимально, когда ядро находится внизу сферы и

- 247 -

относительный размер ядра составляет р≈0.8.

5.2.3. Рассеивающие свойства водяной сферы содержащей ледяное ядро

Как уже отмечалось выше, особый интерес для лидарных исследований рассеяния представляет рассмотрение излучения на водяных cdepax. содержащих ледяные включения. В первую очередь интересует зависимость рассеивающих свойств частицы от соотношения размеров ледяного ядра и водяной оболочки, а также от расположения ядра внутри частицы. Зависимость от размера ядра представлена на рис.5.12 для его верхнего (сплошная линия) и нижнего (пунктир) положений. Кроме того, для сравнения, на этом же рисунке показан результат для концентрического расположения (штрих-пунктир) сфер. Вычисления проводились при x_{mean}=400, lno=0.1 и m_i=1.324. Отметим, что показатель преломления льда меньше чем воды, а потому, в соответствие с результатами предыдущего раздела, максимум рассеяния β≈50 наблюдается при *р*≈0.85 и нижнем положении ядра. Для верхнего расположения ледяных ядер в диапазоне размеров 0.5<p<0.8 рассеяние, наоборот, подавляется.

Как уже упоминалось, лидарное отношение $R\approx 1/\beta$. Поэтому для больших ядер с $\rho\approx 0.85$ лидарное отношение резко уменьшается при расположении ядра у дна сферы. Перемещение ядра к верху сферы уменьшает коэффициент обратного рассеяния и увеличивает лидарное отношение. Таким образом, измерение лидарного отношения с помощью рамановского лидара, в принципе, может позволить получать информацию о наличии комбинированных частиц подобного рода.

На рис.13 показана зависимость β от смещения ядра для значений относительного радиуса ρ =0.1, ρ =0.5, и ρ =0.85. С увеличением размера ядра влияние смещения становится все более значимым, хотя сами возможные смещения для крупных частиц невелики.

Хотя для моделирования зондирования облаков излучением УФ диапазона желательно проводить вычисления до параметров размера ~ 5000,

- 248 -

мы, вследствие большого времени счета, обычно ограничивались x_{mean}=300. Отдельные вычисления, проведенные для x_{mean}=500, показали, что основные результаты остаются неизменными. Поэтому представленные здесь результаты могут быть использованы для интерпретации процессов происходящих в реальной атмосфере.

В природе водно-ледяная смесь образуется при таянии снежинок в атмосферных слоях с повышенной температурой. При радарном зондировании данный эффект приводит к появлению областей с повышенным рассеянием (так называемые, яркие области) [234]. Исследования показали, что для появления таких ярких областей должно образоваться достаточное количество воды, то есть ледяное ядро должно быть существенно меньше водяной оболочки. На Рис.5.14 приведен вертикальный профиль относительного рассеяния (отношение полного рассеяния к молекулярному) полученное при зондировании облаков рамановским лидаром. На этом же рисунке показан вертикальный профиль температуры, измеренный зондом. Сильное рассеяние агрегатами частиц (слипшиеся снежинки) над слоем, соответствующим началу плавления, приводит к увеличению сигнала (5<z<5.5 км), но при z>5.5 км сигнал резко уменьшается вследствие сильного поглощения излучения.

Однако наиболее интересные явления наблюдаются в области z<5 км, где снежинки начинают таять, образуя водно-ледяную смесью. При этом лидарный сигнал достигает минимума (z≈4.75 км), этот минимум обычно называют "темной областью". Для z<4.75 км рассеяние снова начинает возрастать, достигая максимума при z≈4.25 км. Этот максимум обычно называют "яркой областью"

Проведенные вычисления показывают, что максимальное увеличение обратного рассеяния должно происходить на начальной стадии таяния ледяных частиц, когда водяная оболочка еще достаточно тонкая. Потоком воздуха оболочка сдувается назад, и ядро оказывается на дне капли. Обратное рассеяние в такой геометрии возрастает. В атмосфере подобные условия обычно реализовываются на высоте 200 м ниже уровня, соответствующего температуре $0C^0$. На заключительной стадии плавления, когда основная масса воды находится в жидкой фазе, ледяное ядро всплывает и обратное рассеяние, в соответствие с приведенными вычислениями, уменьшается.

Таким образом, изменение размера ледяного ядра и его перемещение, может приводить к эффектам, схожим с наблюдаемыми на эксперименте. Разумеется, водяные капли не являются сферами, и ледяные ядра имеют сложную структуру, поэтому использование полученных результатов для описания реальной ситуации возможно лишь на качественном уровне, для выявления основных особенностей процесса.



Рис.5.1. Герметрия рассеяния.



Рис.5.2. Коэффициенты экстинкции и обратного рассеяния в зависимости от относительного радиуса включения. Включение с m_i=1.45 фиксировано у верхнего края сферы с m_h=1.348 и параметром размера x=4. Пунктирная линия показывает коэффициенты экстинкции и обратного рассеяния для однородных сфер без включений.



Рис.5.3. Коэффициенты обратного рассеяние (а) и экстинкции (б) в зависимости от радиуса ядра. Вычисления проводились для сферы с x=200; m_h=1.348 и m_i=1.45, для ситуаций, когда ядро зафиксировано вверху сферы (сплошная линия) и внизу сферы (штриховая). Штрих-пунктир соответствует концентрической геометрии. Шаг вычислений Δρ=0.01.



Рис.5.4. Коэффициенты относительного обратного рассеяние (а) и экстинкции (б) в зависимости от радиуса ядра. Вычисления проводились для логнормального распределения с x_{mean} =300, и ln σ =0.1. Показатели преломления m_h =1.348 и m_i =1.45. Рассматриваются ситуации, когда ядро зафиксировано вверху сферы (сплошная линия) и внизу сферы (штриховая). Штрихпунктирная линия соответствует концентрической геометрии. Шаг вычислений $\Delta \rho$ =0.02.Полученные результаты сглаживались с интервалом усреднения 0.06.



Рис.5.5. Коэффициент обратного рассеяние относительного В зависимости от радиуса ядра. Вычисления проводились для логнормального распределения с x_{mean}=300, и lno=0.1. Показатели преломления m_h=1.348 и m_i=1.25. Рассматриваются ситуации, когда ядро зафиксировано вверху сферы (сплошная линия) и внизу сферы (штриховая). Штрихпунктирная линия соответствует концентрической геометрии. Шаг вычислений $\Delta \rho = 0.02.$ Полученные результаты сглаживались с интервалом усреднения 0.06.



Рис.5.6. Зависимость коэффициента обратного рассеяния для $m_i > m_h$ (а) и $m_i < m_h$ (б). Ядро зафиксировано вверху (а) и внизу (б) сферы. Размеры сфер распределены по логнормальному закону с $x_{mean}=300$ и $\ln \sigma=0.1$. Шаг вычислений $\Delta \rho=0.02$.Полученные результаты сглаживались с интервалом усреднения 0.06.



Рис.5.7. Зависимость максимума коэффициента обратного рассеяния от показателя преломления ядра. Размеры сфер распределены по логнормальному закону с x_{mean}=300 и lnσ=0.1.



Рис.5.8. Зависимость коэффициента обратного рассеяния от относительного радиуса ядра для концентрического расположения сфер для $m_i=1.15, 1.25, 1.45$ и 1.55. Размеры сфер распределены по логнормальному закону с $x_{mean}=300$ и $ln\sigma=0.1$. Шаг вычислений $\Delta\rho=0.02$. Полученные результаты сглаживались с интервалом усреднения 0.06.



Рис.5.9. Зависимость коэффициента относительного обратного рассеяния (а) и экстинкции (б) от относительного сдвига ядра. Вычисления проводились для сферы с x=200, ρ =0.1, m_h=1.348 и m_i=1.45. Шаг вычисления $\Delta\delta$ =0.01.



Рис.5.10. Зависимость коэффициента относительного обратного относительного сдвига для ρ=0.1, 0.5, 0.8. рассеяния от Показатели Размеры сфер $m_{\rm h} = 1.348$ $m_i = 1.45$. распределены преломления И по закону ln**σ**=0.1. Шаг логнормальному c $x_{mean} = 300$ И вычислений $\Delta \delta = 0.02$.Полученные результаты сглаживались с интервалом усреднения 0.06.



Fig.5.11. Зависимость коэффициента относительного обратного относительного сдвига для ρ=0.1, 0.5, 0.8. рассеяния от Показатели Размеры сфер $m_{\rm h} = 1.348$ $m_i = 1.25$. распределены преломления И ПО логнормальному закону с x_{mean} =300 и $ln\sigma$ =0.1. Шаг вычислений $\Delta\delta$ =0.02.



Рис.5.12. Коэффициент относительного обратного рассеяние (a) и лидарное отношение (б) в зависимости от относительного радиуса для водяной сферы содержащей ледяное ядро. Вычисления проводились для логнормального распределения с x_{mean}=400, и lno=0.1. Показатели преломления m_h=1.348 и m_i=1.324. Рассматриваются ситуации, когда ядро зафиксировано вверху (сплошная линия) и внизу сферы (штриховая). Штрихпунктирная линия соответствует концентрической геометрии. Шаг вычислений $\Delta \rho = 0.02$.Полученные результаты сглаживались с интервалом усреднения 0.06.



Рис.13. Коэффициент относительного обратного рассеяния водяной сферы содержащей ледяное ядро в зависимости от смещения ядра для ρ =0.1, 0.5, 0.85. Вычисления проводились для логнормального распределения с x_{mean} =400, и $ln\sigma$ =0.1. Показатели преломления сферы и ядра m_h =1.348 и m_i =1.324.



Рис.5.14. Вертикальные профили температуры T и относительного рассеяния R_{sc} иллюстрирующие появление ярких и темных областей при лидарном зондировании облаков.

Приложение 1. Вычисление коэффициента экстинкции

Коэффициент экстинкции вычисляется в соответствие с [228] как :

$$\sigma_{ext} = -\frac{1}{2k^2 E_0^2} \operatorname{Re} \left[\sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^{n} \frac{n(n+1)}{K_{nm}^2} \left(a_{nm} c_{nm}^* + a_{nm}^* c_{nm} + b_{nm}^* d_{nm} + b_{nm} d_{nm}^* \right) \right]$$

ГДе $K_{nm} = \sqrt{\frac{2n+1}{4\pi} \cdot \frac{(n-m)!}{(n+m)!}}$.

При фиксированном *т*

$$\sigma_{ext,m} = -\frac{1}{2k^2 E_0^2} \operatorname{Re}\left[\sum_{n=1}^{\infty} \frac{n(n+1)}{K_{nm}^2} \left(a_{nm} c_{nm}^* + a_{nm}^* c_{nm} + b_{nm}^* d_{nm} + b_{nm} d_{nm}^*\right)\right]$$

Это выражение может быть записано в матричной форме:

$$\sigma_{ext,m} = -\frac{1}{2k^2 E_0^2} \operatorname{Re}(\mathbf{B}^T \mathbf{N} \mathbf{C}^* + \mathbf{B}^{T*} \mathbf{N} \mathbf{C})$$

где **N** - диагональная матрица размером 2Nmax*2Nmax с элементами $\frac{n(n+1)}{K_{nm}^2}$, $n = 1, ..N_{max}, 1, ..N_{max}$,

$$\mathbf{B}^{T} = \{a_{1,m}, ..., a_{N \max, m}, b_{1,m}, ..., b_{N \max, m}\} - транспонированный вектор B,
$$\mathbf{C} = \{c_{1,m}, ..., c_{N \max, m}, d_{1,m}, ..., d_{N \max, m}\} - вектор;$$$$

волновое число $k = \frac{2\pi}{\lambda}$.

В таком же виде матричном виде запишем и систему уравнений из [228]:

$$ψB + ξC = AT
ψ'B + ξ'C = A'T
ΓΔe B = a1,m,...,aN max,m, b1,m,...,bN max,m,
C = c1,m,...,cN max,m, d1,m,...,dN max,m,
T = t1,m,...,tN max,m, u1,m,...,uN max,m,$$

ψ,ψ',ξ,ξ' - диагональные матрицы размерности 2Nmax*2Nmax состоящие из функций Рикатти-Бесселя.

А и **A**^c - квадратные матрицы содержащие коэффициенты при неизвестных $t_{n,m}, u_{n,m}$. Исключая **T**, приходим к уравнению **C** = **MB**, где $\mathbf{M} = (\mathbf{A}^{-1}\xi - \mathbf{A}'^{-1}\xi')^{-1}(\mathbf{A}'^{-1}\psi' - \mathbf{A}^{-1}\psi)$, $\mathbf{A}^{-1}\mathbf{u} \mathbf{A}'^{-1}$ - обратные матрицы. Матрица **M** не - 261 -

зависит от угла θ . Вектора **В** для углов θ_1 и $\theta_2 = 180^\circ - \theta_1$ связаны как **B**₂ = **DB**₁, где **D** - диагональная матрица, содержащая $(-1)^{m+1}$ в верхней половине и $(-1)^m$ в нижней половине диагонали. Таким образом, мы приходим к соотношению $\sigma_{ext,m,1} = \sigma_{ext,m,2}$, а, следовательно $\sigma_{ext,1} = \sigma_{ext,2}$.

§ 5.3. Основные результаты

Основные результаты, полученные в пятой главе диссертации можно сформулировать как следующие:

Разработана программа, позволяющая моделировать обратное рассеяние излучения сферическими частицами, содержащими смещенные сферические ядра. При этом впервые были произведены расчеты для частиц с параметром размера ~1000.

Моделирование, проведенное для полидисперсного набора частиц, с различными с различными значениями показателей преломления сфер и ядер (m_h, m_i), позволило выявить основные особенности процесса рассеяния. Ядра с m_i<m_h сильно увеличивают обратное рассеяние при расположении внизу сферы и их относительном размере $\rho \sim 0.8$. Для $m_i > m_h$ обратное рассеяние возрастает при р~0.5 и верхнем расположении ядра. Резкое увеличение обратного рассеяния является спецификой неконцентрической геометрии, концентрического расположения сфер увеличение поскольку для B незначительно.

Коэффициент экстинкции практически не зависит от расположения ядра внутри сферы, поэтому увеличение обратного рассеяния должно сопровождаться уменьшением лидарного отношения. Таким образом, наблюдаемые в процессе лидарных измерений малые величины лидарного отношения *R* могут быть обусловлены рассеянием на комбинированных частицах, например на водяных каплях с ледяными включениями. Кроме того, для таких частиц лидарные отношения должны отличаться при проведении измерений с земли и с борта самолета (сверху вниз).

- 262 -

Для интерпретации, наблюдаемых в лидарных измерениях эффектов темных и ярких областей, было проведено моделирование ситуации, соответствующей плавлению ледяной сферы. Показано, что изменение размера ледяного ядра и его перемещение, может приводить к эффектам, схожим с наблюдаемыми на эксперименте.

Глава VI. ИССЛЕДОВАНИЕ ВАРИАЦИЙ СТРАТОСФЕРНОГО И ТРОПОСФЕРНОГО ОЗОНА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ЛИДАРА ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

Для изучения процессов генерации и переноса озона в атмосфере необходимо создание приборных средств, способных осуществлять контроль вертикального распределения озона от приземного слоя до стратосферы с высоким временным и высотным разрешением. Одним из наиболее перспективных средств такого рода является лидар дифференциального поглощения на основе эксимерных лазеров. Данная глава посвящена разработке лидарных систем в УФ спектральной области для долговременного мониторинга стратосферного и тропосферного озона.

B параграфе первом исследуется управление спектральными, пространственными и временными параметрами излучения электроразрядных эксимерных лазеров, для использования ИХ В различных системах Исследуется дистанционного лазерного мониторинга. возможность использования методов нелинейной оптики, таких как вынужденное рассеяние в жидкостях и газах, для получения лазерных пучков дифракционного качества и генерации субнаносекундных лазерных импульсов.

Во втором параграфе проведен анализ погрешностей измерения концентрации озона и определены оптимальные пары длин волн для различных высот зондирования. В третьем параграфе исследовано ВКР-преобразование излучения эксимерных лазеров в водороде и дейтерии. Определены условия, при которых происходит эффективное преобразование излучения накачки в стоксовы компоненты, обеспечивающую оптимальный режим измерения для выбранного высотного интервала. В четвертом и пятом параграфах приводится описание лидарных систем разработанных в ЦФП ИОФ РАН для измерения концентрации озона в стратосфере и тропосфере. В шестом параграфе предложен подход к измерению содержания озона, основанный на использовании рамановского рассеяния излучения четвертой гармоники

Nd:YAG лазера атмосферным кислородом и азотом. В *седьмом* параграфе представлены результаты долговременного наблюдения за суточными и сезонными вариациями озона в Московской области. В *восьмом* параграфе приведены основные результаты, полученные в шестой главе.

Данная глава диссертации написана на основании работ автора [<u>117</u>, <u>118</u>, <u>125</u>, <u>247-254</u>, <u>262</u>, <u>271</u>, <u>279</u>, <u>280</u>, <u>283</u>, <u>289</u>, <u>318</u>, <u>323-325</u>].

§ 6.1. Формирование требуемых пространственных, спектральных и временных параметров излучения эксимерных лазеров для использования их в системах дистанционного мониторинга.

Эксимерные лазеры являются наиболее перспективными источниками излучения в УФ области спектра и активно используются при разработке лидаров. Однако пространственные и спектральные параметры, коммерчески доступных эксимерных лазеров, не удовлетворяют требованиям, предъявляемым при использовании их в лидарных системах. Излучение стандартных эксимерных лазеров обладает низкой монохроматичностью $\Delta v/v \approx 10^{-3}$ и расходимостью $\theta \approx 10^2 \theta_d$ почти на два порядка превышающей соответствующий дифракционный предел, что неприемлемо в условиях лидарного зондирования, поскольку приводит к резкому увеличению фоновой засветки при измерениях.

Управление спектральными характеристиками эксимерного лазера включает в себя, с одной стороны, сужение ширины спектра выходного излучения. С другой стороны, это генерация новых спектральных компонент с использованием явления вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) в газах. В данном параграфе приводятся результаты исследования методов формирования пространственных, спектральных и временных параметров эксимерных лазеров требуемых для использования их в системах дистанционного зондирования.

- 265 -

6.1.1 Формирование пучков излучения эксимерных лазеров с высокой пространственной и спектральной яркостью

Требования к расходимости лазерного излучения в задачах лидарного зондирования могут варьироваться от ~1 мрад, при зондировании в ночное время, до 0.05 мрад в системах, предназначенных для измерений на больших высотах в светлое время суток.

Высокая расходимость излучения эксимерных лазеров обусловлена малым временем существования инверсии в активной среде (~ 10 нс): вследствие недостаточного количества проходов излучения по резонатору высококачественный лазерный пучок не успевает формироваться. Для уменьшения расходимости излучения обычно используются неустойчивые телескопические резонаторы различных конструкций [235-241]. При использовании разработанного в ЦФП ИОФ РАН эксимерного лазера Модель 1701 с телескопическим резонатором (коэффициент увеличения 15), около 90% энергии излучения содержится внутри угла 1 мрад. Для ряда задач излучение с такой расходимостью, может быть использовано для зондирования.

В тех случаях, когда требуются лазерные пучки дифракционного качества с высокой энергетикой, необходимо использовать системы, состоящие из задающего генератора и каскада последующих усилителей. При этом необходимо производить компенсацию фазовых искажений, возникающих на неоднородностях разряда и оптических элементов. Одним из способов компенсации подобных искажений является использование эффекта обращения волнового фронта (ОВФ) в процессе вынужденного рассеяния Мандельштама - Бриллюэна (ВРМБ). Детальное описание процесса обращения волнового лазерного излучения в процессе вынужденного рассеяния приводится в монографии [242]. В применении к эксимерным лазерам эти вопросы рассматривались также в работах [243-246, <u>247</u> -<u>254</u>].

Исследования обращение волнового фронта излучения эксимерных лазеров проводились с использованием серийных лазерных модулей разработанных в ЦФП ИОФ РАН. Размеры разрядного промежутка модуля составляют 1×2×60 см³. В стандартном режиме с устойчивым резонатором выходная энергия модуля составляет 100 мДж на длине волны 308 им и 200 мДж на длине волны 248 нм в импульсе длительностью 10-20 нс при частоте повторения импульсов 50 Гц.

Схема экспериментальной установки приведена на рис.6.1. Излучение **УЗКОПОЛОСНОГО** эксимерного лазера LO с расходимостью, близкой к дифракционной, телескопировалось и направлялось в усиливающий модуль *LA*. Ширина спектра излучения составляла ~0,02 см⁻¹ при энергии ~50 мкДж в импульсе. Описание методов обужения спектра эксимерных лазеров приведено в публикациях [255-261, 253, 262]. Усиленное излучение фокусировалось линзой *L* в кювету с рассеивающей средой. В случае XeCl лазера в качестве такой среды выбирался гексан. Обращенная волна усиливалась на обратном проходе и выводилась при помощи поляризационной развязки, состоящей из поляризатора Р и ромба Френеля F. Энергия обращенного излучения составляла ~30 мДж при длительности импульса т=4 нс. Расходимость пучка измерялась по распределению интенсивности в фокальной плоскости зеркала с радиусом кривизны 12 м. Расходимость излучения задающего генератора после усиления возрастает примерно вдвое, однако обращенная волна, после прохода по усилителю, восстанавливает расходимость практически до исходной [253].

При использовании ВРМБ для ОВФ излучения KrF-лазера выбор рассеивающих сред оказывается ограниченным, вследствие сильного поглощения в данной спектральной области. В большинстве работ в качестве рассеивающей среды использовался газ SF₆ [246, <u>253</u>]. На рис.6.2 представлена эффективность обратного рассеяния в этом газе в зависимости от энергии накачки. Эксперименты проводились при давлении газа 10 атм, при максимальной энергии накачки энергетическая эффективность составляла около 80%.

- 267 -

Несмотря на высокую эффективность OB Φ зеркала на основе SF₆, использование в качестве рассеивающей среды жидкостей имеет ряд преимуществ, поскольку это позволяет снизить порог OB Φ , уменьшить размеры и упростить конструкцию обращающего зеркала.

В ряде работ сообщалось об ОВФ излучения KrF и ArF лазеров в жидком гексане [263, 264]. Обычно предполагается, что обращение фронта происходит в результате процесса ВРМБ. Однако гексан на длине волны 248 нм начинает заметно поглощать излучение накачки. В этом случае возможен другой фазовосопряженной механизм генерации волны вынужденное температурное рассеяние Рэлея (ВТР) [242, 266]. Этот вид рассеяния на температурных волнах исследовался в работе [265] применительно к задаче ОВФ излучения рубинового лазера в растворе I₂+CCl₄. Из-за низкой эффективности, как правило, не превышающей 10%, процесс ВТР практически не применялся в задачах ОВФ излучения лазеров видимого и ближнего ИКдиапазона, поскольку не мог конкурировать с гораздо более эффективным процессом ВРМБ. Однако при создании лазерных систем дальнего УФдиапазона (λ=248, 222, 193 нм), когда выбор прозрачных сред крайне ограничен, температурное рассеяние оказывается весьма перспективным, если не единственным методом ОВФ [250, 251, 253, 267].

В наших экспериментах использовался п-гексан. коэффициент поглощения, которого на длине волны 248 нм в зависимости от условий хранения лежал в диапазоне 0,1-0,3 см⁻¹. Частотный сдвиг при ВРМБ в гексане составляет около 0,3 см⁻¹ и в описанных экспериментальных условиях должен легко регистрироваться. Однако измерения спектральных характеристик рассеянного излучения отсутствие показали частотного сдвига, величину 0,02 см⁻¹, определяемую точностью превосходящего наших измерений. Этот факт позволяет предположить, что наблюдаемое рассеяние имеет природу ВТР.

Усиление в ВТР процессе описывается выражением

- 268 -

$$g = a \left(\frac{P_L}{P_T} - 1 \right),$$

где α - коэффициент поглощения среды; P_L - мощность накачки; P_T – пороговая мощность.

$$P_T = \frac{2\Gamma rc_t}{W} \frac{cn}{de/dT}$$

где р - плотность среды; с_t – теплоемкость; Г - ширина линии спонтанного рассеяния, $d\epsilon/dT$ - температурная производная от диэлектрической проницаемости. Частотный сдвиг при рассеянии $\Delta\omega\sim\Gamma$, и ширина линии спонтанного рассеяния $\Gamma = \chi \omega^2 n^2$ определяется температуропроводностью среды χ . Для жидкостей подобных гексану $\chi = 10^{-3}$ см²с⁻¹ и при $\lambda = 250$ нм, ширина спектра оценивается как $\Gamma/2\pi \approx 100$ МГц. Поскольку ширина спектра излучения нашего лазера намного превосходит эту величину, то выражение для пороговой мощности должно быть помножено на $2\pi\Delta\nu/\Gamma$, и таким образом $P_T \sim 1/\omega$. То есть порог ВТР процесса снижается при уменьшении длины волны падающего излучения.

На рис.6.3. приведена зависимость эффективности преобразования в энергию рассеянного излучения от энергии накачки. Максимум эффективности достигается при E_{μ} =10 - 15 мДж и составляет η =12%. Дальнейшее увеличение энергии не приводит к росту η . При увеличении коэффициента поглощения жидкости эффективность рассеяния снижается. Анализ формы импульса рассеянного излучения в области максимальной эффективности показывает существенное укорочение его длительности до 2,5 нс. ВТР наблюдалось также в экспериментах на длине волны 308 нм при использовании гексана с недостаточной степенью очистки.



Рис.6.1 Блок схема экспериментальной установки для исследования обращения волнового фронта излучения эксимерных лазеров: LO – узкополосный генератор; Т - телескоп; Р - поляризатор; F – ромб Френеля; LA - усилитель; FP – эталон Фабри – Перо для анализа спектра рассеянного излучения; С – кювета с рассеивающей средой.



Рис.6.2. Эффективность обратного рассеяния в SF6 в зависимости от энергии накачки излучения KrF лазера. Давление газа в кювете P=10 атм.



Рис.6.3. Эффективность обратного рассеяния в гексане в зависимости от энергии накачки KrF лазера. Ширина спектра излучения накачки составляет 0.02 см⁻¹ (+); 0.1 см⁻¹ (о); 0.2 см⁻¹ (Δ).

6.1.2. Укорочение импульсов эксимерных лазеров в процессе вынужденного рассеяния Мандельштама-Бриллюена и оптического пробоя на поверхности жидкости.

Предельное дистанционное разрешение лидарных измерений определяется, длительностью лазерного импульса т. Типичная длительность импульса излучения эксимерного лазера составляет ~10 нс, и соответствующее разрешение по дистанции зондирования тс/2 составляет около 1.5 м, что для большинства лидарных задач достаточно. Однако при использовании лазера в задачах дальнометрии, для обеспечения высокой точности, желательно иметь лазерные импульсы длительностью ~1 нс. Кроме того, в ряде методик лазерного дистанционного зондирования, основанных на нелинейных лазерный пробой В оптических явлениях, таких как атмосфере И многофотонное поглощение излучения в аэрозолях, необходимо использовать лазерные импульса УФ диапазона с высокой пиковой мощностью.

ВРМБ компрессия импульсов эксимерных лазеров в сжатых газах

Одним из способов укорочения длительности лазерных импульсов является использование компрессоров на основе ВРМБ. Компрессия лазерных процессе ВРМБ достаточно подробно исследована ИМПУЛЬСОВ В как теоретически, так и экспериментально в видимой области спектра. Так, в работах [268] при ВРМБ компрессии импульса излучения с $\lambda = 0.53$ мкм в 30 аргоне получен коэффициент компрессии при энергетической эффективности (отношение энергии рассеянного излучения к падающему) около 80%. Укорочение импульса KrF-лазера при ВРМБ в SF₆ до 1,5 нс наблюдалось в работе [269], однако оно имело место лишь при малых энергиях излучения накачки и эффективность преобразования была невелика (~20%). Сжатие импульса KrF-лазера в 62 раза до длительности τ =300 пс с эффективностью ~40% было получено при использовании системы ВРМБ генератор - усилитель [270]. Для практического использования такая система слишком сложна (в ней использовалось 4 лазера) и налагает жесткие требования на точность пространственного совмещения пучков. Между тем простота однокюветной схемы и результаты, полученные в [267], делают такой подход перспективным и в случае эксимерных лазеров.

Принципиальным моментом при компрессии импульсов является выбор геометрии фокусировки. Короткий стоксов импульс, возникший в фокальной перетяжке, при распространении навстречу излучению, должен постоянно усиливаться в режиме насыщения, снимая на себя всю энергию накачки. Для этого размер области усиления L должен превосходить длину цуга импульса накачки: L > ct/2. Для пучков дифракционного качества режим насыщения на всей трассе, как показано в [267], можно обеспечить при L/Z=M, где M~30 пороговый инкремент усиления, а Z - длина фокальной перетяжки. Соответствующий угол фокусировки ϕ оценивается из соотношения $\phi/\theta = M$, где θ - расходимость излучения накачки. При выполнении этих условий коэффициент укорочения импульса может составлять величину порядка М. Отсюда следует, что для эффективной компрессии импульсов в нашем случае необходимо использовать линзы с фокусным расстоянием 2-4 м и аналогичной длины кювету. Кроме того, жесткие требования накладываются на расходимость излучения накачки.

Наиболее подходящим газом для компрессии импульсов KrF-лазера является газ SF₆, поскольку он прозрачен, обладает высоким коэффициентом усиления ВРМБ (g=1,1·10⁻⁵ см·MBT⁻¹ при P=1 атм). Время затухания гиперзвука в SF₆ составляет τ_p =1,5 нс при P=10 атм, что в принципе позволяет получать импульсы с минимальной длительностью $\tau = 0,1\tau_p$ [268], в субнаносекундном диапазоне.

Источником излучения в наших экспериментах служила KrF-лазерная система, состоящая из узкополосного генератора и регенеративного усилителя [251, 271]. Выходная энергия составляла 160 мДж при ширине спектра 0,02 см⁻¹

и расходимости излучения ~ 10^{-4} рад. Газ SF₆ находился в кювете длиной 4 м, его давление варьировалось в диапазоне 1-15 атм. Для изменения угла ввода излучения накачки в эксперименте использовались линзы с *f*==0,5; 2 и 4 м. Пятно лазерного излучения на линзе имело вид прямоугольника 2,2×1 см² с темным полем диаметром 2 мм в центре.

При f = 50 см, давлении газа 10 атм и малых значениях E (10 мДж) импульс рассеянного излучения имеет гладкую форму и длительность 1,5 нс. С увеличением энергии накачки на спаде импульса появляется второй максимум, и импульс уширяется. Это свидетельствует о том, что затравочный стоксов импульс выходит из насыщения на расстояниях, значительно меньших L, и эффективной компрессии не происходит. Для реализации режима насыщенного усиления необходимо уменьшать угол ввода излучения в кювету и увеличивать давление газа, поскольку коэффициент усиления $g \sim P^2$. На рис. 6.4 приведена форма импульсов накачки и рассеянного излучения при E=55 мДж, P=15 атм и f=4 м (линза при этом располагалась на расстоянии 2 м от окна кюветы). В этом случае при увеличении энергии накачки спад стоксова импульса обостряется, и его длительность уменьшается до 1 нс (в отдельных импульсах он укорачивался до 800 пс). При условиях, соответствующих максимальному укорочению импульса, эффективность преобразования в стоксову компоненту составила ~60%. Измерения расходимости рассеянного излучения показали, что в случае, соответствующем максимальной компрессии, расходимость рассеянного излучения в 1,5 раза превосходит расходимость излучения накачки. Стабильность работы системы улучшалась при использовании в задающем генераторе модуля с длительностью разряда ~100 нс [252], поскольку в этом случае происходит более эффективное обужение спектра излучения задающего генератора, и исчезают проблемы связанные со стабильностью временной синхронизации двух разрядных модулей.

Таким образом, полученные результаты демонстрируют возможность увеличения интенсивности излучения эксимерных лазеров в процессе ВРМБ компрессии.

- 273 -

Укорочение импульсов эксимерных лазеров в процессе оптического пробоя на поверхности жидкости.

Как показано в предыдущем разделе, ВРМБ компрессия увеличивает интенсивность излучения импульсов эксимерных лазеров, однако этот подход не позволяет получать импульсы с длительностью существенно меньшей ~1 нс. Использование традиционных методов формирования УКИ пикосекундного диапазона, основанных, например, на синхронизации продольных мод в ЭРЭЛ, затруднено, вследствие малого времени существования инверсии для такого типа лазеров. Так, даже при синхронизации мод электроразрядного XeCl лазера, где это время максимально и может составлять сотни наносекунд, не удается получить импульсы короче 120 пс [272].

Эффективный метод укорочения импульсов XeCl-лазера был предложен в работах [273, 274], где совместное использование вынужденного обратного рассеяния и пробоя над поверхностью жидкости позволило получить одиночные импульсы длительностью 200 пс. По мнению авторов, крутой передний фронт импульсов рассеянного излучения формируется вследствие BPMБ, а задний - за счет возникновения плазмы. Данный метод получил название TRUBS (truncated Brillouin scattering). Дальнейшее развитие метод получил в работах [275-278]. В том числе, двукратное использование процесса TRUBS, позволило получить импульсы XeCl-лазера длительностью 15 пс [278]. Следует отметить, что интерпретация механизма укорачивания во всех перечисленных работах не отличалась от предложенной в [273, 274].

Для увеличения эффективности процесса ВРМБ спектр излучения эксимерных лазеров должен быть существенно сужен, поэтому в большинстве упомянутых работ использовались лазерные системы, состоящие из узкополосного задающего генератора и усилителя. Общим недостатком подобных систем является необходимость использования двух разрядных модулей с точной синхронизацией моментов срабатывания. В диссертационной работе предлагается более простая схема формирования УКИ на длинах волн

- 274 -

248 и 193 нм [<u>279</u>, <u>280</u>].

Схема экспериментальной установки, на которой проводились исследования, приведена на рис.6.5. В экспериментах использовался разрядный модуль 1 серийного эксимерного лазера "Модель 1701". Резонатор лазера образован зеркалом M₁ и кюветой C₁ с рассеивающей жидкостью (пгексан). Зеркало M_1 было выполнено в виде мениска радиусом R с коэффициентом отражения —70%. Перед зеркалом M_1 устанавливалась диафрагма 2, диаметр которой выбирался равным $d = \sqrt{1.21R}$, как это обычно делается для самофильтрующихся резонаторов. Усиленное за один проход излучение фокусировалось в кювету C_1 кварцевой линзой с f = 5 см. Кювета с гексаном герметизировалась кварцевой пластиной толщиной 1 мм. Излучение вводилось в кювету под утлом 5° к нормали для устранения френелевских отражений в усиливающем тракте. На KrF-смеси энергия фокусируемого в кювету излучения составляла - 6 мДж при длительности импульса - 8 нс. При фокусировке на поверхность жидкости этой энергии было достаточно для возникновения интенсивного пробоя в фокусе линзы. Рассеянное в гексане излучение усиливалось на обратном проходе. Часть излучения выводилась расщепителем 3 или полупрозрачным зеркалом для анализа. Измерение временных параметров оптических импульсов проводилось фотоэлементом ФК-44 и ЭОК "Агат" со входным виолевым окном.

При фокусировке излучения под поверхность жидкости (на глубину 2 мм) пробой отсутствовал, и импульс имел длительность 3 - 4 нс. При уменьшении глубины погружения на поверхности жидкости возникал пробой, длительность импульса уменьшалась, а эффективность рассеяния резко увеличивалась. Изменение глубины погружения от 2 мм до нуля приводило к увеличению интенсивности рассеянного излучения на два порядка. Минимальная длительность импульса реализовалась при фокусировке точно на поверхность жидкости и составляла 150 - 200 пс. Типичный временной профиль рассеянного импульса, зарегистрированный ЭОК после расщепителя 3, приведен на рнс.6.5. Энергия импульсов усиленного на обратном проходе

- 275 -

излучения перед зеркалом M_2 составляла - 100 мкДж.

Следует отметить, что при энергии излучения, меньшей порога пробоя, существенного укорачивания импульсов рассеянного излучения не наблюдалось. При расположении фокальной перетяжки над поверхностью (расстояние до поверхности 1 мм) в прифокальной области наблюдался пробой, и длительность импульса рассеянного излучения увеличивалась до 2 нс.

Обратное рассеяние в этом случае связано с отражением излучения от плазмы.

Измерения расходимости показали, что волновой фронт рассеянного излучения не является фазово-сопряженным по отношению к излучению накачки: размер пятна рассеянного излучения на диафрагме 2 превышает ее диаметр в несколько раз. Анализ временных характеристик выходного излучения также показал, что через 12 нс после первого импульса следует второй, с длительностью около 40 пс. В наших экспериментальных условиях интервал 12 нс соответствует времени двойного прохода резонатора. Появление второго импульса, таким образом, связано с повторным рассеянием субнаносекундного импульса, отраженного от зеркала М₁. Второй импульс может быть выделен выбором соответствующего времени срабатывания отдельного усиливающего модуля.

В наших экспериментах для выделения одиночного импульса, а также для его дальнейшего укорачивания описанная процедура использовалась повторно в кювете C_2 . Для этого выходной пучок после отражения от зеркал M_2 и M_3 усиливался еще раз в том же разрядном модуле и фокусировался на поверхность жидкости в кювете C_2 . Фокусное расстояние линзы L_2 также составляло 5 см, и при энергии излучения ~ 1 мДж на поверхности жидкости наблюдался интенсивный пробой. Типичный временной профиль импульса рассеянного в кювете C_2 излучения приведен на рис.4. Длительность выходного импульса зависит от точности фокусировки на поверхности и лежит в диапазоне 40 — 60 пс. Приведенные результаты были получены при частоте следования импульсов 1-15 Гц. Флуктуации длительности импульса при этом

- 276 -

не превышали 20%.



Рис.6.4. Временные профили импульса лазера накачки (вверху) и импульсов рассеянного излучения при энергии накачки 25, 45 и 90 мДж.



Рис.6.5 Схема экспериментальной установки для исследования укорочения лазерного импульса в процессе пробоя. Показаны также временные профили импульсов излучения, рассеянных в кювете C₁ (а) и C₂ (б).

§ 6.2. Выбор источников излучения для исследования атмосферного озона методом лидара дифференциального поглощения.

Лидары дифференциального поглощения на сегодняшний день являются одним из самых эффективных средств исследования атмосферного озона. Результаты, полученные различными группами, демонстрируют, что лидар способен измерять содержание озона практически от поверхности земли до высоты ~ 50 км [103-125].

Выбор оптимальных длин волн для измерений в стратосфере

Принцип работы лидара дифференциального поглощения состоит в измерении лидарного сигнала на двух длинах волн, одна из которых поглощается в исследуемом газе (λ_{on}), а вторая является опорной (λ_{off}). Спектральная зависимость сечения поглощения озона, рассчитанная с использованием программного пакета MOTRAN приведена на рисунке 6.6. Из рисунка видно, что наиболее эффективным является использование для зондирования длин волн в УФ спектральной области.

Мощность рассеянного излучения принятого с высоты z описывается лидарным уравнением

$$P = A \frac{S}{z^2} b(z) e^{-2 \int_{0}^{z} a(z) dz}$$
(6.1)

где А- энергетический параметр лидарной системы, включающий энергию импульса лазерного излучения, коэффициент пропускания приемной системы и эффективность фотоприемника; S- площадь приемного телескопа; $\beta(z)$ и $\alpha(z)$ -высотные зависимости коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции. Каждый из этих коэффициентов обусловлен вкладами аэрозольной и молекулярной составляющих атмосферы.

Концентрация исследуемого газа (в нашем случае озона), вычисляется по

формуле (без учета дифференциальной экстинкции):

$$n_{oz} = -\frac{1}{2\Delta s_{oz}} \frac{d}{dz} \ln\left[\frac{P_{on}(z)}{P_{off}(z)}\right]$$
(6.2)

Максимальная дальность зондирования определяется статистической погрешностью измерений [281]:

$$e_{oz} = \frac{1}{2n_{oz}\Delta s_{oz}\Delta z\sqrt{N}} \sqrt{\frac{2(P_{on} + P_{b,on})}{P_{on}^2} + \frac{2(P_{off} + P_{b,off})}{P_{off}^2}}$$
(6.3)

где N – количество лазерных импульсов, P_{on,off} – мощность лидарных сигналов соответствующих поглощаемой и опорной длинам волн, P_b – мощность фоновой засветки.

Таким образом, погрешности уменьшаются при увеличении интервала высотного усреднения Δz и времени накопления. Соответственно, говоря о максимальной высоте зондирования, необходимо уточнять высотное, временное разрешение, а также допустимый уровень погрешностей измерения.

Как следует из выражения (6.2) погрешность измерений тем меньше, чем выше дифференциальное сечение поглощения озона $\Delta \sigma_{oz}$, однако при большом сечении поглощения озона уменьшается дальность зондирования в соответствие с выражением (6.1). Вследствие этого, для различных высот зондирования необходимо выбирать различные длины волн. Стратосферный озон характеризуется относительно медленными вариациями (порядка суток), поэтому для достижения высот ~ 30 км сечение поглощения озона должно быть на уровне $1-5*10^{-19}$ см², что соответствует длине волны излучения ~300 нм. Обеспечение необходимой точности лостигается большим временем накопления (несколько часов) и большим интервалом высотного усреднения ~1 КМ.

Наиболее распространенные источники УФ излучения на сегодняшний день это эксимерные лазеры и Nd:YAG лазеры с генераторами третьей и четвертой гармоник. Дополнительные длины волн могут эффективно генерироваться при сопряжении этих лазеров с ВКР преобразователями на основе сжатых газов. В качестве ВКР сред используются, как правило, водород

- 279 -

и дейтерий. Эти газы обладают высокой эффективностью преобразования, большим частотным сдвигом v_R и устойчивы к интенсивному УФ излучению. Реже используется метан, который хотя и сопоставим с дейтерием по эффективности преобразования и сдвигу частоты v_R , однако диссоциирует под действие лазерного УФ излучения, что делает необходимой постоянную прокачку газа в кювете и усложняет конструкцию ВКР преобразователя.

В Таблице 6.1 приведены длины волн различных стоксовых компонент H_2 , D_2 , CH_4 , при использовании в качестве накачки излучения эксимерных лазеров и гармоник Nd:YAG лазера. Для измерений в стратосфере оптимальная длина волны находится в диапазоне 300 – 305 нм. В качестве источника излучения повсеместно используется XeCl лазер, и на сегодняшний день этот лазер для измерений в стратосфере серьезной альтернативы не имеет. Разработки соответствующего источника излучения на основе твердотельных параметрических генераторов, пока еще находятся в стадии лабораторных исследований. Опорная длина волны обычно выбирается в области 350 нм. В качестве источника излучения используется третья гармоника Nd:YAG (354.7 нм) лазера, XeF (351 нм) лазер, либо первая стоксова компонента XeCl лазера в водороде (353 нм).

Выбор оптимальных длин волн для измерений в тропосфере

Высокая временная и пространственная изменчивость количества озона в тропосфере повышают требования к высотному и временному разрешению измерений, по сравнению с более высокими атмосферными слоями. Для обеспечения соответствующего временного (~ 10 мин) и пространственного (~50 м) разрешения необходимо использовать более коротковолновое излучение, (с большим дифференциальным сечением поглощения), чем то, которое применялось при зондировании озона в стратосфере. В настоящее время для зондирования тропосферного озона ряд исследовательских групп используют первые стоксовы компоненты четвертой гармоники излучения YAG:Nd лазера в водороде и дейтерии [120-122]. Другим возможным

- 280 -

источником излучения является эксимерный KrF-лазер, совмещенный с водородным и дейтериевым ВКР-преобразователями [124, 282]. Соответствующий набор стоксовых компонент (268, 277, 292 и 313 нм) позволяет выбирать длины волн, оптимальные для требуемого высотного диапазона, частота же следования импульсов в подобной системе без особых проблем может достигать 100 Гц.

ошибок Основными источниками метода дифференциального поглощения являются статистический характер регистрируемого сигнала и систематические погрешности измерений, связанные с влиянием атмосферного аэрозоля и поглощением излучения другими газами. В таблице 6.2 приведены длины волн стоксовых компонент KrF-лазера в водороде и дейтерии, а также соответствующие им сечения поглощения O₃, SO₂ и NO₂. Максимальная высота, до которой лидар позволяет производить измерения, при приемлемом уровне статистических погрешностей, определяется отношением сигнал-шум, a. следовательно, энергетическими характеристиками излучателя И чувствительностью приемной системы. На ошибки измерения влияет, в первую очередь, уровень наиболее слабого из принимаемых сигналов.

Чтобы оценить максимальную высоту, доступную для зондирования, был произведено моделирование работы лидара [283].Для характерных средних параметров атмосферы (плотность, концентрация молекул озона, содержание аэрозоля) и заданных параметров лидара рассчитывался оптический сигнал, приходящий с каждой высоты. Затем по смоделированным таким образом данным рассчитывались статистические ошибки измерения.

На рис. 6.7а приведены расчетные зависимости статистических погрешностей измерения озона ε от высоты зондирования *H* для различных пар длин волн: 268 - 277 нм, 277 - 292 нм, 268 - 292 нм и 277 - 213 нм. Расчеты проводились для следующих параметров лидара: диаметр приемного зеркала D=30 см; коэффициент пропускания приемной системы, состоящей из телескопа, спектро-делителей и интерференционных фильтров, равен 0.3; квантовая эффективность ФЭУ - 0.1; высотное разрешение $\Delta z = 50$ м; энергия в

- 281 -

импульсе для каждой из длин волн E == 10 мДж; число суммированных лазерных импульсов N=100. Статистическая ошибка ε может быть легко пересчитана для конкретных условий измерения с учетом того, что

$$e \sim \frac{1}{\sqrt{N \cdot E \cdot S} \cdot \Delta z^{3/2}},$$

где S – площадь приемного телескопа.

зрения Наиболее привлекательными, С точки минимизации статистической погрешности, для зондирования в диапазоне 0.3-2.5 км являются пары длин волн 268 - 292 нм и 277 - 313 нм, характеризуемые значительным дифференциальным сечением поглощения озона (7.64 х 10⁻¹⁸ и 5.0·10⁻¹⁸ см² соответственно). Кроме того, использование этих пар удобно с чисто практической точки зрения, поскольку каждая из них может генерироваться с использованием лишь одного ВКР-преобразователя. Пара длин волн 268 - 292 нм характеризуется меньшими статистическими погрешностями на высотах до 2 км, однако из-за сильного поглощения на длине волны 268 нм рассеянный сигнал быстро уменьшается и на высотах свыше 2 км пара 277 - 313 нм оказывается предпочтительней.

Для измерений на больших высотах приходится использовать длины волн с меньшим поглощением, при этом увеличение статистических погрешностей, связанное с уменьшением $\Delta \sigma_{oz}$, должно компенсироваться увеличением интервала усреднения Δz и числа суммируемых лазерных импульсов. На рис. 6.76 представлена высотная зависимость є для пары 292 -313 нм, рассчитанная для $\Delta z = 250$ м и числа суммируемых импульсов 4·10³. В этом случае значение $\varepsilon = 20\%$ достигается на высоте 12 км и эта пара длин волн может быть эффективно использована для зондирования тропосферного озона в высотном диапазоне 2 -12 км. Замедление роста є вблизи 10 км связано с увеличением концентрации озона в этой области.

Программа, используемая для расчета, не учитывает поглощение излучения в приземном слое, поэтому полученными статистическими
ошибками можно пользоваться только как относительными. Сравнение экспериментально зарегистрированных сигналов рассеянного излучения с расчетными показывает, что коэффициент соответствия модели нашим экспериментальным условиям составляет порядка 10, поэтому для обеспечения статистических погрешностей, не превышающих расчетные, число суммируемых импульсов должно не менее чем в 10 раз превосходить расчетное. Оптимальные соотношения энергий в различных спектральных компонентах согласно расчету таковы: 3/2 для пары 277 - 313 нм, 4/3 для пары 268 - 292 нм и 2/1 для пары 268 и 292 (277) нм.

Анализ систематических погрешностей, проведенный в работах [281, 284]. показывает, что максимальные погрешности возникают при приземном слое 0-2 зондировании в км. характеризуемом высоким содержанием аэрозолей. Для уменьшения систематических погрешностей, связанных с влиянием аэрозоля, отношение $\Delta\lambda/\Delta\sigma_{oz}$ (где $\Delta\lambda$ - разность длин используемых волн, а $\Delta \sigma_{oz}$ - соответствующее дифференциальное сечение поглощения) должно быть минимизировано. С этой точки зрения пара 268 - 277 нм для измерения в приземном слое является оптимальной, однако разделение столь близких спектральных компонент при регистрации рассеянного излучения оказывается затруднительным и сильно усложняет конструкцию анализатора спектра. Наиболее удобными для измерения в приземном слое являются пары 268 - 292 нм и 277 - 292 нм. Хотя систематическая погрешность в этой области может достигать 25 %, для z > 1.7 км она быстро уменьшается. Кроме того, систематические погрешности могут быть уменьшены почти на порядок при использовании процедуры аэрозольной коррекции, подробно описанной в [125, 281].

Большие концентрации S0₂ и N0₂ в пограничном слое атмосферы могут также служить источником систематических погрешностей измерения. В не сильно загрязненном городе концентрации n_{N02}≈n_{S02}≈0.6·10¹² см⁻³, т. е. они сравнимы с концентрацией озона. Для рассматриваемой спектральной области, в условиях стандартного загрязнения, систематические ошибки будут - 283 -

определяться влиянием SO₂. Если для пар 268 - 292 нм, 268 - 319 нм и 277 - 292 нм соответствующие погрешности не превышают 5 %, то при измерении на длинах волн 277 - 313 нм и 292 - 313 нм пренебрежение влиянием SO₂ в приземном слое может привести к ошибкам в концентрации озона до 15 и 50 % соответственно. По этой причине, измерение концентрации озона в приземном слое на данных длинах волн необходимо вести при одновременном измерении концентрации SO₂ для соответствующей коррекции результатов.

Подробный анализ статистических погрешностей, возникающих при использовании четвертой гармоники Nd:YAG лазера с последующим ВКР преобразовании в первые стоксовы компоненты в водороде и дейтерии, проведен в работе [281]. При измерении в тропосфере, соответствующие пары волн 266 - 289 нм и 289 – 299 нм, с точки зрения статистических и систематических погрешностей, примерно эквивалентны парам волн, получаемых при ВКР преобразовании излучения KrF лазера. Поэтому выбор того или иного источника излучения, в конечном счете, определяется его энергетическими характеристиками, надежностью и удобством использования в полевых условиях.

Nd:YAG лазер с генератором четвертой гармоники обладает рядом преимуществ, характерных для твердотельных систем. Это, в первую очередь, компактность, надежность и долгое время жизни лазерных компонент. КrF лазер, в свою очередь, характеризуется большей выходной мощностью. В процессе ВКР преобразования излучения KrF лазера происходит эффективная генерация многочисленных стоксовых компонент, что позволяет выбирать оптимальные пары длин волн для измерения в каждом высотном диапазоне. Интерес к использованию KrF лазеров значительно вырос в связи с прогрессом в разработке керамических разрядных камер, которые позволили резко увеличить время жизни газовой смеси и оптических компонент. Эксимерные лазеры более удобны в работе в условиях лидарной станции: не требуется предварительный прогрев лазера перед зондированием, кратковременные сеансы измерения тропосферного озона могут производиться без систем

- 284 -

внешнего охлаждения, параметры излучения устойчивы к изменению температуры в помещении, и паузы между порциями импульсов не влияют на параметры излучения

Исходя из всего вышесказанного, при разработке в ЦФП ИОФ РАН лидара дифференциального поглощения для измерения озона, в качестве источника излучения были выбраны KrF и XeCl лазеры с ВКР преобразователями. Дополнительным аргументом в пользу такого выбора был многолетний опыт разработки и использования эксимерных лазеров в ЦФП.



Рис.6.6. Спектральная зависимость сечения поглощения озона.

Таблица 6.1. Длины волн различных стоксовых компонент H₂, D₂, CH₄, при использовании в качестве накачки излучения эксимерных лазеров и гармоник Nd:YAG лазера.

| Лазер | λ, нм | H ₂ (4156 см ⁻¹) | | D ₂ (2986 см ⁻¹) | | | СН ₄ (2914 см ⁻¹) | | |
|-----------|--------|---|-------------------|---|--------------------------|-------------------|---|--------------------------|-------------------|
| | | S_1 нм | S ₂ нм | S ₃ нм | S ₁ нм | S ₂ нм | S ₃ нм | S ₁ нм | S ₂ нм |
| XeF | 351 | 410.9 | 495.6 | 624.1 | 392.1 | 444.1 | 512.0 | 391.0 | 441.3 |
| XeCl | 308 | 353.2 | 414.0 | 500.0 | 339.2 | 377.4 | 425.4 | 338.4 | 375.4 |
| KrF | 248.6 | 277.2 | 313.3 | 360.2 | 268.5 | 291.9 | 319.8 | 268.0 | 290.7 |
| Nd:YAG ×3 | 354.71 | 416.0 | 503.0 | 636.0 | 396.73 | 450.04 | 519.91 | 395.6 | 447.15 |
| Nd:YAG ×4 | 266.03 | 299.06 | 341.5 | 397.5 | 289.02 | 316.2 | 349.2 | 288.39 | 314.84 |

| Источник | λ, нм | σ_{O3} (cm ²) | σ_{SO2} (cm ²) | σ_{NO2} (cm ²) |
|----------------------------------|-------|----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| излучения | | | | |
| KrF | 248.0 | $1.07 \cdot 10^{-17}$ | $8 \cdot 10^{-20}$ | $1 \cdot 10^{-20}$ |
| S ₁ (D ₂) | 268.4 | 8.23.10-18 | $7 \cdot 10^{-19}$ | $2.1 \cdot 10^{-20}$ |
| S ₁ (H ₂) | 277.1 | $4.50 \cdot 10^{-18}$ | $1 \cdot 10^{-18}$ | $3 \cdot 10^{-20}$ |
| S ₂ (D ₂) | 291.8 | $1.07 \cdot 10^{-18}$ | $8 \cdot 10^{-19}$ | $0.81 \cdot 10^{-19}$ |
| S ₂ (H ₂) | 313.0 | $6.88 \cdot 10^{-20}$ | $2.6 \cdot 10^{-19}$ | $2 \cdot 10^{-19}$ |

Таблица 6.2. Сечение поглощения O₃, SO₂ и NO₂ (T=298 K) для излучения KrF лазера и его стоксовых компонент в водороде и дейтерии.



Рис. 6.7. Расчетная зависимость статистических погрешностей измерения концентрации озона от высоты зондирования для пар длин волн 268 и 277 (1), 277 и 292 (2), 268 и 292 (3) и 277 и 213 нм (4) (а), а также 292 и 313 нм (б).

§ 6.3. ВКР преобразование излучения KrF лазера

Как было показано в предыдущем разделе, использование эксимерных лазеров совместно с ВКР-преобразователями позволяет получать спектральные компоненты, обеспечивающие эффективное измерение концентрации озона широком высотном диапазоне.

Детальное исследование ВКР излучения эксимерных лазеров в водороде было проведено в работах [285-288, <u>289</u>], где изучалось влияние параметров излучения, геометрии фокусировки и давления газа на эффективность преобразования в различные стоксовы компоненты. Результаты этих исследований показывают, что при выборе соответствующих параметров ВКРпреобразователей генерация на любой из трех первых стоксовых компонент может производиться с квантовой эффективностью в десятки процентов.

При использовании дейтерии в качестве рассеивающей среды, особый интерес представляет преобразование КrF лазера, поскольку соответствующие Стоксовы компоненты удобны для зондирования тропосферного озона. Однако эффективность преобразования излучения KrF лазера в дейтерии оказывается существенно меньше, чем в водороде, вследствие меньшего коэффициента ВКР-усиления. Эффективность генерации S₂ компонент в дейтерии, как правило, не превышает 20% [290], в то время как в водороде соответствующая квантовая эффективность может достигать 68% [288].

Одним из способов повышения эффективности ВКР-преобразования является использование эксимерных лазеров с внешней инжекцией. При инжекции излучения узкополосного задающего генератора в регенеративный усилитель может быть сформировано излучение с высокой спектральной яркостью и расходимостью, близкой к дифракционному пределу. В работе [288] было продемонстрировано, что использование KrF-лазера с внешней инжекцией позволяет значительно увеличить эффективность преобразования в S₂ компоненту в водороде. К достоинствам лазеров с внешней инжекцией

- 288 -

следует отнести и то, что длина волны стоксовой компоненты может перестраиваться в пределах ширины линии усиления эксимерного лазера.

В данном параграфе приводятся результаты исследований эффективности генерации четырех первых стоксовых компонент излучения KrF-лазера в дейтерии при различных давлениях газа и энергиях излучения накачки. Проводится сравнение результатов, полученных для лазеров с внешней инжекцией и без нее.

Описание экспериментальной установки и предварительные оценки

Источником излучения в экспериментах служила эксимерная лазерная система на KrF-смеси, состоящая из узкополосного задающего генератора и регенеративного усилителя с телескопическим резонатором, подробно описанная в работе [253]. Минимальная ширина спектра излучения задающего генератора не превышала 0.02 см⁻¹. Выходная энергия регенеративного усилителя составляла ~ 300 мДж при максимальной частоте следования импульсов 50 Гц. При инжекции излучения задающего генератора выходная энергия увеличивалась на 15%. Выходной пучок имел размер 22 х 8 мм с темным полем диаметром 1.5 мм в центре.

Для определения расходимости лазерного пучка измерялось пространственное распределение интенсивности излучения в фокальной плоскости сферического зеркала с f=4 м. Измерения показали, что без внешней инжекции внутри угла 0.2 мрад содержится 25% энергии излучения. При инжекции излучения задающего генератора в этом же угле содержится 48% энергии.

В эксперименте использовалась ВКР-кювета длиной 1 м, изготовленная из нержавеющей стали. Кювета герметизируется кварцевыми окнами толщиной 1 см и рассчитана на работу при давлениях до 40 атм. Излучение фокусировалось в кювету и коллимировалось линзами с фокусными расстояниями f= 1м. Стоксовы компоненты на выходе преобразователя разделялись кварцевой дисперсионной призмой. Измерение параметров

- 289 -

стоксовых компонент производилось на расстоянии 3 м от дисперсионной призмы. Распределение энергии между стоксовыми компонентами зависело от настройки неустойчивого резонатора регенеративного усилителя. Все приведенные ниже результаты получены при настройке резонатора на максимум энергии в S₂-компоненте.

Коэффициент ВКР-усиления в стационарном режиме может быть рассчитан по формуле [291]

$$g_{R} = \frac{I_{s}^{3} \Delta N}{phc \Delta n} \frac{ds}{dw}$$

где λ_s - длина волны стоксовой компоненты; с - скорость света; h - постоянная Планка; ΔN - разность населенностей начального и конечного состояний; Δv - ширина рамановской линии; $\partial s / \partial w$ - дифференциальное сечение рассеяния.

Зависимость ВКР-усиления от давления описывается формулой

 $g_R = Ap/\Delta v$,

где A — постоянная величина. Для дейтерия Dv = 3.67/p + 3.58p [292], где Δv взято в обратных сантиметрах, а p - в атмосферах. Таким образом, рост усиления с увеличением давления компенсируется уширением линии, и при p>5 атм коэффициент ВКР-усиления в дейтерии достигает насыщения и перестает зависеть от давления.

В процессе преобразования значительное влияние на распределение энергии между стоксовыми компонентами оказывает четырехволновое параметрическое взаимодействие (ЧПВ). Первая стоксова компонента генерируется за счет ВКР, в то время как генерация второй и третьей стоксовых компонент есть результат совместного действия ВКР и ЧПВ.

Основным параметром, характеризующим относительную эффективность ВКР и ЧПВ, является нормированная волновая расстройка

 $\gamma = l_g / l_{syn}$, где $l_g = (g_R I)^{-1}$ - длина, на которой стоксова компонента усиливается в е раз; I интенсивность излучения накачки; $l_{syn} = 2p/Dk$ - длина линейного синхронизма, - 290 - т. е. длина, на которой разность фаз взаимодействующих полей изменяется на 2*p*; *Dk* - волновая расстройка.

Численное моделирование процесса ВКР в газах для сфокусированных гауссовых пучков с учетом взаимного влияния друг на друга четырех стоксовых компонент S₋₁, S₀, S₁, S₂ было проведено в работе [293]. Результаты моделирования показывают, что чисто каскадное преобразование имеет место при нормированной волновой расстройке $\gamma > 1$. При 0.1 < $\gamma < 0.5$ интенсивное параметрическое взаимодействие приводит к разрушению каскадной картины процесса ВКР, и генерация всех стоксовых компонент начинается одновременно. Дальнейшее уменьшение γ ($\gamma < 0.1$) приводит к росту порога преобразования, а в пределе $\gamma \rightarrow 0$ попутное рассеяние полностью подавляется.

Эффективное преобразование в S_1 и S_2 компоненты может быть достигнуто за счет каскадного процесса. Для подавления ЧПВ при этом используется длиннофокусная фокусирующая оптика, и преобразование производится при высоких давлениях газа в кювете. Каскадный режим преобразования излучения KrF лазера в водороде был реализован в работе [288], где достигнутая квантовая эффективность генерации в S_2 компоненте составила 68% при энергии излучения накачки ~ 100 мДж. Коэффициент ВКРусиления в дейтерии примерно в 5 раз меньше, чем в водороде [292], поэтому для реализации каскадного режима преобразования в S_2 -компоненту в дейтерии энергия излучения накачки должна быть выше 500 мДж при расходимости, близкой к дифракционному пределу. Эксимерные лазеры с такой энергией для большинства исследователей, как правило, малодоступны.

Другим способом эффективного преобразования в компоненты S_2 и S_3 является оптимизация параметров преобразователя для увеличения эффективности генерации осевых компонент за счет ЧПВ. Оценка оптимального давления дейтерия для преобразования в S_2 компоненту при использовании в качестве накачки излучения второй гармоники YAG:Nd-лазера была проведена в работе [292].

Эффективность параметрического взаимодействия F экспоненциально - 291 -

уменьшается с ростом волновой расстройки, но квадратично растет с увеличением концентрации рассеивающих молекул [292]: $F \sim p^2 exp(-b\Delta k)$, где *b*-конфокальный параметр. Из результатов работы [294], в которой рассчитывалась эффективность нелинейного взаимодействия третьего порядка в сфокусированных гауссовых пучках для процессов типа:

$$\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 = \omega_4$$

следует, что максимальная эффективность генерации достигается при b∆k ~ 5. Экспериментальные результаты, представленные в работе [292], находятся в качественном согласии с этой оценкой.

Ниже даны основные схемы смешения, приводящие к генерации компонент S₂ и S₃, а также соответствующие волновые расстройки Δk при давлении дейтерия p = 1 атм и длине волны излучения накачки 248 нм:

$$\begin{split} k_2 &= k_0 + k_1 - k_{-1}, & \Delta k = 0.44 \text{ cm}^{-1}, \\ k_2 &= 2k_1 - k_0, & \Delta k = 0.13 \text{ cm}^{-1}, \\ k_3 &= 2k_2 - k_1, & \Delta k = 0.25 \text{ cm}^{-1}, \\ k_3 &= k_1 + k_2 - k_0, & \Delta k = 0.81 \text{ cm}^{-1}, \\ k_3 &= 2k_1 - k_{-1}, & \Delta k = 0.13 \text{ cm}^{-1}, \\ k_3 &= k_2 + k_0 - k_{-1}, & \Delta k = 0.69 \text{ cm}^{-1}, \end{split}$$

где k₋₁, k₀, k₁, k₂, k₃, - волновые числа соответствующих стоксовых компонент. При вычислении Δk использовались данные по дисперсии D₂ из [295], соответствующие коэффициенты преломления m при давлении p = 1 атм и T = 20° C приведены в таблице 6.3.

Таким образом, для b ~ 3 см при увеличении давления дейтерия, по крайней мере, до 10 атм эффективность генерации S_2 компоненты за счет ЧПВ должна возрастать. Генерация S_3 -компоненты при этом будет происходить главным образом за счет смешения S_1 и S_2 компонент, поэтому зависимости эффективности генерации S_2 и S_3 компонент от давления должны носить сходный характер.

Оценим давление дейтерия, при котором можно ожидать подавления

ЧПВ и реализации каскадного режима преобразования. Условие $\gamma > 1$ удовлетворяется при $l_g > 2\pi/\Delta k$. Расчет l_g непосредственно по формуле $l_g = l/g_R I$ приводит к значительным неопределенностям, поскольку вычислить интенсивность излучения в фокальной перетяжке с необходимой точностью довольно трудно. Поэтому для оценки l_g используем выражение

 $l_g=2bE_{th}/M_{th}E$

где *b* - конфокальный параметр; M_{th} = 25 - пороговый инкремент усиления; E_{th} - пороговая энергия ВКР-пре-образования.

Для пучков дифракционного качества конфокальный параметр определяется выражением

$$b = \left(\frac{fq}{2}\right)^2 \frac{2p}{l}$$

где θ - расходимость лазерного излучения. Иногда это выражение используют и для оценки длины фокальной перетяжки излучения эксимерного лазера с расходимостью, существенно превышающей дифракционную. В нашем случае размеры лазерного пучка по двум координатам различаются почти в 4 раза и расходимость излучения в этих направлениях также различна, поэтому эффективный конфокальный параметр был измерен экспериментально. Для этого в фокальную плоскость линзы помещалась диафрагма и измерялась зависимость прошедшей сквозь диафрагму энергии от смещения плоскости диафрагмы вдоль оси пучка. Диаметр диафрагмы выбирался таким, чтобы при расположении ее в центре перетяжки сквозь нее проходило ~ 70% энергии излучения. За эффективный конфокальный параметр принималось смещение от центра перетяжки, при котором доля прошедшей энергии уменьшалась вдвое. Измеренное таким образом *b* составляло ~ 3 см, как при внешней инжекции, так и без нее. При небольших превышениях над порогом $l_g = 2b/M_{th} = 0.24$ см.

Неравенство γ> 1 в наших экспериментальных условиях выполняется лишь при давлении дейтерия свыше 200 атм. Подавление ЧПВ при меньших давлениях может быть достигнуто при использовании фокусирующей оптики с большим фокусным расстоянием либо при добавлении к дейтерию буферного

газа с большой дисперсией.

Экспериментальные результаты

При попутном рассеянии коэффициент ВКР-усиления не зависит от ширины спектра излучения накачки [296]. Наши предварительные измерения, проведенные в водороде, показали, что изменение ширины спектра излучения задающего генератора от 0.02 до 50 см⁻¹ не оказывает заметного влияния на эффективность преобразования, поэтому во всех приводимых ниже измерениях для инжекции использовалось излучение задающего генератора с шириной спектра ~ 5 см⁻¹.

На рис. 6.8 приведены квантовые эффективности η_1 , η_2 , η₃ преобразования в компоненты S_1 , S_2 и S_3 в зависимости от энергии накачки Eпри давлениях дейтерия 5,10 и 35 атм. Измерения проводились, как при использовании внешней инжекции, так и без нее. При внешней инжекции зависимости $\eta_1(E)$ для давлений 5 и 10 атм имеют четко выраженный максимум при E = 80-90 мДж. При давлении 35 атм зависимость $\eta_1(E)$ имеет два максимума - при E = 45 и 180 мДж. Рост η_1 при больших энергиях накачки связан, по-видимому, с параметрической генерацией S₁ компоненты высшими стоксовыми компонентами. С ростом давления максимум $\eta_1(E)$ уменьшается вследствие перекачки энергии в высшие стоксовы компоненты. При перекрытом излучении задающего генератора зависимости $\eta_1(E)$ для разных давлений различаются не столь сильно. Эффективность преобразования η_1 в максимуме составляет ~ 30% и при больших Е начинает убывать. Во всех случаях, с увеличением давления эффективность преобразования при малых Е возрастает, а порог генерации S₁-компоненты снижается.

В наших экспериментальных условиях нормированная волновая расстройка $\gamma < 0.5$ и подавления параметрической генерации высших стоксовых компонент не происходит, поэтому наблюдаемое поведение $\eta_1(E)$ отличается от результатов работы [297], где реализовывался чисто каскадный режим

преобразования излучения четвертой гармоники YAG:Nd лазера и квантовая эффективность преобразования в компоненту S₁ достигала 80%.

Зависимость $n_2(E)$ оказывается монотонной и инжекция излучения задающего генератора не влияет принципиально на ee характер. Эффективность генерации S₂ компоненты с увеличением давления возрастает, и в максимуме $\eta_2 \approx 23\%$ как при внешней инжекции, так и без нее. Инжекция внешнего сигнала приводит к существенному увеличению эффективности генерации компоненты S₃ при больших давлениях. Максимальное значение η₃ без инжекции равно 14%, а с инжекцией - 27%. Следует отметить, что при больших энергиях накачки наблюдается также эффективная генерация четвертой стоксовой компоненты. При *E* = 200 мДж и внешней инжекции, эффективность ее генерации составляет 12%, в отсутствие же внешней инжекции - всего 3.5 %.

На рис.6.9 приведена зависимость квантовой эффективности генерации компонент S_2 и S_3 от давления. Энергия лазера без инжекции составляла 178 мДж, а с инжекцией - 205 мДж. Эффективность генерации обеих компонент возрастает при увеличении давления до p = 20 атм, после чего рост η_2 и η_3 практически прекращается. Инжекция внешнего излучения слабо влияет на эффективность генерации S_2 компоненты, но приводит к более чем двукратному увеличению η_3 . Наблюдаемое поведение η_2 и η_3 свидетельствует о том, что каскадный механизм преобразования в наших экспериментальных условиях не реализуется и генерация компонент S_2 и S_3 происходит вследствие ЧПВ.

Из результатов работы [293] следует, что оптимальное γ , при котором порог генерации S₂ компоненты минимален, равно 0.5. Максимальная волновая расстройка при взаимодействии компонент S₁ и S₂ в нашем случае составляет 0.44см⁻¹ при p = 1 атм, что соответствует длине линейного синхронизма $l_{syn} = 14.3$ см. При $l_g = 0.24$ см нормированная волновая расстройка $\gamma = l_g / l_{syn} = 0.017$. Таким образом, в наших экспериментальных условиях при росте давления, по

крайней мере, до *p* = 30 атм можно ожидать уменьшения порога ВКРпреобразования.

На рис.6.10 приведена зависимость доли излучения накачки, прошедшего сквозь кювету, от энергии накачки на входе ВКР-преобразователя для различных давлений дейтерия. В соответствии с приведенными выше оценками при увеличении давления от 5 до 35 атм порог преобразования уменьшается, а эффективность преобразования в стоксовы компоненты возрастает. Инжекция излучения задающего генератора приводит к существенному ускорению истощения накачки.

Одним из основных параметров источника излучения, определяющих возможность его использования для лидарных измерений, является Для пространственная яркость стоксовых компонент. определения расходимости излучения, использовалась стандартная процедура измерения пространственного распределения интенсивности излучения в фокальной плоскости длиннофокусного сферического зеркала. Для этого в фокальную плоскость зеркала с f = 6 м помещались диафрагмы различного диаметра, и измерялась энергия прошедшего сквозь них излучения. В отличие от ВКР в водороде, в процессе которого расходимость стоксовых компонент может существенно увеличиваться, расходимость стоксовых компонент излучения KrF-лазера в дейтерии близка к расходимости накачки [298]. Измерения показали, что в наших экспериментальных условиях при максимальной энергии накачки и давлении дейтерия 35 атм внутри угла 1 мрад содержится более 90% энергии излучения первой, второй и третьей стоксовых компонент. Поле зрения приемного телескопа в лидарных системах составляет, как правило, ~1 мрад, поэтому после телескопирования в 2-3 раза, описанный источник излучения может быть использован для лидарных измерений в стратосфере и тропосфере.

Таким образом, продемонстрирована возможность эффективного преобразования излучения с длиной волны 248 нм в первые четыре стоксовы компоненты в дейтерии при использовании KrF лазерной системы генератор-

- 296 -

усилитель. При выходной энергии лазера 250 мДж реализована генерация излучения на длине волны 319 нм с энергией свыше 40 мДж. При использовании такого источника излучения совместно с XeCl-лазером в лидаре дифференциального поглощения можно проводить измерение концентрации стратосферного озона с малыми статистическими и систематическими погрешностями.

Таблица 6.3. Коэффициенты преломления дейтерия для различных длин при давлении p = 1 атм и $T = 20^{\circ}$ С

| Стоксова | λ (нм) | $(n-1)*10^6$ |
|-----------------|--------|--------------|
| компонента | | |
| S ₋₁ | 230.3 | 156.2 |
| S ₀ | 258.5 | 153.2 |
| S_1 | 268.5 | 150.0 |
| S_2 | 292.0 | 147.3 |
| S_3 | 319.8 | 144.9 |



Рис.6.8. Квантовые эффективности преобразования в компоненты S₁ (*a*, б), S₂ (*b*, *c*) и S₃ (*d*, *e*) в зависимости от энергии излучения накачки *E* для давлений дейтерия 5 (1), 10 (2) и 35 атм (3) при инжекции излучения задающего генератора (*a*, *b*, *d*) и без нее (6, *c*, *e*).



Рис.6.9. Зависимости квантовой эффективности генерации компонент S_2 (2,3) и $S_3(1,4)$ от давления при инжекции излучения задающего генератора (1, 2) и без нее (3,4).



Рис.6.10. Зависимости доли η_0 излучения накачки, прошедшего сквозь кювету, от энергии накачки на входе ВКР-преобразователя для давлений дейтерия 5 (1,4), 10(2,5) и 35 атм (3,6) при инжекции излучения задающего генератора (4-6) и без нее (1-3).

\$6.4. Лидар дифференциального поглощения на основе эксимерных лазеров для исследования стратосферного озона

В данном разделе приведено описание лидара на основе эксимерных XeCl и KrF лазеров для изучения озона в стратосфере и верхней тропосфере. Лидар создан в ЦФП ИОФ РАН при участии НПО "Тайфун"по заказу Южно-Корейского университета Кьюнг Хи.

Описание лидара

Упомянутые в обзоре лидарные системы, для мониторинга озона, используют мощные XeCl лазеры с энергией ~ 0.5 Дж и приемные телескопы с апертурой ~1 м, что позволяет производить измерения до 50 км. Однако подобные системы очень дороги (в лидаре JPL, например, используется четыре электроразрядных XeCl модуля). Вместе с тем, во многих задачах наибольший интерес представляют измерения от приземного слоя до высот ~ 30 км, соответствующих максимуму концентрации озона. Это, в первую очередь, связано с изучением переноса озона из стратосферы и тропосферу. Такие быть недорогими системы ΜΟΓΥΤ относительно И полностью автоматизированными, что позволяет проводить непрерывный мониторинг озона в течение длительного времени. Несколько модификаций подобных систем на основе эксимерных лазеров, для различных высотных интервалов, были разработаны в ЦФП ИОФ РАН.

На рис.6.11 изображена оптическая схема лидарной системы для измерения стратосферного озона, которая включает в себя источник излучения, приемный телескоп с анализатором спектра и блоком ФЭУ, а также электронную систему регистрации и обработки данных.

Источник излучения создан на основе электроразрядных эксимерных лазеров (модель 1702), разработанных в ЦФП ИОФ РАН и ВКР-преобразователей заполненных водородом и дейтерием. ВКР-преобразователи

изготовлены из нержавеющей стали и рассчитаны на работу с газами при давлениях до 8 МПа. Их длина составляла 1 м при внутреннем диаметре 30 мм. В качестве окон использовались кварцевые линзы толщиной 15 мм с фокусными расстояниями 500 мм.

 Технические характеристики лазера «Модель 1702»:

 Выходная энергия на смеси XeC1
 80 мДж

 на смеси KrF
 180 мДж

 Максимальная частота повторения
 100 Гц

 Расходимость (по уровню 50% энергии)
 менее 0.5 мрад

 Время жизни смеси XeC1
 10⁷ импульсов

 смеси KrF
 2 *10⁵ импульсов

Излучатели для тропосферной и стратосферной подсистем располагались на двух оптических столах. Для зондирования стратосферного озона использовался XeCl лазер (308 нм). Выходная энергия такого лазера с неустойчивым резонатором составляла ~80 мДж. Опорная длина волны (353 нм) генерировалась в ВКР-преобразователе, заполненном водородно-неоновой смесью при парциальном давлении каждого газа 1.5 МПа. Такие давления были выбраны для того, чтобы достичь оптимального отношения энергий прошедшей накачки и первой стоксовой компоненты $E_0/E_{1S} = 4-5$ и подавить высшие стоксовы и антистоксовы компоненты.

Распределение энергии излучения на выходе ВКР-преобразователя между различными стоксовыми компонентами при максимальной энергии накачки приведено на рис.6.12. При отношении $E_0/E_{1S} ==4.5$ около 85 % энергии излучения содержится в накачке и первой стоксовой компоненте, используемых для зондирования. Энергетические потери в оптическом тракте и ВКР-преобразователе приводят к тому, что в стратосферной подсистеме энергия излучения, направляемого в атмосферу, на длинах волн 308 и 353 нм составляет 40 и 9 мДж соответственно.

Угловые распределения энергии накачки на входе и выходе преобразователя приведены на рис.6.13. Излучение накачки состоит из керна с

высокой пространственной яркостью и сильно расходящихся «крыльев». Такое угловое распределение типично для эксимерного лазера с неустойчивым телескопическим резонатором. В процессе ВКР-преобразования доля излучения в «керне» уменьшается, однако внутри угла 1 мрад попрежнему содержится около 74 % энергии. На рис.6.13 приведено также угловое распределение энергии в первой стоксовой компоненте. В процессе ВКР «крылья» не участвуют, поэтому относительная пространственная яркость первой стоксовой компоненты значительно выше яркости накачки. Из рис.6.13 видно, что внутри угла 1 мрад содержится 92% энергии первой стоксовой компоненты. Угол зрения приемного телескопа в лидарной системе составляет 1.5 мрад, поэтому излучение с приведенными выше параметрами можно использовать для зондирования.

источнике излучения тропосферной В подсистемы ДЛЯ накачки дейтериевого или водородного ВКР-преобразователя использован KrF лазер (248 нм) с выходной энергией 180 мДж. Для зондирования тропосферного озона излучение накачки не используется вследствие его значительного параметры ВКР-кюветы поглощения, поэтому оптимизировались ДЛЯ эффективного преобразования накачки в первые И вторые стоксовы компоненты комбинационного рассеяния в водороде и дейтерии.

Как было показано в предыдущем разделе, для эффективной генерации второй стоксовой компоненты в дейтерии, желательно использовать длиннофокусную фокусирующую оптику. Однако длина ВКР-преобразователя в наших условиях была ограничена размерами системы, и мы не могли использовать фокусирующие линзы с фокусным расстоянием, превышающим 0.5 м. Как следствие, эффективность генерации S₂ компоненты в дейтерии составляла около 8%.

На первом этапе исследований для измерений концентрации озона в интервале высот 4-12 км использовалась лишь одна пара длин волн - 292/319 нм (вторая и третья стоксовы компоненты в дейтерии). Зондирование на длинах волн 292/319 нм вместо традиционной пары 292/313 нм (вторые

- 302 -

стоксовы компоненты в водороде и дейтерии) позволяет использовать всю энергию накачки в одном ВКР-преобразователе и увеличивать, таким образом, эффективность генерации на длине волны 292 нм. Кроме того, в этом случае пучок направляется в атмосферу с помощью только одного зеркала, что значительно упрощает юстировку системы. С учетом потерь в формирующей оптике и ВКР-преобразователе, лидарная система излучала в атмосферу энергию 8 мДж на длине волны 292 нм и 2 мДж на длине волны 319 нм.

Система регистрации

Оптическая схема приемного модуля изображена на рис.6.14. Рассеянное в атмосфере излучение собирается телескопом Касегрена 1 с диаметром главного зеркала 0.6 м и направляется в анализатор спектра. Для блокировки мощного рассеянного сигнала, поступающего с малых высот, используется механическая отсечка 2. Для коллимации оптического сигнала, после входной диафрагмы 3 располагается линза 4 c f = 5 см. Паразитная засветка в видимой области устраняется фильтром УФС-1 5. Дихроичные зеркала 6 делят принимаемый оптический сигнал на три канала. а узкополосные интерференционные фильтры 7-9 изолируют рабочие длины волн.

Прошедшие оптические сигналы фокусируются 10 линзами на фотокатоды ФЭУ 11. Анализатор спектра имеет следующие коэффициенты пропускания: первый канал (292 нм) - 48%, второй канал (353 нм) - 52%, третий канал (308/319 нм) - 54/47% соответственно. Выходной сигнал с каждого ФЭУ поступает на вход усилителя-дискриминатора и, затем, на фотонов. Синхронизация всех счетчик электронных модулей лидара осуществляется импульсами с устройства механической отсечки 2. Расстояние между оптическими осями лазерного пучка и приемного телескопа равно 2.5 м для стратосферной подсистемы и 0.4 м для тропосферной.

Механическая отсечка 2 размещается на кожухе анализатора. Частота вращения отсечки составляет 250 Гц, и лопасть перекрывает входную диафрагму дважды за оборот. Диапазон высот, сигнал с которых блокирован отсечкой, регулируется изменением временной задержки между моментом перекрытия входной диафрагмы лопастью и моментом срабатывания лазера. Диаметр изображения в фокальной плоскости телескопа при угле зрения 1.5 мрад составляет 9 мм, а соответствующее время полного открытия диафрагмы - 75 мкс, что для тропосферных измерений является слишком большим. Для уменьшения размера изображения до 3 мм использовалась дополнительная линза 12 с f=5 см.

Приемный телескоп после установки жестко фиксировался, и настройка лидара осуществлялась юстировкой лазерного пучка. Грубая юстировка производилась по лидарному сигналу на экране осциллографа, уровень отсечки при этом соответствовал 15 км. Для точной юстировки зондирующий пучок сканировался по полю зрения телескопа с накоплением 100 импульсов в каждой точке, и результат выводился на дисплей компьютера. По окончании этой процедуры зеркало устанавливалось в положение, соответствующее центральному распространению пучка в поле зрения.

В описываемой лидарной системе могут быть реализованы следующие режимы зондирования:

1. Стратосферные измерения. В этом случае работает только XeCl лазер, а в анализаторе спектра задействованы второй (353 нм) и третий (308 нм) каналы.

2. *Тропосферные измерения*. В этом случае работает только KrF лазер, а в анализаторе спектра задействованы первый (292 нм) и третий (319 нм) каналы.

3. Одновременные стратосферные и тропосферные измерения. Оба лазера работают поочередно с задержкой 10 мс. Такая задержка позволяет производить зондирование при частоте следования импульсов до 50 Гц.

Выбор режима зондирования, уровня отсечки и контроль за работой счетчиков фотонов производился с панели компьютера.

Обработка данных

Для обработки высотных профилей сигнала обратного рассеяния был

использован метод дифференциального поглощения с учетом влияния стратосферного аэрозоля, подробно изложенный в работах [299-300, 302-304]. Общее выражение для определения содержания озона записывается как:

$$n_{oz} = -\frac{1}{2\Delta s_{oz}} \frac{\partial}{\partial z} \ln\left[\frac{P_1(z)}{P_2(z)}\right] - \frac{1}{\Delta s_{oz}} \left[a_1^m - a_2^m\right] + \frac{1}{2\Delta s_{oz}} \frac{\partial}{\partial z} \ln\left[\frac{b_1(z)}{b_2(z)}\right] - \frac{1}{\Delta s_{oz}} \left[a_1^a - a_2^a\right] \quad (6.4)$$

Два последних члена в уравнении (6.4) описывают эффекты дифференциального обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля. Поскольку измерения в верхних слоях стратосферы проводятся с высотным разрешением несколько километров, то вычисления соответствующих В вместо производных, удобнее использовать выражения приведенные в [299-300]. В соответствие с ними, средняя концентрация озона в слое Dz на высоте z вычисляется как:

$$n_{oz} = \frac{1}{s_{oz}\Delta z} \frac{N_1(z_1)N_2(z_2)}{N_1(z_2)N_2(z_1)} - B - C$$
(6.5)

где $B = \frac{B_1}{S_{oz}\Delta z}$ - поправка, учитывающая спектральную зависимость

коэффициента обратного рассеяния;

$$B_{1} = \ln \frac{\left[b_{1}^{m}(z_{1}) + b_{1}^{a}(z_{1})\right]}{\left[b_{1}^{m}(z_{2}) + b_{1}^{a}(z_{2})\right]} \frac{\left[b_{1}^{m}(z_{2}) + b_{1}^{a}(z_{2})\right]}{\left[b_{2}^{m}(z_{1}) + b_{2}^{a}(z_{1})\right]}$$
(6.6)

 $C = \frac{\left[a^{a}(z) - a^{m}(z)\right]}{s_{oz}}$ - поправка, учитывающая спектральную зависимость коэффициентов аэрозольного и молекулярного ослабления без учета поглощения излучения озоном; $\alpha^{m} = \alpha^{m}_{1} - \alpha^{m}_{2}$ - коэффициенты молекулярного и аэрозольного полного рассеяния (экстинкции); $\beta^{m}(z)$ и $\beta^{a}(z)$ - коэффициенты молекулярного и аэрозольного обратного рассеяния; $\sigma_{oz} = \sigma_{oz1} - \sigma_{oz2}$ - дифференциальное сечение поглощения озона. Здесь всюду индекс 1 соответствует основной длине волны (308 нм), а индекс 2 - опорной длине волны (353 нм); $z_{1} = z - \frac{1}{2}\Delta z^{*}$; $z_{2} = z + \frac{1}{2}\Delta z^{*}$; $N_{1}(z)$ и $N_{2}(z)$ - число фотоотсчетов, соответствующих сигналам рассеяния с высоты z из слоя толщиной Δz^{*} . Для

нахождения *C* предполагалось, что аэрозольный коэффициент ослабления пропорционален $\lambda^{-\gamma}$, где γ -коэффициент Ангстрема. Считалось, что никакие молекулы в атмосфере, кроме озона, не поглощают излучения на используемых длинах волн. Принималось также, что $\alpha^{m} = \lambda^{-4}$. При этом выражение для поправки *C* в первом приближении принимает вид [300]:

$$C = \frac{a_a + 4a_m}{s_{oz}} \frac{\Delta l}{l_2}$$

Для нахождения поправки *В* исходим из предположения, что $\beta^{a} \sim \lambda^{-\delta}$. Тогда, введя переменную

$$R_{sc}(z) = \frac{b^a(z) + b^m(z)}{b^m(z)}$$

т.е. отношение суммарной интенсивности обратного рассеяния к интенсивности молекулярного, запишем выражения для *B* и C в первом приближении:

$$B(z) = \frac{4 - d}{2\Delta z \boldsymbol{s}_{oz}} \frac{\Delta I}{I_2} \left[\frac{R_{2sc}(z_1) - 1}{R_{2sc}(z_1)} - \frac{R_{2sc}(z_2) - 1}{R_{2sc}(z_2)} \right]$$
(6.7)

$$C(z) = \frac{1}{s_{oz}} \frac{\Delta I}{I_2} \Big[R(R_{2sc}(z) - 1) b_2^m(z) + 4a_2^m \Big]$$
(6.8)

где R= α^a/β^a – лидарное отношение; R_{sc}(z) - относительная интенсивность обратного рассеяния на большей длине волны (353 нм), найденная методом Рассела [301]. При расчете R_{2sc}(z), β^m_2 (z), α^m_2 используется справочный профиль плотности воздуха для данного широтного диапазона и времени года. Для нахождения поправок *B* и C выбраны постоянные по высоте показатели спектральных зависимостей коэффициентов полного и обратного рассеяния излучения аэрозолем d = g = 1, отношение этих коэффициентов R = 50 ср.

Результаты зондирования

Описанная лидарная система была установлена в Институте Лазерной Инженерии Университета Кьюнг-Хи (г. Сувон, Южная Корея). Число импульсов лазера, по которым производилось суммирование сигнала обратного рассеяния, составляло: 20,000 на длинах волн 292/319 нм, и 50,000 на длинах волн 308/353 нм - за один цикл зондирования. Максимальная высота зондирования определялась статистической погрешностью. При выбранной погрешности 20-30% и указанном выше уровне накопления максимальная высота зондирования составляла 30— 32 км для стратосферной подсистемы и 14-16 км для тропосферной подсистемы. Начальный уровень зондирования ограничен динамическим диапазоном фотоприемников и при максимальной мощности излучения составляет 12-15 км для стратосферной и 4— 6 км для тропосферной подсистем лидара. Для проведения измерений на меньших высотах в каждом поддиапазоне апертура приемного телескопа частично блокировалась экраном.

На рис.6.15 приведены высотные профили концентрации озона, полученные 18 и 25 апреля, а также 3, 5 и 7 мая 1993 г. Мощный вторичный максимум концентрации озона в слое 9.5 -12 км наблюдался 25 апреля. Аналогичная структура озонового слоя в районе южных островов Японского архипелага в мае 1986 г. описана в работе [305]. Авторами этой работы наблюдались 1-2 резких тропосферных максимума концентрации озона в слоях воздуха с температурной инверсией. Было установлено, что воздушные массы на этих высотах формировались над центральными районами Китая. На рис.6.16 показаны объединенные профили концентрации озона (два в тропосфере и два в стратосфере), полученные 25 апреля,



Рис.6.11. Оптическая схема лидарной системы (а,б) и приемный телескоп (в): 1 – XeCl (а) и KrF (б) лазеры; ВКР-преобразователи на водороде (а) и дейтерии (б).



Рис.6.12. Распределение энергии излучения E между стоксовыми (S₀, S₁, S₂) и антистоксовой (AS₁) компонентами на выходе ВКР-преобразователя в стратосферной подсистеме.



Рис.6.13. Угловое распределение энергии излучения первой стоксовой компоненты (о), а также излучения накачки на входе (•) и выходе (*) ВКР-преобразователя в стратосферной подсистеме.



Рис.6.14. Оптическая схема приемной системы лидара для зондирования атмосферного озона.



Рис.6.15. Высотные профили концентрации озона в тропосфере, полученные 18 и 25 апреля, а также 3, 5 и 7 мая 1993 г.



Рис. 6.16. Объединенные профили распределения концентрации озона в тропосфере и стратосфере, измеренные 25 апреля.

§ 6.5. Лидар дифференциального поглощения на основе эксимерных лазеров для мониторинга тропосферного озона

Важность долговременного мониторинга тропосферного озона на сегодняшний день хорошо осознана, и сеть локальных датчиков по всему миру позволяет получать глобальную информацию о содержании озона вблизи Земли. Тем не менее. для поверхности полного анализа процессов фотохимической генерации и переноса озона необходимы методики, позволяющие получать круглосуточную информацию о его вертикальном распределении вплоть до тропопаузы с разрешением в несколько сотен метров и точностью порядка 1 ppb. Способность лидара производить такого рода измерения была продемонстрирована более 15 лет назад. Однако в отличие от стратосферных систем на основе эксимерных лазеров, ставших стандартным инструментом в атмосферных исследованиях, создание тропосферных лидаров, способных производить регулярные долговременные измерения началось относительно недавно [122-125, 306-315]. задержка связана с Такая многочисленными проблемами, которые нужно было решить для достижения требуемой точности.

Основным источником ошибок в озонных измерениях является высокое содержание аэрозолей и примесных газов в тропосфере и, особенно, в пограничном слое. Поэтому выбор оптимальных длин волн для зондирования становится особенно важным. Если в стратосферных лидарах при выборе поглощаемой длины волны не существует серьезной альтернативы XeCl лазеру, то для измерений в тропосфере, по крайней мере, три типа лазерных источников излучения, уже успешно использовались для такого рода измерений. Это перестраиваемые лазеры на красителях и кристаллах титансапфира [123, 306, 307, 309, 312, 313, 316], а также лазеры с фиксированной длины волны в УФ спектральной области, такие как эксимерные KrF лазеры [124, <u>125</u>, <u>283</u>, 317, <u>318</u>] и Nd:YAG лазеры с Генератором четвертой гармоники [121, 122, 308, 319] используемые в комбинации с BKP - преобразователями. К числу перестраиваемых лазеров следует отнести также появившиеся недавно

параметрические генераторы света, хотя озонные лидары на их основе [126], пока еще слишком сложны для регулярных измерений в полевых условиях.

Перестраиваемые лазеры позволяют выбирать оптимальные длины волн для зондирования, однако их мощностные характеристики достаточно ограниченны. Как уже отмечалось в §2, погрешности измерений при использовании KrF лазера и Nd:YAG лазера с генератором четвертой гармоники сопоставимы, поэтому выбор между этими типами лазеров определяется главным образом удобством их использования в условиях лидарной станции.

В предыдущем разделе было приведено описание стратосферной лидарной системы, которая, в принципе, способна производить измерения в тропосфере, начиная с высоты ~ 3-4 км. Однако, используемая, пара длин волн 292 – 319 нм при измерении на малых высотах характеризуется значительными статистическими погрешностями. Как следствие, в данной системе не может быть достигнуто требуемое в тропосферных измерениях временное и высотное разрешение. В данном разделе приводится описание лидарной системы на основе эксимерных лазеров, разработанной в ЦФП ИОФ РАН для измерения содержания озона в нижней тропосфере в дневное и ночное время суток [125, 283, 318]. Лидар расположен в городе Троицк, Московской области.

6.5.1. Описание лидарной системы

Для обеспечения необходимой точности измерений в большом диапазоне высот, требуется набор длин волн, характеризуемых различных сечением поглощения озона. Концентрация аэрозоля и ее градиент особенно велики в пограничном слое, поэтому систематические погрешности измерений, обусловленные спектральной зависимостью коэффициента обратного рассеяния в этом высотном диапазоне, могут быть значительны. KrF эксимерный лазер в комбинации с водородным и дейтериевым ВКР преобразователями может эффективно генерировать стоксовы компоненты на

длинах волн 268, 277, 292, 313 и 319 нм. Анализ статистических и систематических ошибок измерений для различных комбинаций длин волн приводился в параграфе 6.2 данной главы. Для измерений в пограничном слое, пары 268-292 нм (две первые стоксовые компоненты в дейтерии) и 277-313 нм (две первых стоксовых компоненты в водороде) используются наиболее часто. Эти пары характеризуются высоким дифференциальным сечением поглощения озона и их выбор удобен с чисто практической точки зрения: каждая пара генерируется с использованием одной ВКР-ячейки, что позволяет увеличить эффективность преобразования и упрощает процедуру настройки. Пара 268-292 нм характеризуется меньшими погрешностями до высоты 2 км, но из-за сильного поглощения озоном компоненты с λ =268 нм, для измерений на больших высотах пара 277-313 нм является предпочтительной.

Для регулярных измерений обычно выбирается пара 277-313 нм, поскольку ВКР-преобразование в водороде более эффективно и эта пара позволяет производить измерения до 5-6 км [283]. В модифицированной версии тропосферного лидара [125] используется дополнительный XeCl лазер (308 нм), в качестве генератора опорной длины волны, вместо 313 нм. Данная модификация была вызвана следующими причинами:

- необходимостью увеличить энергию в излучателе опорной длины волны, чтобы сделать возможными высотные измерения в светлое время суток;

- необходимостью использовать сигналы рамановского рассеяния для определения содержания водяного пара. Кроме того, рамановский сигнал азота использовался для аэрозольной коррекции озонных профилей.

В этой модификации лидара пара 277-308 нм используется для 0.5 км – 4.5 км высотного диапазона, а пара 292 – 308 нм для 4 км – 10 км диапазона высот.

Блок-схема лидара приведена на рис.6.17. КrF и XeCl эксимерные лазеры (производства ЦФП) с энергией 200 мДж и 80 мДж соответственно, работают с частотой повторения импульсов 50 Гц. Лазеры срабатывают одновременно, и точность их временной синхронизации лучше 10 нс. Излучение KrF лазера

фокусируется линзой с фокусом 1 м в водородную либо дейтериевую ВКРячейку. Давления водорода и дейтерия составляют 1.5 атм и 40 атм соответственно, для оптимизации генерации 277 нм и 292 нм компонент. Энергия KrF лазера недостаточна для накачки обеих ячеек одновременно. поэтому для переключения излучения накачки с одной ячейки на другую используется зеркало М, направляющее излучение лазера в дейтериевую ячейку, когда это необходимо. Стоксовы компоненты коллимировались сферическим зеркалом с f = 2.5 м и направлялись в атмосферу при помощи двух юстируемых зеркал, установленных возле приемного телескопа. Диэлектрические покрытия поворотных зеркал полностью отражали используемые длины волн (268 nm - 319 nm) и пропускали стоксовы компоненты высших порядков. Пучок XeCl лазера телескопировался с коэффициентом увеличения 2, расходимость пучка после телескопирования не превышала 0.5 мрад. Расходимость компонент излучения с длинами волн 277 нм и 292 нм, также не превосходила эту величину. Энергия импульсов излучаемых в атмосферу составляла 50 мДж для 277 нм, 30 мДж для 292 нм и 70 мДж для 308 нм компонент.

Приемная система

Рассеянное в атмосфере излучение собиралось телескопом Кассегрена с апертурой 60 см и направлялось в анализатор спектра. Линза с f=10, см установленная после входной диафрагмы, коллимировала излучение в пучок диаметром около 10 мм. Дихроичные зеркала разделяли оптические сигналы по приемным каналам, а интерференционные фильтры установленные перед ФЭУ изолировали используемые длины волн. Подавление "просачивания" оптических сигналов между каналами было лучше 10^4 . Первый канал использовался для регистрации оптического сигнала на длине волны 277 нм либо 292 нм, второй для $\lambda=308$ нм и третий для регистрации рамановского сигнала от азота либо водяного пара (331 нм и 347 нм). Интерференционные

фильтры в первом и третьем каналах могли легко заменяться, в соответствие с используемыми длинами волн. Подавление упругого рассеяния в рамановском канале должно быть лучше, чем 10⁸, для обеспечения требуемого подавления использовался дополнительный поглощающий фильтр (спиртовой раствор гидрохинона диметил эфира). Этот фильтр пропускает излучение с длиной волны превосходящей ~ 325 нм и поглощает излучение XeCl лазера. Ширина полосы пропускания интерференционных фильтров для всех длин волн составляла 3 нм. Коэффициент пропускания фильтров на длинах волн 277 и 268 нм составлял около 12%, для остальных длин волн он превосходил 30%.

Оптические сигналы регистрировались ФЭУ, работающими в аналоговом режиме и оцифровывались 12 разрядными 30 МГц АЦП. Модули АЦП использовались со стандартной VME шиной, и контроллер каждый раз суммировал заданное число лазерных импульсов, после чего они поступали в главный компьютер через последовательный порт.

6.5.2. Обработка данных зондирования

Для вычисления концентрации озона нами использовалось выражение:

$$n_{oz} = -\frac{1}{2\Delta s_{oz}} \frac{\partial}{\partial z} \ln \left[\frac{P_{on}(z)}{P_{off}(z)} \right] - \frac{1}{\Delta s_{oz}} \left[a_{on}^{R} - a_{off}^{R} \right]$$

где P(z) – интенсивность рассеянного излучения на высоте z; $\alpha_{on,off}^{R}$ - коэффициент Рэлеевской экстинкции для λ_{on} и λ_{off} . Перед вычислением концентрации озона из лидарных сигналов вычитается фоновое значение (засветка неба и электронный шум). Фоновыми значениями являются результаты измерений, которые проводятся между лазерными импульсами и сохраняются в виде отдельных файлов. Лидарные данные перед дифференцированием сглаживались Гауссовыми фильтрами. Ширина окна такого фильтра обычно выбиралась равной 50 м. Шаг дифференцирования

изменялся с высотой от $\Delta z = 50$ м для z < 1 км до $\Delta z = 1$ km для z > 8 км.

Одним из наиболее серьезных источников погрешностей в лидарных измерениях, является шум ФЭУ, индуцированный сигналом. Эта проблема пока еще не нашла удовлетворительного решения, хотя различные методы коррекции и были предложены [122, 123]. Данный шум возникает при интенсивном облучении фотокатода оптическими сигналами, пришедшими с малых высотах. Для того чтобы избежать избыточных импульсов анодного тока, усиление ФЭУ модулируется электронным образом. Запирающий импульс подается на диноды возле фотокатода за 5 мкс до импульса излучения лазера. Усиление ФЭУ при этом уменьшается в 500 раз. После выключения запирающего импульса, ФЭУ достигает нормального уровня усиления в течение ~600 нс. Анодный ток в процессе измерения никогда не превосходил 1 мА. Предпринятые меры позволили минимизировать эффект индуцированного шума И использовать практически весь динамический диапазон предоставляемый 12-разрядным АЦП.

Лидарные сигналы могут быть надежно обработаны только в области полного перекрытия лазерного пучка и поля зрения телескопа. Высота Н, на которой такое перекрытие достигается, может быть оценена как

 $H=2L/(\phi - \theta)$, где L это максимальное расстояние между краями телескопа и лазерного пучка, θ и ϕ – расходимость пучка и поле зрения телескопа. Для измерений на малых высотах телескоп частично блокировался, открытой оставалась лишь апертура диаметром 20 см, как это показано на рис.6.17. Поле зрения приемного телескопа при измерениях на малых высотах составляло 1.5 мрад, и полное перекрытие достигалось на высотах менее 500 м. Напряжение на ФЭУ при измерениях на малых высотах уменьшалось. При измерениях на больших высотах использовалась полная апертура приемного телескопа, а его поле зрения уменьшалось до 0.8 мрад. Пример состыковки озонных профилей полученных на малых и больших высотах с использованием длин волн 277-308 нм приведен на рис.6.18. Задержка между этими измерениями не превосходила 5 минут. Полученные профили хорошо

согласуются между собой. Измерения с уменьшенной апертурой телескопа были возможны до высоты ~2.5 км, а при полностью открытом телескопе до высоты ~ 4.5 км. Для измерений на больших высотах использовалась пара 292-308 нм.

Аэрозольная коррекция

Пограничный слой атмосферы характеризуется высоким содержанием аэрозоля, и градиенты его концентрации приводят к существенным погрешностям в измерении озона. Следовательно, соответствующая коррекция должна быть введена. Член, корректирующий эффект аэрозоля может быть записан в виде:

$$\Delta n_{oz} = \frac{1}{2\Delta s_{oz}} \frac{\partial}{\partial z} \ln \left[\frac{b_{on}(z)}{b_{off}(z)} \right] - \frac{1}{\Delta s_{oz}} \left[a_{on}^{A} - a_{off}^{A} \right]$$

где - $\alpha_{on.off}$ - коэффициенты экстинкции аэрозоля на длинах волн λ_{off} и λ_{on}; β_{on,off}^{A,R} - коэффициенты обратного аэрозольного и Рэлеевского рассеяния; k и δ коэффициенты, характеризующие спектральную зависимость параметров аэрозоля. Первый член В ЭТОМ выражении корректирует эффект дифференциального обратного рассеяния, второй член соответственно корректирует эффект дифференциальной аэрозольной экстинкции. Для вычисления коэффициентов обратного рассеяния и экстинкции аэрозоля может быть использован метод Клетта либо рамановский метод (КР метод), как это было описано во второй главе.

Два высотных профиля коэффициента экстинкции, полученные методом Клетта и рамановским методом в январе 1998, представлены на рис.6.19 Количество усредненных лазерных импульсов в измерении составляет 10^4 , шаг дифференцирования менялся с высотой от $\Delta z = 50$ м для z < 1 км, до $\Delta z = 1$ км при z > 8 km. Приведенный профиль типичен для зимнего периода: экстинкция внутри пограничного слоя составляет около 0.2 км⁻¹, и при переходе через его

границу (~ 2 км) концентрация аэрозоля изменяется достаточно плавно. Как видно из рисунка, метод Клетта и рамановский метод дают близкие результаты. На рис.6.20 показана высотная зависимость лидарного отношения R полученная рамановским методом в этих же измерениях. Внутри пограничного слоя лидарное отношение составляет 25-30, и затем его величина уменьшается с высотой.

рамановский метод позволяет более корректно вычислять коэффициенты экстинкции обратного рассеяния внутри пограничного И слоя. но статистические погрешности метода быстро увеличиваются с высотой, поскольку сечение комбинационного рассеяния на 3 порядка меньше сечения Рэлеевского рассеяния. Для улучшения точности необходимо увеличивать накопление сигнала. неприемлемо ЧТО В регулярных тропосферных требующих высокого временного разрешения измерениях, получаемых данных. В наших измерениях мы использовали рамановские данные только для проверки величины коэффициента экстинкции внутри пограничного слоя и для оценки величины лидарного отношения. Для коррекции озонных профилей в регулярных измерениях использовался метод Клетта с постоянным лидарным отношением.

Пример аэрозольной коррекции высотного профиля озона полученного 18 ноября 1997 показан на рис.6.22. На этом же рисунке показан профиль коэффициента экстинкции полученный методом Клетта. В вычислении использовались $\delta = k = 1$. Осцилляции концентрации озона в диапазоне 1 км – 2.5 км обусловлены дифференциальным рассеянием аэрозоля, и после коррекции эти осцилляции значительно уменьшаются. Вычисление концентрации озона без аэрозольной коррекции завышает концентрацию внутри пограничного слоя на величину ~10⁻¹¹ см⁻³. Коррекция дифференциального рассеяния, основанная на методе Клетта, достаточно хорошо работает для тонких аэрозольных слоев, но не применима для плотных слоев с коэффициентом обратного рассеяния ~1 км⁻¹ср⁻¹. В этом случае должна использоваться рамановская методика.

В процессе озонных измерений часто наблюдалось появление аномалий в
распределении озона, таких как выбросы или провалы, которые могли наблюдаться В течение нескольких часов. Аэрозольная коррекция исключительно важна для отделения реальных эффектов вариации озона от артефактов, обусловленных аэрозолем. К примеру, в течение весеннего сезона неоднократно наблюдались провалы в содержании озона на высоте ~1.5 км. Однако провалов источниками этих являются высокие градиенты концентрации аэрозоля на границе пограничного слоя, и этот провал исчезает после аэрозольной коррекции.

рамановский канал лидарной системы использовался также для измерений содержания водяного пара. Разумеется, данный лидар уступает по своим энергетическим характеристикам более совершенной системе, описанной в главе 4, однако он позволял получать полезную информацию о содержании водяного пара внутри пограничного слоя, необходимую для изучения фотохимических процессов в тропосфере.

6.5.3. Регулярные измерения озона

Тестирование системы было закончено к июню 1997 года, и с этого времени начались регулярные измерения озонных профилей. Главной целью этих измерений было исследование суточных и сезонных вариаций озона в тропосфере. Зондирование проводилось только при ясной погоде и в отсутствие облаков.

Концентрация озона в тропосфере зависит от многих факторов, таких состояние атмосферы, солнечная активность и наличие антропогенных выбросов. Средняя концентрация озона летом выше, чем зимой [320]. Обычно содержание озона уменьшается с высотой и в свободной тропосфере оно примерно вдвое ниже, чем внутри пограничного слоя.

Два типичных высотных профиля озона полученные на длинах волн 277-308 нм и 292-308 нм представлены на рис.6.23. Задержка между измерениями на этих парах волн не превосходила 15 минут. Для пары 277-308 количество

усредненных лазерных импульсов составляло 2000 при максимальной высоте зондирования 4.5 км. Пара 292-308 нм использовалась для высотного диапазона 4 – 10 км и в типичном измерении усреднялось 10.000 импульсов. Облака часто ограничивали максимальную высоту зондирования на уровне 7-8 км. В профиле представленном на рис.6.236 пик концентрации озона на высоте 5.5 км и провал на высоте 6.5 км обусловлены аэрозольным слоем, который не удается скорректировать полностью.

Точность измерений в нижней тропосфере (1 – 3 км) зависит от содержания аэрозоля и варьируется от 5% до 15%. Погрешность в диапазоне 3-6 км определяется в основном нелинейностями ФЭУ и шумами электроники и составляет около 15 %. Увеличение погрешности до 30% в диапазоне 6 км – 10 Для КМ обусловлено статистическими погрешностями. уменьшения необходимо соответствующей неопределенности увеличивать энергию компоненты с длиной волны 292 нм и увеличивать время накопления. При обработке данных не учитывалась температурная зависимость сечения поглощения озона, а также влияние SO₂. Погрешности, обусловленные этими факторами, обычно не превосходят 3%.

Значительные суточные вариации содержания озона наблюдаются в районах, характеризуемых высокой загрязненностью атмосферы. Увеличение концентрации озона обусловлено его фотохимической генерацией. И максимальное содержание наблюдается обычно после полудня. В условиях чистой атмосферы, суточные вариации озона невелики. Кроме того, суточные вариации озона в зимний период меньше чем в летний. Проведенные измерения показали, что зимой, при стабильных погодных условиях, суточные вариации озона обычно не превосходили 5-10%. Однако при изменении погоды, особенно когда воздушные приходили со стороны Москвы, эти изменения достигали 20-30%. Поэтому при изучении сезонных вариаций, озонные профили, полученные в течение суток, усреднялись.

На рис.6.24 показаны несколько озонных профилей, измеренных 20.02.1998, в период с 12:00 до 19:30. Профили вычислялись при постоянном

шаге дифференцирования $\Delta z = 100$ m. После суммирования всех профилей полученных в течение дня, вычислялись средние значения концентрации озона на высотах 500±100 м, 1000±200 м, 2000±300 м, 3000± 400 м и 4000±500 м. К сожалению, из-за сильной облачности возможность проводить измерения в течение суток, в Московской области предоставляется не часто. Обычно измерения проводились 5-6 раз в месяц, в течение нескольких часов, поэтому мы не могли полностью исключить влияние суточного озонного цикла, при сравнении результатов полученных в разные дни. Иллюстрация суточных вариаций озона приведена также на рис.6.25, из которой видна корреляция движения границы пограничного слоя, определяемого по коэффициенту рассеяния аэрозоля, со смещением области, характеризуемой максимальным содержанием озона.

На рис.6.25 приведены сезонные изменения концентрации озона для различных высот в диапазоне от 1 км до 4 км, полученные на основании лидарных измерений проведенных в период с ноября 1997 – по июнь 1998 года. Из приведенных результатов видно, что содержание озона минимально зимой, и к лету оно увеличивается почти вдвое. Результаты, полученные в течение года, демонстрируют, что использование дополнительного XeCl лазера позволяет увеличить максимальный уровень зондирования до 10 км, а использование аэрозольной коррекции уменьшает погрешности измерений внутри пограничного слоя.



Рис.6.17. Схема лидара для зондирования тропосферного озона.



Рис.6.18. Иллюстрация стыковки профилей озона измеренных телескопами с уменьшенной и полной апертурой. Измерения проводились на длинах волн 277-308 нм.



Рис.6.19. Коэффициенты экстинкции аэрозоля вычисленные с Клетта КР метода использованием метода И по данным лидарного зондирования в январе 1998.



Рис.6.20. Вертикальный профиль лидарного отношения.



Рис.6.21. Коэффициент экстинкции аэрозоля рассчитанный методом Клетта для трех значений лидарного отношения: 20, 30, 40 ср⁻¹.



Рис.6.22. Иллюстрация аэрозольной коррекции озонных профилей. На рисунке приведен исходный профиль озона (без коррекции), профиль, скорректированный на Рэлеевскую экстинкцию и окончательный вид профиля после проведения аэрозольной коррекции. Для сравнения здесь же приведен коэффициент экстинкции аэрозоля рассчитанный методом Клетта.





Рис.6.23. Профили озона, измеренные 13 февраля и 24 марта 1998 на длинах волн 277/308 нм и 292/308 нм.



Рис.6.24. Озонные профили, измеренные 20 февраля 1998 в период с 12:00 до 19:30.



Рис.6.25 Временная эволюция высотных профилей концентрации озона и коэффициента экстинкции аэрозоля, измеренные 1 апреля 1999.



Рис.6.26. Вариации содержания озона на высотах 1 км, 1.5 км, 3 км и 4 км за период ноябрь 1997 – май 1998.

6.5.4. Использование рамановского рассеяния для одновременного измерения содержания озона и водяного пара

Как уже было показано в разделе 6.5 настоящей главы, градиенты концентрации аэрозоля могут вносить значительные погрешности в измерения озона. Этот эффект особенно существенен при измерениях в приземном слое. Использование аэрозольной коррекции, описанной в предыдущей главе, не всегда представляется возможным. Во первых, использование метода Клетта, Фернольда [21, 22] и других требуют привязки к молекулярному рассеянию, то есть должна быть выбрана реперная высота в тропосфере, на которой рассеяние может рассматриваться как чисто Рэлеевское. При облачной погоде или при зондировании в горизонтальном направлении, такая привязка невозможна. Во вторых, как уже отмечалось выше, в случае плотных аэрозольных слоев коррекция озоновых профилей работает неудовлетворительно, поскольку предположение о постоянстве лидарного отношения оказывается не корректным.

Ошибка, вызванная дифференциальным рассеянием аэрозоля, может быть минимизирована при использовании сигналов рамановского рассеяния азота и кислорода. Соответствующая погрешность определяется как:

$$\Delta n_{oz} = \frac{1}{2\Delta \boldsymbol{s}_{oz}} \frac{\partial}{\partial z} \ln \left[\frac{\boldsymbol{b}_{on}(z)}{\boldsymbol{b}_{off}(z)} \right]$$

Следовательно, для рамановских сигналов это выражение равно нулю. Погрешности, обусловленные дифференциальной аэрозольной экстинкцией, невелики и могут быть скорректированы.

Знание содержания озона особенно важно при измерении концентрации водяного пара рамановским методом в солечно-слепой спектральной области. Необходимость проведения измерений в дневное время не позволяет использовать для зондирования излучение с длиной волны λ>270 нм. Основными источниками излучения в этой области спектра, обладающими достаточной мощностью, является Nd:YAG лазер с генератором четвертой

гармоники и KrF лазер. KrF лазер обладает большей мощностью, и рамановская компонента водяного пара на длине волны 273 нм позволяет проводить дневные измерения [321]. К сожалению, излучение с λ =248 нм сильно поглощается атмосферным озоном и кислородом, что ограничивает максимальную дальность зондирования на уровне ~1 км. Дальность может быть увеличена при использовании дейтериевого ВКР-преобразователя, используя для зондирования первую стоксову компоненту на 268 нм.

При использовании четвертой гармоники Nd:YAG лазера линия комбинационного рассеяния водяного пара соответствует $\lambda = 294.7$ нм. Меньшая ширина линии излучения, по сравнению с KrF лазером позволяет использовать более узкие интерференционные фильтры в анализаторе спектра и, соответственно, более эффективно подавлять фоновую засветку.

Результаты измерения водяного пара в солнечно-слепой спектральной области, могут содержать значительные погрешности, вызванные поглощением озона. Так при использовании излучения накачки с $\lambda = 266$ нм и типичном содержании озона $1.5*10^{12}$ см⁻³ (10^{12} см⁻³ ≈ 37 ppb) дифференциальное поглощение озона на длинах волн соответствующих КР азота (283.8 nm) и водяного пара (294.7 nm) приводит к погрешности превышающей 25% на дистанции 1 км. Поэтому результаты измерения водяного пара должны корректироваться. Требуемая для коррекции информация, о концентрации озона, может быть получена при одновременном использовании изонового лидара. Альтернативный подход состоит в использовании нескольких локальных датчиков для измерения влажности вдоль трассы зондирования, информация с которых используется для калибровки лидарных измерений [322]. Сильная изменчивость концентрации озона, особенно в условиях города, делает подобный подход слишком неудобным для регулярных измерений.

Информация о содержании озона может быть получена, используя дифференциальное поглощение рамановских компонент азота (283.6 нм) и кислорода (277.5 нм) [<u>323</u>]. При использовании четвертой гармоники Nd:YAG лазера дифференциальное сечение поглощения озона для этих компонент

составляет 2*10⁻¹⁸ см², что вполне достаточно для измерения его содержания методом дифференциального поглощения.

Описание лидара

Измерения проводились с использованием мобильной лидарной системы [324], разработанной ЦФП ИОФ РАН для Корейского Института Атомной Энергии (Южная Корея). Источником излучения в лидарных измерениях служил Nd:YAG лазер с генератором четвертой гармоники. Энергия излучения на длине волны 266 нм составляла 60 мДж в импульсе при частоте повторения 30 Гц. Выходной лазерный пучок телескопировался до диаметра 40 мм и направлялся в атмосферу. Расходимость коллимированного излучения была меньше чем 3*10⁻⁴ рад. Рассеянное а атмосфере излучение собиралось Ньютоновским телескопом диаметром 300 мм и направлялось в анализатор спектра. Поле зрения приемного телескопа составляло 1 мрад. Анализатор спектра был спроектирован для одновременной регистрации рамановских сигналов азота, кислорода и водяного пара. Эти сигналы разделялись дихроичными зеркалами и фокусировались на ФЭУ, работающие в аналоговом режиме.

Интерференционные фильтры в каждом из каналов имели пропускание ~10% при ширине полосы пропускания около 3 нм. Одна из наиболее серьезных проблем в рамановских измерениях, это подавление сигнала упругого рассеяния. Для этой цели, помимо интерференционных фильтров использовался дополнительный жидкостной фильтр с резким краем поглощения. Подавление излучения с λ =266 нм составляет ~10³. Жидкостной фильтр устанавливался после полевой диафрагмы и был общим для всех трех Суммарное подавление лазерного излучения каналов. жидкостным И интерференционным фильтрами превосходило 10⁹.

Концентрация озона рассчитывается из выражения:

$$n_{oz} = -\frac{1}{\Delta s_{oz}} \frac{\partial}{\partial z} \ln \left[\frac{P_{on}(z)}{P_{off}(z)} \right] - \frac{1}{\Delta s_{oz}} \left[a_{on} - a_{off} \right]$$

От выражения (6.4) эта формула отличается отсутствием 2 в знаменателе первого члена. Основная трудность использования рамановских сигналов для метода дифференциального поглощения, связана с малым сечением обратного рассеяния, что ведет к существенным статистическим погрешностям. Можно оценить эти погрешности, используя формулы (6.3).

Количество фотонов рассеянных с высоты z из слоя Δz вычисляется из выражения:

$$N = K \frac{S}{z^2} b_R \Delta z \exp\left\{-\int_0^z \left[a_{266}^m(x) + a_R^m(x) + a_{266}^{aer}(x) + a_R^{aer}(x)\right] dx\right\}$$

где *К*- эффективность приемной системы, S – приемная площадь телескопа, β_R – сечение комбинационного рассеяния, α^m и α^{aer} – коэффициенты молекулярной и аэрозольной экстинкции для волны накачки и рамановские компоненты (λ_R). Молекулярное поглощение определяется главным образом озоном. Для оценок принимаем $n_{oz}=10^{12}$ см⁻³; $\alpha^{aer} = 0.2$ km⁻¹ для обеих длин волн; апертура телескопа - 30 см; пропускание каналов 0.1; эффективность ФЭУ 0.2; и Δz =100 м. Величина $\beta_R=\sigma_R N_R$ составляет 1.6*10⁻¹⁰ см⁻¹ср⁻¹ для кислорода и 4*10⁻¹⁰ см⁻¹ср⁻¹ для азота. Проведенные оценки показывают, что для неопределенности измерения концентрации озона не превосходящей 10⁻¹¹ см⁻³ (относительная погрешность ~10%) на высоте 1 км, необходимо усреднить 2500 импульсов.

Типичные рамановские сигналы от азота, кислорода и водяного пара приведены на рис.6.27. Для удобства сравнения, сигналы нормализованы к одной и той же амплитуде. Видно, что из-за большего поглощения озоном, сигнал кислорода быстрее убывает с высотой. Полное вхождение пучка в поле зрения телескопа достигается на высоте ~500 м, поэтому вычисление содержания озона начинается с этой высоты. Расчет содержания водяного пара можно начинать несколько раньше (~400 м), поскольку в этом случае рассчитывается отношение рамановских сигналов и влияние фактора перекрытия не столь критично, как в методе дифференциального поглощения.

На рис.6.28 показаны лидарные рамановские сигналы водяного пара и кислорода для ситуации, когда на трассе зондирования находится облако. Этот рисунок иллюстрирует полное подавление упругого рассеяния в рамановских каналах: облако проявляется в виде пика на сигнале водяного пара, и приводит к уменьшению сигнала кислорода.

Пример определения содержания водяного пара и озона по рамановским сигналам представлен на рис.6.29. Измерения проводились в дневное время, количество усредненных лазерных импульсов составляло 10,000. Максимальная высота, до которой измерение представлялось возможным, составляла 1200 м. Средняя концентрация озона, измеренная в этом слое, составляла 1·10¹² см⁻³, что типично для пограничного слоя. Таким образом, впервые продемонстрирована возможность определения содержания озона по данным рамановского лидара. Полученные озонные профили использовались для коррекции результатов измерения водяного пара в солнечно-слепой спектральной области. Следует также отметить, что приемная система, используемая в измерениях, была далека от оптимальной. На сегодняшний день существуют интерференционные фильтры в данной области спектра с пропусканием ~50% и шириной полосы ~0.3 нм. Использование подобных более мощного Nd:YAG лазера, а также телескопа с большей фильтров, апертурой, способно значительно увеличить дальность зондирования и расширить область применения описанного подхода.



Рис.6.27 Лидарные сигналы соответствующие рамановскому рассеянию азота, кислорода и водяного пара.



Рис.6.28 рамановские сигналы кислорода и водяного пара при наличии облака на трассе зондирования.



Рис.6.29. Высотные профили содержания озона и водяного пара, рассчитанные по рамановским сигналам при использовании четвертой гармоники Nd:YAG лазера в качестве источника зондирующего излучения.

§ 6.6. Долговременные измерения вариаций тропосферного озона с использованием автоматизированной лидарной системы

Для изучения динамики генерации и переноса озона в тропосфере, измерения должны проводиться непрерывно в течение длительного времени (нескольких суток). Для подобного рода исследований лидарная система должна быть полностью автоматизирована, и роль оператора сводится лишь к эпизодическому контролю параметров. Соответствующая модернизация лидара §6.5, была проведена в период 1998-1999 г. Система описанного в автоматически включается В заданное время, проводит измерение и выключается. Последние модели эксимерных лазеров разработанных в ЦФП ИОФ РАН обладают системой автоматического поддержания мощности выходного излучения, включающей автоматическую замену газовой смеси. Поэтому лидар на основе такого лазера способен производить измерения в течение нескольких дней без вмешательства оператора.

6.7.1. Исследование суточных вариаций содержания озона в нижней тропосфере

При проведении долговременных измерений, зондирование осуществлялось каждые пол часа, в одном измерении усреднялось 10.000 лазерных импульсов. При модернизации лидарной системы была произведена замена интерференционных фильтров в анализаторе спектра на новые, обладающие коэффициентом пропускания ~40%, что позволило увеличить максимальную высоту зондирования до 8 - 12 км, в зависимости от погодных условий.

Пример высотного профиля озона, измеренного модернизированной системой, представлен на рисунке 6.30. Концентрация озона уменьшается с высотой, достигая минимального значения при 8 км, и затем начинается его рост, обусловленный стоком озона из стратосферы. Несмотря на то, что лидар был способен проводить измерения в течение нескольких дней, облачность

обычно не позволяло получать непрерывный ряд данных свыше 50 часов. Результаты долговременных измерений представлены в виде цветных высотновременных карт, либо в виде трехмерных изображений. Концентрация озона на цветной панели указана в см⁻³.

Вариации высотного распределения озона зависели от времени года. В летний период содержание озона в тропосфере, и особенно внутри пограничного слоя, очень изменчиво. На соответствующих высотно-временных распределениях видны восходящие И нисходящие потоки озона. обусловленные интенсивной конвекцией воздуха. В зимний период высотные профили озона более стабильны, и на полученных распределениях видны эпизоды вторжения воздушных масс из стратосферы, характеризуемые повышенным содержанием озона.

На рис.6.31 – 6.36 представлены результаты, иллюстрирующие долговременное измерение озона. Интересная особенность в поведении озона наблюдалась в период с 3 по 4 сентября 1999 г. (время, указанное на высотновременных картах, везде соответствует местному). В 16:00 на высоте ~7 км в распределении озона появляется провал, которые опускается вниз и к утру 4 сентября достигает пограничного слоя. Природа этого провала не вполне ясна. Это, например, может быть слой, в котором происходит разрушение озона.

Рис.6.32 демонстрирует временные вариации вертикального распределения озона измеренные в течение двух суток с 6 по 8 сентября 1999. В ночные часы концентрация озона на высотах ~7 км понижается. Сложное поведение распределения озона вблизи пограничного слоя обусловлено комбинацией процессов фотохимической генерации озона и его переноса турбулентными воздушными потоками. В периоды, когда погодные условия были стабильны, распределение относительно озона варьировалось незначительно. Прохождение атмосферных фронтов, напротив, резко меняло характер высотного распределения. В зимние периоды распределение озона более стабильны, чем в летние, и на картах, представленных на рис.6.35 видны эпизоды вторжения воздушных масс из стратосферы, характеризуемых



Рис.6.30 Высотный профиль озона, полученный на модернизированной версии озонного лидара при накоплении 10.000 лазерных импульсов. Измерение проводилось на длинах волн 277 – 308 нм и 292 – 308 нм. На этом же рисунке приведены погрешности измерения.



Рис.6.31 Временная вариация вертикального распределения озона, измеренного в период с 3 по 4 сентября 1999. Время, указанное на карте соответствует местному. В 16:00 на высоте ~7 км в распределении озона появляется провал, который опускается вниз и к утру 4 сентября достигает пограничного слоя. Концентрация озона на цветной панели приведена в см⁻³.



Рис.6.32 Временная вариация вертикального распределения озона измеренная в период с 6 по 8 сентября 1999. В ночные часы концентрация озона на высотах ~7 км понижается. Сложное поведение распределения озона вблизи пограничного слоя обусловлено комбинацией процессов фотохимической генерации озона и его переноса воздушными массами.



Рис.6.33. Трехмерное изображение высотно-временного распределения концентрации озона в период с 6 по 8 сентября 1999 и с 9 по 10 сентября 1999.



Рис.6.34 Временная вариация вертикального распределения озона измеренная в период с 9 по 10 сентября 1999. Около 1:00 на высоте 4 км наблюдается резкое увеличение содержания озона.



Рис.6.35. Временная вариация вертикального распределения озона 20 ноября 1999 г. Около 13:00 наблюдается вторжение воздушных масс из стратосферы с повышенным содержанием озона.



Рис.6.36. Вариации озона за период с 24 по 26 ноября 1999 года представленные в виде цветной карты и в виде трехмерного изображения.

6.7.2. Наблюдение аномального увеличения концентрации озона в нижней тропосфере

Озон по своему вредному воздействию входит в число наиболее существенных загрязнителей, поэтому его избыточное содержание в нижних слоях атмосферы Земли рассматривается, как существенный фактор воздействия на окружающую среду. В данном разделе будут представлены результаты измерений, в которых наблюдалось резкое увеличение содержание озона в нижней тропосфере. При этом концентрация озона достигала уровня, представляющего опасность для человеческого организма.

В мае 2000 г. при лидарных замерах в районе г. Троицка Московской области были зафиксированы аномальные всплески содержания озона в атмосфере на высоте 2 км [325]. На рис. 6.37 представлена временная эволюция высотного распределения концентрации озона (а) и коэффициента экстинкции аэрозоля (б) в течение суток. Хорошо видно, что концентрация озона превышала фоновую (~1·10¹² см⁻³) в 4 - 5 раз в период с 16 до 22 часов местного времени. При этом в поведении коэффициента экстинкции аэрозоля никаких аномалий не наблюдалось.

Одной из причин столь резкого увеличения концентрации озона мог быть выброс в атмосферу загрязняющих веществ. К настоящему времени считается тропосферы установленным, ЧТО В озоновом цикле первичными загрязнителями (предшественниками озона) являются окислы азота и углерода [326-328]. В условиях дефицита солнечного ультрафиолетового излучения, типичного для высоких широт, основное влияние на фотохимическую генерацию тропосферного озона должны оказывать окислы азота [329]. Для выяснения динамики генерации и разрушения тропосферного озона нами проводилось математическое моделирование с использованием программного пакета "ПЛАЗЕР" [330].

Расчеты проводились сотрудником ИОФ РАН д.ф.-м.н. Карелиным А.В. Комплекс программ "ПЛАЗЕР", с помощью которого проводятся расчеты

нестационарной кинетики смеси, способен компилировать модели, содержащие не более 1300 реакций. Реально для того, чтобы показать основные механизмы, ответственные за интересующие нас процессы в смеси при решении одной конкретной задачи, достаточно сотни реакций, однако для того, чтобы выделить эти механизмы, не упустив существенных деталей, необходимо учитывать как можно большее число процессов.

Расчеты показывают, что присутствие в воздухе большого количества NO₂ приводит к суточным колебаниям концентраций различных примесей (начиная от NO и кончая HNO₃). На рис.6.38 приведено поведение концентраций O₃, NO и NO₂ в течение 4-х суток. Предполагается начальный вброс NO₂ атмосферу в количестве 7.10^{12} см⁻³. Все остальные начальные концентрации задавались в соответствии со среднестатистическими для данной широты. Кривая S(t) показывает солнечную активность. Под действием света молекулы NO₂ распадаются на NO и O, концентрации солнечного которых в смеси достигают соответственно 5·10¹¹ и 10⁶ см⁻³. С наступлением темноты начинает идти процесс образования NO₂ в реакции NO с молекулярным кислородом. В это время молекулы озона исчезают при окислении сначала молекул NO, затем - NO₂ (с учетом суточных изменений концентраций первый процесс (с NO) эффективнее второго (с NO₂) в 15 раз), а атомарный кислород продолжает идти на образование озона. К утру [NO]= 3.10^7 см⁻³, [O]= 3.10^3 см⁻³. С восходом солнца возобновляется фотодиссоциация молекул NO₂ и, соответственно, наработка NO и озона. Разумеется, столь высокое содержание NO₂ в течение длительного времени в реальной атмосфере маловероятно, тем не менее, модельный расчет, приведенный на рис.6.38, демонстрирует возможность резкого увеличения концентрации озона в загрязненной атмосфере В дневное время. Результаты проведенного моделирования согласуются с измерениями суточных вариаций озона в загрязненных районах [331], а также в районе лесных пожаров [332].

Разумеется, для окончательного ответа на вопрос о природе возникновения наблюдаемых озонных аномалий необходимо иметь полную

метеорологическую информацию о движении воздушных масс, которой мы, к сожалению, на момент измерений не обладали.



Рис. 6.37. Временная эволюция высотного распределения озона (а) и коэффициента экстинкции аэрозоля (б), измеренные в период 10 – 11 мая 2000 года. Концентрация озона и коэффициент экстинкции на цветных панелях приведены в см⁻³ и км⁻¹ соответственно.



Рис.6.38. Поведение концентраций O_3 , NO и NO₂ в течение 4-х суток при начальной концентрации NO₂ 7·10¹² см⁻³. Кривая S(t) показывает солнечную активность.

§ 6.7. Основные результаты

Основные результаты, полученные в шестой главе диссертации, могут быть сформулированы как следующие:

Проведен цикл исследований по управлению спектральными, пространственными и временными характеристиками электроразрядных эксимерных лазеров для обеспечения параметров, требуемых в системах дистанционного лазерного мониторинга. В результате этих исследований:

- Разработаны оптические схемы дисперсионных резонаторов, позволяющие уменьшать ширину линии излучения XeCl и KrF лазеров до 0.02 см⁻¹.
- Продемонстрирована возможность формирование пучков излучения XeCl и KrF лазеров с расходимостью близкой к дифракционной, используя эффект обращения волнового фронта при вынужденном рассеянии излучения в жидкостях и газах.
- Реализована эффективная ВРМБ компрессия импульсов излучения KrF лазера в газах. Достигнутая энергетической эффективность составила ~60% при длительности импульса излучения ~ 1 нс.
- Предложена оригинальная схема генерации пикосекундных импульсов излучения эксимерных лазеров при оптическом пробое на поверхности жидкости. Данная схема позволяет получать импульсы длительностью ~25 пс при использовании одного разрядного модуля.

Полученные результаты позволяют существенно улучшать параметры серийных эксимерных лазеров и создавать на их базе источники излучения с высокой пространственной и спектральной яркостью. Эти источники излучения могут быть использованы, В том числе, В лидарах дифференциального поглощения для мониторинга озона.

Для лидара дифференциального поглощения проведен анализ статических погрешностей, а также погрешностей связанных с влиянием

аэрозоля при измерении концентрации озона в стратосфере и тропосфере. На основании этого анализа определены оптимальные спектральные диапазоны для различных высот зондирования. Показано, что соответствующие длины волн могут быть получены при ВКР-преобразовании излучения XeCl и KrF лазеров в водороде и дейтерии.

Исследовано ВКР-преобразование излучения эксимерных лазеров в сжатых газах. Показано, что, выбирая параметры фокусирующей оптики и давление газа, возможно эффективное преобразование в стоксову компоненту, обеспечивающую оптимальный режим измерения озона, для выбранного высотного интервала.

Созданы лидарные системы на основе эксимерных лазеров с ВКРпреобразователями для измерения содержания озона в стратосфере и тропосфере в высотном диапазоне 0.5-30 км. Проведено сопоставление результатов, получаемых с использованием различных пар длин волн. Разработана процедура коррекции погрешностей, обусловленных эффектами дифференциального рассеяния и поглощения аэрозоля.

Разработана автоматизированная лидарная система для исследования тропосферного озона в высотном диапазоне 0.5 – 12 км. Система позволяет изучать суточные и сезонные вариации содержания озона, а также исследовать процесс обмена озоном между стратосферой и тропосферой. В процессе долговременных измерений наблюдались эпизоды образования областей с аномально высокой концентрацией озона, обусловленных, предположительно, фотохимическими процессами с участием индустриальных выбросов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Сформулируем основные результаты и выводы, полученные в диссертации.

- 1. Разработан анализа информации, содержащейся в метод данных многоволнового лидара, основанный на рассмотрении собственных чисел матриц ковариации спектров рассеяния аэрозоля. Показано, что при зондировании в спектральном интервале 0.35-1.06 мкм совместное использование спектров обратного рассеяния $\beta(\lambda)$ и экстинкции $\alpha(\lambda)$ позволяет определять размер и комплексный показатель преломления частиц с радиусами 0.1 <r< 1.5 мкм. Установлено, что при 10% погрешности измерений вариации $\beta(\lambda)$ и $\alpha(\lambda)$ для типичных атмосферных аэрозолей содержат не более трех и двух независимых компонент соответственно, следовательно использование большего количества входных данных внутри выбранного спектрального интервала не приводит к существенному увеличению точности решения обратной задачи.
- 2. Создан многоволновый рамановский лидар на основе Nd:YAG лазера с генератором третьей гармоники, измеряющий три коэффициента обратного рассеяния и два коэффициента экстинкции аэрозоля. Показано, что при использовании алгоритма решения обратной задачи зондирования на основе метода регуляризации Тихонова такой лидар способен определять размер и комплексный показатель преломления атмосферного аэрозоля. Достоверность работы алгоритма подтверждена сопоставлением лидарных измерений с результатами забора локальных проб с борта самолета.
- Усовершенствован и реализован в виде программы алгоритм расчета угловых характеристик рамановского рассеяния излучения микросферами.
 Фазовые функции рассеяния вычислены с учетом структурных резонансов для различных размеров, показателей преломления микросфер, а также для различных поляризаций падающего излучения.

- 4. Продемонстрирована возможность использования рамановского лидара для измерения пространственного распределения содержания воды в облаках в жидкой и кристаллической фазах. Достоверность метода подтверждена сопоставлением результатов лидарных и радарных измерений. Показано также, что рамановский метод позволяет одновременно определять высотные профили концентрации водяного пара и углекислого газа до высоты 5 км с погрешностью менее 10%.
- 5. Для интерпретации особенностей лидарного сигнала, наблюдаемых при зондировании облаков, содержащих водно-ледяную смесь, проведено обратного математическое моделирование рассеяния излучения вложенными неконцентрическими сферами. Полученные результаты демонстрируют, что перемещение внутренней сферы вдоль направления распространения излучения приводит к многократному увеличению коэффициента обратного рассеяния по сравнению с концентрической геометрией. Таким образом, измеряемые в экспериментах вариации коэффициента обратного рассеяния могут быть обусловлены смещением ледяных ядер внутри капель.
- 6. Разработаны методы управления спектральными, пространственными и временными параметрами излучения эксимерных лазеров для применения устройствах дистанционного мониторинга. Экспериментально ИХ В продемонстрировано, что использование явления обращения волнового фронта при вынужденном рассеянии излучения в газах, жидкостях и оптических волокнах позволяет создавать эксимерные лазерные системы с шириной спектра излучения менее 0.02 см⁻¹ и расходимостью пучка близкой к дифракционному пределу. Для формирования лазерного излучения с высокой пиковой мощностью реализована десятикратная временная ВРМБ-компрессия импульсов KrF-лазера, а также предложена оригинальная генерации пикосекундных импульсов схема при использовании оптического пробоя на поверхности жидкости в качестве одного из зеркал резонатора эксимерного лазера.

7. Разработана и создана автоматизированная лидарная система дифференциального поглощения на основе эксимерных лазеров для долговременного мониторинга тропосферного озона в высотном диапазоне 0.5–12 км. При исследовании суточных и сезонных вариаций озона зарегистрированы эпизоды аномального увеличения его концентрации в летний период до величин, в 2-3 раза превосходящих среднесезонные значения. Наблюдаемые увеличения концентрации озона могут быть обусловлены процессами его фотохимической генерации в условиях сильного загрязнения атмосферы.

В заключение автор считает своим приятным долгом выразить глубокую признательность С.К.Вартапетову за постоянную поддержку данной работы, С.С. Алимпиеву, А.З. Обидину, В.И. Грязнову, А.Л. Колготину, Ю.П. Шаблину за многолетнее плодотворное сотрудничество. Автор благодарит сотрудников ЦФП ИОФ РАН М. Коренского, А. Жукова, В. Атежева за помощь в проведении исследований.

Литература

- 1. Р. Межерис. "Лазерное дистанционное зондирование", Москва, "Мир" 1987.
- 2. Х. Инаба, "Лазерный контроль атмосферы", Мир, Москва 1979.
- 3. О. К. Костко, В. С. Портасов, В. У. Хаттатов, Э. А. Чаянова. "Применение лазеров для определения состава атмосферы", Гидрометеоиздат 1983.
- 4. В. Е. Зуев, "Лазерное зондирование тропосферы и поверхности Земли", Наука, Новосибирск 1987.
- В. М. Захаров, О. К. Костко, Л. Н. Бирич, Г. М. Крученицкий, В. С. Портасов. "Лазерное зондирование атмосферы из космоса", Гидрометеоиздат 1988.
- 6. В. Е. Зуев, А. В. Банах, В. В. Покасов "Современные проблемы оптики атмосферы", Гидрометеоиздат 1988.
- 7. В. М. Захаров, О. К. Костко, С. С. Хмелевцов. "Лидары и исследование климата", Гидрометеоиздат 1990.
- 8. В. Е. Зуев, В. В. Зуев, "Дистанционное оптическое зондирование атмосферы", Гидрометеоиздат 1992.
- A. F. Bunkin, K. I. Voliak, "Laser remote sensing of the ocean", Jon Wiley&Sons 2001.
- В. И. Козинцев, В. М. Орлов, М. Л. Белов, В. А. Городничев, Б. В. Стрелков, "Оптико-электронные системы экологического мониторинга природной среды", МГТУ имени Н.Э.Баумана 2002.
- В. Е. Зуев, Г. А. Титов "Оптика атмосферы и климат", изд. Спектр ИОА СО РАН 1996.
- В. Е. Зуев, М. В. Кабанов, "Оптика атмосферного аэрозоля", Гидрометеоиздат 1987.
- 13. Y. J. Kaufman, D. Tanré, O. Boucher, "A satellite view of aerosols in the climate system", *Nature* 419, 215-223, (2002).

- 14.J. T. Houghton, Y. Ding, D. J. Griggs, M. Nouger, P. J. van der Linden, and D. Xiaosu, eds., "Third Assessment Report of Working Group I of the Intergovernmental Panel on Climate Change" (Cambridge University, Cambridge, England, 2001).
- O.Dubovik, B.Holben, T.F.Eck, A.Smirnov, Y.J.Kaufman, M.D.King, D.Tanré, I.Slutsker, "Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations", J. of Atmos. Sciences 59, 590-608 (2002).
- Наац И. Э., "Теория многочастотного лазерного зондирования атмосферы", Новосибирск1983.
- V. V. Veretennikov, V. S. Kozlov, I. E. Naats, and V. Ya. Fadeev, "Optical studies of smoke aerosols: an inversion method and its applications," Opt. Lett. 4, 411-413 (1979).
- G. Feingold and C. J. Grund, "Feasibility of using multiwavelength lidar measurements to measure cloud condensation nuclei," J. Atmos. Oceanic Technol. 11, 543-1558 (1994).
- B. Stein, M. Del Guasta, J. Kolenda, M. Morandi, P. Rairoux, L. Stefanutti, J. P. Wolf, and L. Wöste, "Stratospheric aerosol size distribution from multispectral lidar measurements at Sodankylä during EASOE," Geophys. Res. Lett. 21, 1311-1314 (1994).
- 20. А. П. Иванов, Ф. П. Осипенко, А. П. Чайковский, В. Н. Щербаков, "Исследование оптических свойств арозоля методом многоволнового зондирования" Известия Академии Наук, Физика Атмосферы и Океана. 22, 633 (1986).
- 21. Klett D., "Stable analytical inversion solution for processing lidar returns", Appl. Opt., 20, 211-220 (1981).
- 22. F. G. Fernald, "Analysis of atmospheric lidar observations: some comments," Appl.Opt. 23, 652 (1984).
- 23. S. T. Shipley, D. H. Tracy, E. W. Eloranta, J. T. Trauger, J. T. Sroga, F. L. Roesler, J. A. Weinman, "High spectral resolution lidar to measure optical
scattering properties of atmospheric aerosols. 1. Theory and instrumentation," Appl. Opt. 22, 3716–3724 (1983).

- A. Ansmann, M. Riebesell, U. Wandinger, C. Weitkamp, E. Voss, W. Lahmann, W.Michaelis, "Combined Raman elastic-backscatter lidar for vertical profiling of moisture, aerosols extinction, backscatter, and lidar ratio", Appl. Phys. B 55, 18 (1992).
- 25. U. Wandinger, A. Ansmann, J. Reichardt, and T. Deshler, "Determination of stratospheric aerosol microphysical properties from independent extinction and backscattering measurements with a Raman lidar," Appl. Opt. 34, 8315-8329 (1995).
- 26. M. J. Post, "A graphical technique for retrieving size distribution parameters from from multiple measurements: visualization and error analysis," J. Atmos. Oceanic Technol. 13, 863 -873 (1996).
- 27. Тихонов А.Н., Арсенин В.Я. Методы решения некорректных задач. М., «Наука», 1974.
- 28. S. Twomey, "Introduction to the Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Direct Measurements", Elsevier, New York, 1977.
- D. Althausen, D. Müller, A. Ansmann, U. Wandinger, H. Hube, E. Clauder, S. Zörner, "Scanning 6-wavelength 11-channel aerosol lidar," J. Atmos. and Oceanic Technol. 17, 1469 1482 (2000).
- 30. D. Müller, U. Wandinger, and A. Ansmann, Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: theory. Appl. Opt. 38, 2346-2357 (1999).
- 31. D. Müller, U. Wandinger, and A. Ansmann, Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: simulation. Appl. Opt. 38, 2358-2368 (1999).
- 32. D. Müller, F. Wagner, U. Wandinger, A. Ansmann, M. Wendisch, D. Althausen and W. von Hoyningen-Huene, "Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: experiment," Appl. Opt. 39, 1879-1892 (2000).

- 33. I.Veselovskii, A.Kolgotin, V.Griaznov, D.Muller, U.Wandinger, D.Whiteman, "Inversion with regularization for the retrieval of tropospheric aerosol parameters from multiwavelength lidar sounding", Appl.Opt. 41, 3685-3699 (2002).
- 34.I.Veselovskii, A.Kolgotin, V.Griaznov, D.Muller, U.Wandinger, C.Böckmann D.Whiteman, "Retrieval of tropospheric aerosol parameters from multiwavelength lidar sounding", Proceedings of ILRC 21, July 2002, Quebec City, 573-576.
- 35. I. Veselovskii, A. Kolgotin, V. Griaznov, D. Müller, K. Franke, D. N. Whiteman, "Inversion of multiwavelength Raman lidar data for retrieval of bimodal aerosol size distribution", Appl.Opt. 43, 1180-1195 (2004).
- 36. I. Veselovskii, A. Kolgotin, D. Müller, "Retrieval of bimodal aerosol size distribution with multiwavelength Mie-Raman lidar", 6-th International Symposium on Troposphere Profiling, Leipzig, Germany, September 14-20 (2003), p.363-365.
- 37. J. Bösenberg, et.al. "EARLINET: A European Aerosol Research Lidar Network", in Advances in Laser Remote Sensing, eds., A. Dabas, C. Loth, and J. Pelon, Ecole Polytechnique, Palaiseau, 163-167 (2001).
- C. L. Mateer, "On the information content of Umkehr observations", J. Atmos. Sci. 22, 370-381 (1965).
- 39. C. D. Rodgers, "Inverse methods for atmospheric sounding. Theory and Practice", World Scientific 2000.
- I. Veselovskii, A. Kolgotin, D. Müller, D. N. Whiteman, "Information content of multiwavelength lidar data on the base of eigenvalues analysis", Proceedings of ILRC 22, 353-356, 12-16 July 2004, Matera, Italy.
- 41. I. Veselovskii, A. Kolgotin, D. Müller, D. N. Whiteman, "Information content of multiwavelength lidar data with respect to microphysical particle properties derived from eigenvalue analysis", Appl.Opt. 44, 5292-5303.(2005).
- 42. IPCC, 1995: Climate Change 1995, eds. J. T. Houghton et. al., Cambridge University Press, 1996.

- 43. R. H. Ware, C. Alber, C. Rocken, and F. Solheim, "Sensing integrated water vapor along GPS ray paths", Geophys. Res. Lett. 24, 417-420 (1997).
- 44. V. Wulfmeyer, "Ground-based differential absorption lidar for water-vapor profiling: assessment of accuracy, resolution, and meteorological applications", Appl.Opt. 37, 3804-3844 (1998).
- 45. S. Ismail, E. V. Browell, R. A. Ferrare, S. A. Kooi, M. B. Clayton, V. G. Brackett, and P. B. Russell, "LASE measurements of aerosol and water vapor profiles during TARFOX", J. Geophys. Res. 105, 9903-9916 (2000).
- 46. Melfi, S. H., J. D. Lawrence, Jr., M. P. McCormick, Observation of Raman scattering by water vapor in the atmosphere, App. Phys. Lett., 15, 295 (1969).
- 47. Whiteman, D.N., S.H. Melfi, and R.A. Ferrare, "Raman lidar system for the measurement of water vapor and aerosols in the earth's atmosphere", Appl. Opt., 31, 3068 (1992).
- 48. J. E. M. Goldsmith, F. H. Blair, S. E. Bisson, and D. D. Turner, Turn-key Raman lidar for profiling atmospheric water vapor, clouds, and aerosols Appl. Opt. 37, 4979 (1998).
- 49. B. Soden, D. Turner, B. Lesht, L. Miloshevich, "An analysis of satellite, radiosonde, and lidar observations of upper tropospheric water vapor from the Atmospheric Radiation Measurement Program". J. Geophys. Res. 109, D04105 (2004).
- 50. D. Whiteman, "Examination of the traditional Raman lidar technique. I. Evaluating the temperature-dependent lidar equations", Appl. Opt., 42, 2571 (2003).
- 51. D. Whiteman, "Examination of the traditional Raman lidar technique. II. Evaluating the ratios for water vapor and aerosols", Appl. Opt., 42, 2593 (2003).
- 52. W. Eichinger, D. Cooper, J. Kao, L.C. Chen, L. Hipps, J. Prueger, "Estimation of patially distributed latent heat flux over complex terrain from a Raman lidar", Agriculture and Forest Meteorology 105, 145-149 (2000).

- 53. F. De Tomasi and M. R. Perrone, "Lidar measurements of tropospheric water vapor and aerosol profiles over southeastern Italy", J.Jeophys.Res. 108, D9, 4286, doi:10.1029/2002JD002781 (2003)
- 54.D. N. Whiteman, B. Demoz, P. DiGirolamo, J. Comer, Z. Wang, R-F. Lin, K. Evans, I. Veselovskii, "NASA/GSFC scanning Raman lidar measurements of water vapor and clouds during IHOP", Proceedings of ILRC 22, 337-340, 12-16 July 2004, Matera, Italy.
- 55. Q. Han, W. Rossow, R. Welch, A. White, J. Chou, "Validation of retrievals of cloud microphysics and liquid water path using observations from FIRE", J. Atmos. Sci. 52, 4183-4195 (1995).
- 56. G. L. Stephens, "Radiation profiles in extended water clouds 1. Theory", J. Atmos. Sci. 35, 2111-2122 (1978).
- 57. C. T. Chen, V. Ramaswamy, "Sensitivity of simulated global climate to perturbations in low-cloud microphysical properties. Part I: globally uniform perturbations." J. Climate 9, 1385-1402 (1996).
- 58. C. T. Chen, V. Ramaswamy, "Sensitivity of simulated global climate to perturbations in low-cloud microphysical properties. Part II: spatially localized perturbations." J. Climate 9, 2788-2801 (1996).
- 59. A. S. Frisch, G. Feingold, C. W. Fairall, T. Uttal, J. B. Snider: "On cloud radar and microwave radiometer measurements of status cloud liquid water profiles." J. Geophys. Res. 103, D18, 23.195-23.197 (1998).
- 60. J.R. Campbell, D.Hlavka, E.J. Welton, C.J. Flynn, D.D. Turner, J.D. Spinhirne, V.S. Scott, "Full-time, eye-safe cloud and aerosol lidar observation at atmospheric radiation measurement program sites: instruments and data processing". J. of Atmoshpheric and Oceanic Technologies 19, 431-442 (2002).
- E. Eloranta, D. Forrest, "Volume-imaging lidar observations of the convective structure surrounding the flight path of a flux-measuring aircraft". J.Geophys.Res. 97, 18,383-18,393 (1992).

- 62. K.Sassen, S.Benson, "A midlattitude cirrus cloud climatology from the facility for atmospheric remote sensing. Part II: Microphysical properties derieved from lidar depolarization", J. of Atmospheric Sciencies 58, 2104 (2001).
- 63. K. Sassen, and T. Chen, "The lidar dark band: an oddity of the radar bright band", Geophys. Res. Lett., 22, 3505 (1995).
- 64. V.Griaznov, I.Veselovskii, P. Di Girolamo, B. Demoz, D. Whiteman, "Numerical simulation of light backscattering by spheres with off-center inclusion. Application to the lidar case", Appl.Opt. 43, 5512-5522 (2004).
- 65. U.Wandinger, "Multiple-scattering influence on extinctionand backscattercoefficient measurements with Raman and high-spectral-resolution lidars", Appl.Opt. 37, 418 – 427 (1998).
- 66. L. R. Bissonnette, D. L. Hutt, "Multiply scattered aerosol lidar returns: inversion method and comparison with in situ measurements," Appl. Opt. 34, 6959–6975 (1995).
- 67. G. Roy, L. Bissonnette, C. Bastille, G. Vallee, "Retrieval of droplet-size density distribution from multiple-field-of-view cross-polarized lidar signals: theory and experimental validation", Appl.Opt. 38, 5202- 5211 (1999).
- G. Roy, L. C. Bissonnette, C. Bastille, G. Vallee, "Estimation of cloud droplet size density distribution from multiple- field-of-view lidar returns," Opt. Eng. 36, 3404–3415 (1997).
- M. McGill, D. Hlavka, W. Hart, S. Scott, J. Spinhirne, B. Schmid, "Cloud physics lidar: instrument description and initial measurements results", Appl.Opt. 41, 3725-3734 (2002).
- 70. D. P. Donovan, A. C. A. P. Van Lammeren, R. Hogan, H. Russchenburg, A. Apituley, J. Testud, J. Pelon, M. Quante, J. Agnew, "Combined radar and lidar cloud remout sensing: comparison with IR radiometer and in-situ measurements", Phys. Chem. Earth (B) 25, 1049-1055 (2000).
- 71.Wang, Z. and K. Sassen. "Cirrus cloud microphysical property retrieval using lidar and radar measurements: algorithm description and comparison with in situ data", J. Appl. Meteor., 41, 218-229 (2002).

- 72. Глушков С.М., Панчишин И.М., Фадеев В.В., "Спектры КР при фазовом переходе вода-лед и лазерная диагностика гетерофазных водных систем", Квантовая электроника, 16, 843 – 852 (1989).
- 73. Беккиев А.Ю., Глушков С.М. и др., "Применение спектроскопии КР света для определения влажности снега", Доклады АН СССР 303, 330–333 (1988).
- 74. A. F. Bunkin, G. A. Lyakhov, N. V. Suyazov, S. M. Pershin, "Sequence of water thermodynamic singularities in Raman spectra", J. of Raman Spectr. 31, 857– 861 (2000).
- 75. Bohren F. B. and Huffman D. R. "Absorption and scattering of light by small particles". John Wiley, New York, 1983.
- 76. G. Avila, J. Fernandez, B. Mate, G. Tejeda, S. Montero, "Rovibrational Raman cross sections of water vapor in the OH stretching region", J. Mol. Spectr. 196, 77 (1999).
- 77. G.E.Walrafen, "Raman spectral studies of the effects of temperature on water structure", J.Chem.Phys. 47, 114-126 (1967).
- 78. H. Chew, P. J. McNulty, and M. Kerker, "Model for Raman and fluorescent scattering by molecules embedded in small particles", Phys. Rev. A 13, 396 (1976).
- 79. H.Chew, M.Kerker and P.J.McNulty, "Raman and fluorescent scattering by molecules embedded in concentric spheres" J.Opt.Soc.Am. 66, 440 (1976).
- M.Kerker, P.J.McNulty, M.Sculley, H.Chew, and D.D.Cooke, "Raman and fluorescent scattering by molecules embedded in small particles: Results for coherent optical process", J.Opt.Soc.Am. 68, 1686 (1978).
- H. Chew, "Total fluorescent scattering cross section", Phys. Rev. A, 37, 4107 (1988).
- M. Kerker, P. J. McNulty, M. Sculley, H. Chew, and D. D. Cooke, "Raman and fluorescent scattering by molecules embedded in small particles: Results for incoherent optical processes", J. Opt. Soc. Am. 68, 1676 (1979).

- 83. M. Kerker and S. D. Druger, "Raman and fluorescent scattering by molecules imbedded in spheres with radii up to several multiples of the wavelength", Appl.Opt. 18, 1172 (1979).
- 84. S. D. Druger and P. J. McNulty, "Radiation patterns of fluorescence from molecules embedded in small particles: general case", Appl. Opt., 22, 75 (1983).
- 85. S. Lange and G. Schweiger, "Structural resonances in the total Raman- and fluorescence-scattering cross section: concentration-profile dependence", J. Opt. Soc. Am. B 13, 1864 (1996).
- 86. V.Griaznov, I.Veselovskii, A.Kolgotin, D.N.Whiteman," Angle- and sizedependent characteristics of incoherent Raman and fluorescent scattering by microspheres 1.: General expressions", Appl. Opt.41, 5773 (2002).
- 87. I. Veselovskii, V. Griaznov, A. Kolgotin , D.N.Whiteman "Angle- and sizedependent characteristics of incoherent Raman and fluorescent scattering by microsoheres 2.: Numerical simulation", Appl. Opt. 41, 5783 (2002).
- 88.J. R. Scherer, M. K. Go, and S. Kint, "Raman spectra and structure of water from -10 to 90.deg". J.Phys.Chem.78, 1304-1313 (1974).
- N. Whiteman, G. E. Walrafen, Wen-Huang Yang, and S. H. Melfi, "Measurement of an Isosbestic Point in the Raman Spectrum of Liquid Water by use of a Backscattering Geometry". Appl.Opt. 38, 2614-2615 (1999).
- 90. T. A. Dolenko, I. V. Churina, V. V. Fadeev, and S. M. Glushkov, "Valence band of liquid water Raman scattering: some peculiarities and applications in the diagnostics of water media," J. Raman Spectrosc. 31, 863 (2000).
- 91. Ю. Копвиллем, О. Букин, В. Чудовский, С. Столярчук, В. Тяпкин, "Вынужденное рамановское рассеяние водного аэрозоля в атмосфере", Оптика и Спектроскопия 59, 306-310 (1985).
- 92. S .H. Melfi, K. D. Evans, Jing Li, D.Whiteman, R. Ferrare, and G. Schwemmer,"Observation of Raman scattering by cloud droplets in the atmosphere," Appl.Opt. 36, 3551 (1997).
- 93. V. Rizi, M. Iarlori, G. Rocci, G. Visconti, "Raman lidar observations of cloud liquid water", Appl. Opt. 43, 6441-6453 (2004).

- 94. Whiteman D. N., S. H. Melfi, "Cloud liquid water, mean droplet radius and number density measurements using a Raman lidar", J. Geophys. Res., 104, D24 31411- 31419 (1999).
- 95. I.A.Veselovskii, H.K.Cha, D.H.Kim, S.C.Choi, J.M.Lee," Raman lidar for the study of liquid water and water vapor in troposphere," Appl.Phys.B 71, 113-117 (2000).
- 96. I.A.Veselovskii, H.K.Cha, D.H.Kim, S.C.Choi, J.M.Lee, "Study of atmospheric water in gaseous and liquid state by using combined elastic-Raman depolarization lidar", Appl.Phys.B 73, 739-744 (2001).
- 97. I.Veselovskii, J.Lee, H.Cha, "Raman depolarization lidar for liquid and gaseous water sounding in boundary layer" Advances in laser remote sensing. Selected papers presented at the 20th International Laser Radar Conference (ILRC), 299, Vichy, France, 10-14 July 2000,
- 98. F.Russo, D. N. Whiteman, B. Demoz, I. Veselovskii, S. H. Melfi, R. M. Hoff, "Development of Raman lidar techniques to address the indirect aerosol effect: retrieving the liquid water content of clouds", Proceedings of ILRC 22, 411-414, 12-16 July 2004, Matera, Italy.
- 99. Z. Wang, D. Whiteman, B. Demoz, I. Veselovskii, "A new way to measure cirrus cloud ice water content by using ice Raman scatter with Raman lidar", Geophys. Res. Lett., 31, L15101, doi:10.1029/2004 GL020004 (2004).
- 100. Александров Э.Л., Израэль Ю.А., Кароль И.Л., Хргиан А.Х. "Озонный щит Земли и его измерения". Гидрометеоиздат, 1992.
- 101. С. П. Перов, А. Х. Хргиан. "Современные проблемы атмосферного озона", Гидрометеоиздат, 1980.
- 102. Хргиан А.Х. "Физика атмосферного озона". Гидрометеоиздат, 1973.
- McDermid I.S., Godin S.M., Walsh T.D., "Ground-based laser DIAL system for long-term measurements of stratospheric ozone", Appl.Optics, 29, 4914 (1990).

- 104. McDermid I.S, Haner D.A., Kleiman M.M., Walsh T.D., White M.L., "Differential absorption lidar systems for tropospheric and stratospheric ozone measurements", Opt. Engin. 30, 22 (1991).
- McDermid I.S, Godin S.M., Walsh T.D., "Results from Jet Propulsion Laboratory stratospheric ozone lidar during STOIC 1989", J.Geoph.Res. 100, D5, 9263 (1995).
- 106. McDermid I.S, Beyerle G., Haner D.A, Leblanc T., "Redesign and improved performance of the tropospheric ozone lidar at the Jet Propulsion laboratory Table Mountain Facility", Appl. Opt. 41, 7550 (2002).
- 107. T.J.McGee, P.Newman, R.Ferrare, D.Whiteman, J.Butler, J.Burris, S.Godin, S.McDermid, "Lidar observation of ozone changes induced by subpolar air mass motion over Table Mountain, California (34.4^o N)", J.Geophys.Res. 95, D12, 20.527 (1990).
- 108. T.J.McGee, M.Gross, R.Ferrare, W.Heaps, U.Singh, "Raman DIAL measurements of stratospheric ozone in the presence of volcanic aerosols", Geophys. Res. Lett. 20, 955 (1993).
- 109. T.J.McGee, D.Whiteman, R.Ferrare, J.Butler, J.F.Burris, "Stratospheric ozone lidar trailer experiment", Opt. Eng. 30, 31 (1991).
- 110. T.J.McGee, M.Gross, U.Singh, J.Butler, P.E.Kimvilakani, "Improved stratoapheric ozone lidar", Opt. Eng. 34, 1421 (1995).
- 111. T.J.McGee, R.Ferrare, D.Whiteman, J.Butler, J.F.Burris, M.A.Owens, "Lidar measurements of stratospheric ozone during the STOIC campaign", J.Geophys.Res. 100, D5, 9255 (1995).
- 112. W.Steinbrecht, K.W.Rothe, H.Walther, "Lidar setup for daytime and nighttime probing of stratospheric ozone and measurements in polar and equatorial regions", Appl.Opt. 28, 3616 (1989).
- 113. O.Uchino, I.Tabata, "Mobile lidar for simultaneous measurements of ozone, aerosols, and temparature in the stratosphere", Appl.Opt. 30, 2005 (1991).

- 114. J.F.Hahn, C.T.McElroy, E.W.Hare, W.Steinbrecht, A.I.Carswell,
 "Intercomparison of Umkehr and differential absorption lidar stratospheric ozone measurements", J.Geophys.Res. 100, D12, 25.899 (1995).
- 115. Маричев В.Н., Ельников А.В., Зуев В.В., Царегородцев С.И., "Первые результаты лидарных наблюдений стратосферного озона над Западной Сибирью", Оптика атмосферы 2, 995-996 (1988).
- 116. Зуев В.В., Маричев В.Н., Долгий С.И., Шарабарин Е.В., "Результаты эксперимента по лидарному зондированию озона и температуры в тропосфере и стратосфере", Оптика атмосферы и океана 9, 1123-1125 (1996).
- 117. Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А, Галустов А.С., Ковалев Ю.М., Прохоров А.М., Хмелевцов С.С., Ли Ч.Х., "Лидарная система для зондирования стратосферного и тропосферного озона на основе эксимерных лазеров". Квантовая Электроника 24, 591-596 (1994).
- 118. V. S. Bucreev, S. K. Vartapetov, I. A. Veselovskii, A. S. Galustov, Y. M. Kovalev, E. S. Svetogorov, S. S. Khmelevtsov. "Combined lidar system for stratospheric and tropospheric ozone measurements". Appl.Phys B 62, 97-101 (1996).
- 119. J. J. Margitan, et.al. "Stratospheric ozone intercomparison campaign (STOIC)1989: overview", J. Geophys. Res. 100, D5, 9193 (1995).
- L.Stefanutti, F.Castagnoli, M.Del Guasta, M.Morandi, V.M.Sacco,
 L.Zuccagnoli, S.Godin, G.Megie, and J.Porteneuve. Appl.Phys.B 55, 3-12 (1992).
- 121. I.S.McDermid, D.A.Haner, M.M.Kleiman, T.D.Walsh, and M.L.White. Opt.Eng. 30, 22-30 (1991).
- 122. J.A.Sunesson, A.Apituley, D.P.J.Swart. "Differential absorption lidar system for routine monitoring of tropospheric ozone". Appl. Opt. 33, 7045-7058 (1994).
- M.H. Proffitt, A.Langford, "Ground-based differential absorption lidar system for day or night measurements of ozone through the free troposphere", Appl. Opt. 36, 2568 (1997).

- 124. U. Kempfer, W. Carnuth, R.Lotz, T. Trickl, "A wide-range ultraviolet lidar system for tropospheric ozone measurements: development and application", Rev.Sci.Instrum. 65, 3145 (1994).
- 125. Veselovskii I.A., B.Barchunov, Excimer laser based lidar for tropospheric ozone monitoring, Appl.Phys.B 68, 1131-1137 (1999).
- 126. E. J. Brinksma, J. Ajtic, J. B. Bergwerff, G. E. Bodeker, I. S. Boyd, J. F. de Haan, W. Hogervorst, J. W. Hovenier, and D. P. J. Swart, 'Five years of observations of ozone profiles over Lauder, New Zealand ", J. Geophys. Res. 107, D 14, 4216 (2002).
- 127. L. S. Darby, "Vertical variations in O3 concentrations before and after a gust front passage", J.Geophys. Res. 107, D13, 4176 (2002).
- 128. Khaled A. Elsayed, Russell J. DeYoung, Larry B. Petway, William C. Edwards, James C. Barnes, and Hani E. Elsayed-Ali, "Compact high-pulseenergy ultraviolet laser source for ozone lidar measurements", Appl.Opt. 42, 6650-6660 (2003).
- 129. A.Fix, M.Wirth, A.Meister, G.Ehret, M.Pesch, D.Weidauer, "Tunable ultraviolet optic parametric oscillator for differential absorption lidar measurements of tropospheric ozone", Appl. Phys.B 75, 153 (2002).
- 130. Зуев В. Е., Наац И. Э. "Обратные задачи оптики атмосферы", Гидрометеоиздат, 1989.
- 131. P. Qing, H. Nakane, Y. Sasano, and S. Kitamura, Numerical simulation of the retrieval of aerosol size distribution from multiwavelength laser radar measurements, Appl. Opt. 28, 5259-5265 (1989).
- 132. D. Müller D., U. Wandinger, D. Althausen, I. Mattis, and A. Ansmann: Retrieval of physical particle properties from lidar observations of extinction and backscatter at multiple wavelengths, Appl. Opt., 37, 2260-2263 (1998).
- 133. C. Böckmann, "Hybrid regularization method for ill-posed inversion of multiwavelength lidar data in the retrieval of aerosol size distributions," Appl.Opt 40, 1329 – 1342 (2001).

- 134. D. Müller, F. Wagner, D. Althausen , U. Wandinger, and A. Ansmann, "Physical properties of the Indian aerosol plume derived from six-wavelength lidar observation on 25 March 1999 of the Indian Ocean Experiment," Geophys.Res.Lett. 27, 1403-1406 (2000).
- 135. D. Müller, U. Wandinger, D. Althausen, and M. Fiebig, "Comprehensive particle characterization from 3-wavelength Raman lidar observations: case study," Appl. Opt., 40, 4863-4869 (2001).
- A. Ben-David, B. M. Herman, and J. Reagan, "Inverse problem and the pseudoempirical orthogonal function method of solution. 1: Theory. Appl. Opt., 27, 1235-1242 (1988).
- D. P. Donovan and A. I. Carswell, "Principal component analysis applied to multiwavelength lidar aerosol backscatter and extinction measurements," Appl. Opt. 36, 9406-9424 (1997).
- 138. Golub G. H., M. Heath, and G. Wahba, "Generalized cross-validation as a method for choosing a good ridge parameter," Technometrics 21, 215--223 (1979).
- O'Sullivan F., "A statistical perspective on ill-posed inverse problems," Statistical~Science 1, 502-527 (1986).
- 140. Sabatier P. C., "Basic concepts and methods of inverse problems," in Basic Methods of Tomography and Inverse Problems, P. C. Sabatier, ed., (Adam Hilger, Bristol and Philadelphia, 1987), 669 p.
- 141. H.Horvath, R.L.Gunter, S.W.Wilkison, "Determination of the coarse mode of the atmospheric aerosol using data from a forward-scattering spectrometer probe", Aerosol Science and Technology 12, 964-980 (1990).
- 142. O.Dubovik, B.Holben, T.F.Eck, A.Smirnov, Y.J.Kaufman, M.D.King, D.Tanré, I.Slutsker, "Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations", J. of Atmos. Sciences 59, 590-608 (2002).
- 143. Ивлев Л.С., Андреев С.Д. "Оптические свойства атмосферных аэрозолей", ЛГУ, 1986.

- 144. M. Hess, P. Koepke, and I. Schult, Optical properties of aerosols and clouds: the software package OPAC, Bull. American Meteorol. Society, 79, 831-844 (1998).
- 145. "Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational Experiment", J. Geophys. Res. 104, D2, special issue, (1999).
- 146. "Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational Experiment", J. Geophys. Res. 105, D8, special issue, (2000).
- 147. "Aerosol Characterization Experiment 2", Tellus 52B, No. 2, special issue (2000).
- 148. "Indian Ocean Experiment", J. Geophys. Res. 107, D19, special issue (2002).
- 149. "Characterization of Asian Aerosols and Their Radiative Impacts on Climate, Part 1 ", J. Geophys. Res. 108, No. 23 special issue (2003).
- "Lindenberg Aerosol Characterization Experiment", J. Geophys. Res. 107, D21, special issue (2002).
- Klett D. "Lidar inversion with variable backscatter/extinction rations". Appl. Opt., 31, 1638-1643, 1985.
- Sasano, Y., E. V. Browell, and S. Ismail, "Error caused by using a constant extinction/backscatter ratio in the lidar solution", Appl. Opt. 24, 3929-3932 (1985).
- 153. Müller, D., K. Franke, F. Wagner, D. Althausen, A. Ansmann, and J. Heintzenberg, "Vertical profiling of optical and physical particle properties over the tropical Indian Ocean with six-wavelength lidar, 2, Case studies", J. Geophys. Res., 106, 28,577-28,595 (2001).
- 154. Ansmann, A., F. Wagner, D. Althausen, D. Müller, A. Herber, and U. Wandinger, "European pollution outbreaks during ACE~2: Lofted aerosol plumes observed with Raman lidar at the Portuguese coast", J. Geophys. Res. 106, 20,725-20,733 (2001).
- 155. Ansmann, A., F. Wagner, D. Müller, D. Althausen, A. Herber, W. von Hoyningen-Huene, and U. Wandinger, "European pollution outbreaks during ACE~2: Optical particle properties inferred from multiwavelength lidar and

star/Sun photometry", J. Geophys. Res., 107, 8129, doi:10.1029/2001JD001109 (2002).

- 156. Müller, D., A. Ansmann, F. Wagner, and D. Althausen, "European pollution outbreaks during ACE 2: Microphysical particle properties and single-scattering albedo inferred from multiwavelength lidar observations", J. Geophys. Res., 107, doi: 10.1029/2001JD001110 (2002).
- 157. Ramanathan V., et.al. "The Indian Ocean Experiment: An integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze", J. Geophys. Res., 106, 28,371-28,398 (2001).
- 158. Wandinger, U., D. Müller, C. Böckmann, V. Matthias, V. Weiß, M. Fiebig, M. Wendisch, A. Stohl, and D. Althausen, "Characterization of optical and microphysical particle properties from multiwavelength lidar and airborne in situ measurements in biomass-burning and industrial-pollution aerosols," J. Geophys. Res., (2001).
- 159. G. Schweiger, "Raman scattering on single aerosol particles and on flowing aerosols: a review," J.Aerosol.Sci.21, 483-509 (1990).
- 160. R.Vehring, "Linear Raman spectroscopy on aqueous aerosols: influence of nonlinear effects on detection limits", J.Aerosol.Sci. 29, 65-79 (1998).
- J.D.Pendelton and S.C.Hill, "Collection of emission from an oscillating dipole inside a sphere: analytical integration over a circular aperture", Appl.Opt.36, 8729-8737 (1997).
- 162. I.Veselovskii, V.Griaznov, "Numerical simulation of Raman scattering by microdroplets: lidar application" Proceedings of ILRC 21, July 2002, Quebec City, 635-638.
- 163. J. D. Jackson, Classical Electrodynamics, 2nd edition, John Wiley & Sons, New York, (1975).
- 164. H. C. van der Hulst, Light scattering by small particles, Dover Publications, Inc., New York, (1981).

- 165. G. A. Korn, T. M. Korn, Mathematical handbook for scientists and engineers: definitions, theorems and formulas for reference and review, McGraw-Hill, New York, (1961).
- 166. H.-M. Tzeng, K. F. Wall, M. B. Long, and R. K. Chang, "Evaporation and condensation rates of liquid droplets deduced from structure resonances in the fluorescence spectra", Opt. Lett., 9, 273-275, 1984
- 167. R. Thurn, W. Kiefer, "Structural resonances observed in the Raman spectra of optically levitated liquid droplets", Appl. Opt. 24, 1515-1519 (1985).
- 168. G. Shweiger, "Raman scattering on microparticles: size dependence", J.Opt.Soc.Am. B 8, 1770-1778 (1991).
- 169. K.H.Fung, I.N.Tang, "Relative Raman scattering cross-section measurements with suspended particles", Appl. Spectr. 45, 734-737 (1991).
- 170. J.Popp, M.Lankers, K.Schaschek, W.Kifer, J.T.Hodges, "Observation of sudden temperature jumps in optically levitated microdroplets due to morphology-dependent input resonances", Appl.Opt. 34, 2380-2386 (1995).
- 171. T.Kaiser, G.Roll and G.Shweiger, "Investigation of coated droplets in an optical trap: Raman-scattering, elastic-light-scattering and evaporation characteristics", Appl.Opt. 35, 5918-5924 (1996).
- 172. R.Vehring, C.L.Aardahl, G.Schweiger and E.J.Davis, "The characterization of fine particles originating from an uncharged aerosol: size dependence and detection limits for Raman analysis", J.Aerosol.Sci. 29, 1045-1061 (1998).
- 173. J. Popp, M. Lankers, M. Trunk, I. Hartmann, E. Urlaub, and W. Kiefer, "Highprecision determination of size, refractive index, and dispersion of single microparticles from morphology-dependent resonances in optical processes", Appl. Spectrosc., 52, 284-291, (1998).
- 174. J.Musick, J. Popp, M. Trunck, and W. Kiefer, "Investigations of radical polymerization and copolymerization reactions in optically levitated microdroplets by simultaneous Raman spectroscopy, Mie scattering, and radiation pressure measurements", Appl. Spectrosc., 52, 692-701 (1998).

- 175. R.Pastel, A.Struthers, "Measuring evaporation rates of laser-trapped droplets by use of fluorescent morphology-dependent resonances", Appl.Opt. 40, 2510-2514 (2001).
- M.A. Stowers and S. K. Friedlander, "Chemical characterization of flowing polydisperse aerosols by Raman spectroscopy," Aerosol Sci. Tech. 36, 48-61, (2002).
- 177. S.C.Hill, H.I.Saleheen, M.D.Barnes, W.B.Whitten, "Modeling fluorescence collection from single molecules in microspheres: effects of position, orientation, and frequency", Appl.Opt. 35, 6278-6288 (1996).
- 178. P.H.Kaye, J.E.Barton, E.Hirst, J.M.Clark, "Simultaneous light scattering and intrinsic fluorescence measurement for the classification of airborne particles", Appl.Opt. 39 3738-3745 (2000).
- 179. S.C.Hill, R.G.Pinnick, S.Niles, N.F.Fell, Y.L.Pan, J.Bottiger, B.V.Bronk, S.Holler, R.K.Chang, "Fluorescence from airborne microparticles: dependence on size, concentration of fluorophores, and illumination intensity", Appl.Opt. 40, 3005-3013 (2001).
- 180. J.R.Scherer, M.K.Go, and S.Kint, "Raman spectra and structure of water from -10 to 90⁰," J.Phys.Chem. 78, 1304-1313 (1974).
- S.D. Druger and P.J.McNulty, "Radiation pattern of Raman scattering from randomly oriented molecules in or near small particles", Phys.Rev.A 29, 1545-1547 (1984).
- 182. J. P. Kratohvil, M.-P. Lee, and M. Kerker, "Angular distribution of fluorescence from small particles", Appl. Opt., 17, 1978-1980, 1978
- 183. E.-H. Lee, R. E. Benner, J. B. Fenn, and R. K. Chang, "Angular distribution of fluorescence from monodispersed particles", Appl. Opt., 17, 1980-1982, 1978
- 184. K.H.Fung, I.N.Tang, "Polarization measurements on Raman scattering from spherical droplets", Appl. Spectr. 46, 1189-1192 (1992).
- S.C.Hill, Yong-le Pan, S.Holler, R.K.Chang, "Enhanced backward-directed multiphoton-excited fluorescence from dielectric microcavities", Phys.Rev.Lett. 85, 54-57 (2000).

- 186. N.Velesco, G.Shweiger, "Geometrical optics calculation of inelastic scattering on large particles", Appl.Opt. 38, 1046-1052 (1999).
- 187. Y.L. Pan, S.C.Hill, J.P.Wolf, S.Holler, R.K.Chang and J.R.Bottiger, "Backward-enhanced fluorescence from clusters of microspheres and particles of tryptophan", Appl. Opt. 41, 2994-2999 (2002).
- 188. S.C.Hill, C.K.Rushfort, R.E.Benner, P.R.Conwell, "Sizing dielectric spheres and cylinders by aligning measured and computed resonance locations – algorithm for multiple orders", Appl.Opt. 24, 2380-2390 (1985).
- 189. A.Biswas, H.Latifi, R.L.Armstrong, and R.G.Pinnick, "Double-resonance stimulated Raman scattering from optically levitated glycerol droplets", Phys.Rev.A 40, 7413-7416 (1989).
- J.D.Eversole, H.B.Lin, A.J.Campillo, "Input-output resonance correlation in laser induced emission from microdroplets", J.Opt.Soc.Am. B 12, 287-296 (1995).
- 191. H.B.Lin, A.J.Campillo, "CW nonlinear optics in droplet microcavities displaying enhanced gain", Phys.Rev.Let. 73, 2440-2443 (1994).
- 192. L.G.Guimaraes and H.M.Nussenzveig, "Uniform approximation of Mie resonances", J. Modern Optics 41, 625-647 (1994).
- 193. G.Chen, W.P.Acker, R.K.Chang, S.C.Hill, "Fine structures in the angular distribution of stimulated Raman scattering from single droplets", Opt.Lett. 16, 117-119 (1991).
- 194. K. Cunningham and P.A.Lyons, "Depolarization ratio studies on liquid water", J. Chem. Phys. 59, 2132-2139 (1973).
- 195. F.Russo, B.D.Demoz, I.Veselovskii, J.Welton, R.M.Hoff, D.N.Whiteman, J.Campbell, R.Ferrare, "Comparison of Raman lidar and micropulse lidar aerosol measurements", Proceedings of ILRC 21, July 2002, Quebec City, 599-602.
- 196. Z. Wang, D. Whiteman, B. Demoz, I. Veselovskii, "A new way to measure cirrus ice water content by using ice Raman scatter with Raman lidar", Proceedings of ILRC 22, 321-324, 12-16 July 2004, Matera, Italy.

- 197. B.R.Clemesha, I.Veselovskii, P.P.Batista, M.P.P.M.Jorge and D.M.Simonich. First mesopause temperature profiles from a fixed southern hemisphere site. Geophys.Res.Lett 26, 1681-1684 (1999).
- 198. G.P.Gobbi, "Polarization lidar returns from aerosols and thin clouds: a framework for the analysis", Appl.Opt. 37, 5505 (1998).
- 199. M.I.Mishenko, K.Sassen, "Depolarization of lidar returns by small ice crystals: an application to contrails", Geophys. Res.Lett. 25, 309 (1998).
- 200. F.Cario, G. Di Donfrancesco, A.Adriani, L.Pulvirenti, F.Fierli, "Comparison of various linear depolarization parameters measured by lidar" Appl.Opt. 38, 4425 (1999).
- 201. T. Sakai, T. Nagai, M. Nakazato, T. Matsumura, "Raman lidar measurement of water vapor and ice clouds associated with Asian dust layer over Tsukuba, Japan", J.Geophys.Res. 31, L06128, doi:10.1029/2003GL019332 (2004).
- 202. F. De Tomasi and M. R. Perrone, "Lidar measurements of tropospheric water vapor and aerosol profiles over southeastern Italy", J.Geophys.Res. 108, 4286, doi:10.1029/2002JD002781 (2003).
- 203. Sherlock, V., A. Hauchecorne, J. Lenoble, "Methodology for the independent calibration of Raman backscatter water-vapor lidar systems", App. Opt., 38, 27, 5816-5837 (1999).
- 204. Vaughan, G., D. P. Wareing, L. Thomas, V. Mitev, "Humidity measurements in the free troposphere using Raman backscatter", Q. J. R. Meteor. Soc., 114, 1471-1484 (1988).
- 205. B. R. Marshall and R. C. Smith, "Raman scattering and inwater ocean optical properties," Appl. Opt. 29, 71–84 (1990).
- 206. R. B. Slusher and V. E. Derr, "Temperature dependence and cross sections of some Stokes and anti-Stokes Raman lines in ice Ih," Appl. Opt. 14, 2116–2120 (1975).
- 207. N. Abe and M. Ito, "Effects of hydrogen bonding on the Raman intensities of methanol, ethanol, and water," J. Raman Spectrosc. 7, 161–167 (1978).

- 208. C. Hu and K. J. Voss, "In situ measurements of Raman scattering in clear ocean water," Appl. Opt. 36, 6962–6967 (1997).
- 209. G. W. Faris and R. A. Copeland, "Wavelength dependence of the Raman cross section for liquid water," Appl. Opt. 36, 2686–2688 (1997).
- 210. C.M.Penney, R.L. St. peters, M.Lapp, "Absolute rotational Raman cross sections for N₂, O₂, and CO₂" J.Opt.Soc.Am. 64, 712-716 (1974).
- 211. K.Cunningham and P.A.Lyons, "Depolarization ratio studies on liquid water", J.Chem.Phys 59, 2132-2139 (1973).
- 212. F.Cairo, G.Di Donfrancesco, A.Adriani, L.Pulvirenti, and F.Fierli:
 "Comparison of various linear depolarization parameters measured by lidar Appl.Opt. 38, 4425-4432 (1999).
- 213. U.Wandinger, A.Ansmann, C.Weitkamp: "Atmospheric Raman depolarization-ratio measurements", Appl.Opt. 33, 5671 (1994).
- 214. Yu. Arshinov, S. Bobrovnikov, A. Nadeev, I. Serikov, D. Kim, H. Cha, K. Song, "Observation of range-resolved rovibrational Raman spectra of water in clear air and in a cloud with a 32-spectral-channel Raman lidar", Proceedings of ILRC 21, Quebec City, July 2002, p.31-34
- 215. Loudon, R., "The Raman effect in crystals", Advances in Physics, 50, 813-864 (2001).
- 216. Scherer, J.R. and R. G. Snyder, "Raman intensity of single crystal ice I_h," J. Chem. Phys., 67, 4794-4811 (1977).
- 217. Venkatesh, C. G., S. A. Rice, and J. B. Bates, "A Raman spectral study of amorphous solid water", J. Chem. Phys., 63, 1065-1071 (1975).
- 218. Fu, Q., "An accurate parameterization of the solar radiative properties of cirrus clouds for climate models", J. Climate, 9, 2058-2082 (1996).
- 219. Matrosov, S. Y., B. W. Orr, R. A. Kropfli, and J. B. Snider, "Retrieval of vertical profiles of cirrus cloud microphysical parameters from Doppler radar and infrared radiometer measurements", J. Appl. Meteor., 33, 617-626 (1994).
- 220. D.Whiteman, I.Veselovskii, "Simultaneous vertical profiling of atmospheric H2O and CO2 using Raman lidar", SPIE European International Symposium,

Remote sensing, 19-22 September 2005, Bruges, Belgium. Presentation 5984-15 S4.

- 221. P. Di Girolamo, B. B. Demoz, D. N. Whiteman, Model simulations of melting hydrometeors: A new lidar bright band from melting frozen drops, Geophys. Res. Lett., 30 (12), 1626, doi: 10.1029/2002GL016825, 2003.
- 222. Q. L. Aden, and M. Kerker, "Scattering of Electromagnetic Waves from Two Concentric Spheres", J. Appl. Phys., 22, 1242-1246 (1951).
- 223. T. Yokoyama, and H. Tanaka, "Microphysical processes of melting snowflakes detected by two-wavelength radar. Part I. Principle of measurement based on model calculation", J. Meteor. Soc. Japan, 62, 650-666 (1984).
- 224. K. Aydin, and Y. Zhao, "A computational Study of Polarimetric Radar Observables in Hail", IEEE Transactions of Geoscience and Remote Sensing, 28, 412-422 (1990).
- 225. S. K. Mitra, O. Vohl, M. Ahr and H. R. Pruppacher, "A wind tunnel and theoretical study of the melting behavior of atmospheric ice particles, IV: Experiment and theory for snow flakes", J. Atmos. Sci, 47, 584-591 (1990).
- 226. Meneghini and Liao, "Effective Dielectric Constants of Mixed-Phase Hydrometeors", J. Atm. Oceanic Tech., 17, 628-640 (2000).
- 227. J. G. Fikioris and N. K. Uzunoglu, "Scattering from an eccentrically stratified dielectric sphere", J. Opt. Soc. Am. 69, 1359-1366 (1979).
- 228. D. W. Mackowski, "Analysis of radiative scattering for multiple sphere configurations", Proc. Roy. Soc., London Ser. A, **433**, 599-614 (1991).
- 229. F. Borghese, P. Denti, R. Saija, and O. I. Sindoni, "Optical properties of spheres containing a spherical eccentric inclusion", J. Opt. Soc. Am. A 9, 1327-1335 (1992).
- 230. N. C. Skaropoulos, M. P. Ioannidou, and D. P. Chrissoulidis, "Indirect modematching solution to scattering from sphere with an eccentric inclusion", J. Opt. Soc. Am. A 11, 1859-1866 (1994).

- 231. K. A. Fuller, "Scattering and absorption cross section of compounded spheres.
 III. Spheres containing arbitrary located spherical inhomogeneities", JOSA A 12, 893-904 (1995).
- 232. D. Ngo, G. Videen, P. Chýlek, "A FORTRAN code for the scattering of EM waves by a sphere with a nonconcentric spherical inclusion", Computer Physics Communications 1077, 94-112 (1996).
- 233. V. Griaznov, I. Veselovskii, P. Di Girolamo, B. Demoz, D. N. Whiteman, "Analysis of scattering properties of eccentric spheres in application to lidar measurements", Proceedings of ILRC 22, Matera, Italy (2004).
- 234. L. J. Battan, "Radar Observations of the Atmosphere", Univ. of Chicago Press, (1973).
- 235. J.W.Chen, A.Luches, V.Nassisi, M.R.Perrone, "High brightness single transverse mode operation of XeCl laser", Opt.Comm. 72, 225 (1989).
- 236. J.Goldhar, J.R.Murray,"Injection-locked, narrow-band KrF discharge laser using an unstabke resonator cavity", Opt. Lett. 1, 199 (1997).
- 237. I.Park, A.Maitland, "Unstable resonator magnification effects in a short-pulse XeCl laser", J. Modern Opt. 35, 587 (1988).
- 238. N.Hamada, R.Sauerbrey, F.K.Tittel, "Analytical model for injectioncontrolled excimer laser amplifiers", IEEE J.Quant.Electr. 24, 2458 (1988).
- 239. А.А.Исаев, М.А.Казарян, Г.Г.Петраш, С.Г.Раутиан, А.М.Шалагин, "Процесс формирования выходного пучка в импульсном газовом лазере с неустойчивым резонатором" Квантовая Электроника 4, 1325 (1977).
- 240. Ю.А.Ананьев, С.Г.Аникичев, А.Ф.Бохонов, В.С.Бураков, Г.Г.Кот, В.А.Орлович, В.А.Титарчук, "Кинетика генерации эксимерного лазера с телескопическим неустойчивым резонатором и поляризационным выводом излучения", ЖТФ 59, 100 (1989).
- 241. В.С.Верховский, М.И.Ломаев, С.В.Мельченко, А.Н.Панченко, В.Ф.Тарасенко, "Управление энергетическими, временными и пространственными характеристиками излучения XeCl-лазера", Квантовая Электроника 18, 1279 (1991).

- 242. Зельдович Б.Я., Пилипецкий Н.Ф., Шкунов В.В., "Обращение волнового фронта", Наука 1985.
- 243. Slatkine M., Bigio I.I., Feldman B.J., Fisher R.A.,"Efficient phase conjugation of an ultraviolet XeF laser beam by SBS", Opt.Lett. 7, 108 (1982).
- 244. Osborne M.R., Shoerder W.A., Damzen M.J., Hutchinson M.H., "Low divergence operation of a long-pulse excimer laser using a SBS phase conjugate cavity", Appl.Phys.B 48, 351 (1989).
- 245. Sugii M., Okabe M., Watanabe A., Sasaki K., "Single-stage high beam quality XeCl laser with a phase-conjugate Brillouin mirror", IEEE J. of Quant. Electron. QE-24, 2264 (1989).
- 246. Kurnit.N.A., Thomas S.J., "Application of phase-conjugate Brillouin mirror to the generation of high-quality variable-duration KrF pulses", IEEE J. of Quant. Electron. QE-25, 421 (1989).
- 247. Алимпиев С.С., Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А., Обидин А.З., "Сужение линии и обращение волнового фронта XeCl лазера". Краткие Сообщения по Физике, ФИАН, 12, 11-13 (1989).
- 248. Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А., Обидин А.З., "Эксимерная лазерная система с высокой спектральной яркостью". Краткие Сообщения по Физике, ФИАН, 2, 3-5 (1990).
- 249. Алимпиев С.С., Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А., Обидин А.З., "Обращение волнового фронта XeCl лазера в многомодовом волокне". Квантовая Электроника 17, 338-339 (1990).
- 250. Алимпиев С.С., Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А., Обидин А.З., "Сужение линии и обращение волнового фронта излучения KrF лазера". Квантовая Электроника, 18, 89-90 (1991).
- 251. Алимпиев С.С., Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А, Обидин А.З., Прохоров А.М., "Контроль спектральных, пространственных и временных параметров коммерческих эксимерных лазеров". Известия Академии Наук серия физическая, 56, №4, 216-221 (1992).

- 252. Вартапетов С.К., Веселовский И.А, Обидин А.З., Солдаткин А.Н, Зиганшин Э.Т., Электроразрядный эксимерный XeCl с длинным импульсом излучения. Квантовая Электроника 18, 560-562 (1991).
- 253. Alimpiev S.S., Bukreev V.S., Vartapetov S.K., Veselovskii I.A., Kusakin V.I., Likhanskii S.V., Obidin A.Z. Spectrum narrowing, Phase conjugation and compression of excimer laser pulses. Laser Physics, 1, No3, 261-271 (1991).
- 254. Alimpiev S.S. Bukreev V.S., Vartapetov S.K., Veselovskii I.A., Likhanskii
 S.V., Obidin A.Z. Powerfull excimer laser system with phase-conjugate mirror.
 Proceedings of 8th GCL symposium, Madrid 10-14 September, 1990.
- 255. McKee T.J., "Spectral narrowing techniques for an excimer laser oscillator", Can.J.Phys. 63, 214 (1985).
- 256. Pacala T.J., McDermid I.S., Laudenslager J.B., "Single longitudinal mode operation of an XeCl laser", Appl.Phys.Lett. 45, 507 (1984).
- 257. Armandillo E., Lopatriello P.V., Single-mode tunable operation of a XeF excimer laser employing an original interferometer, Opt.Lett. 9, 327 (1984).
- 258. Partanen J.P., Shaw M.J., "A single-mode KrF laser", Appl.Phys.B 43, 231 (1987).
- 259. Sugii M., Audo M., Sasaki K., "Simple long-pulse XeCl laser with narrow-line output", IEEE J. of Quant.Electron. QE-23, 1458 (1987).
- 260. М.С.Джиджоев, С.В.Краюшкин, В.Т.Платоненко, "Одномодовый перестраиваемый эксимерный XeCl лазер", Квантовая Электроника 17, 533 (1990).
- 261. И.А.Кудинов, В.Т.Платоненко, Е.В.Слободчиков, "Узкополосный эксимерный XeCl лазер", Квантовая Электроника 17, 543 (1990).
- 262. Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А., Обидин А.З.,: Эксимерная лазерная система с высокой спектральной яркостью. Краткие Сообщения по Физике, ФИАН, 2, 3 (1990).
- 263. Gower M.C., "KrF laser amplifier with phase-conjugate Brillouin retroreflectors", Opt.Lett. 7, 423-425 (1982).
- 264. Gower M.C., "Phase conjugation at 193 nm", Opt.Lett. 8, 70-72 (1983).

- 265. Rank D.H., Cho C.W., Foltz N.D., Wiggins T.A., "Stimulated Thermal Rayleigh Scattering", Phys.Rev.Lett. 19, 828-830 (1967).
- 266. С. А. Ахманов, Н. И. Коротеев, "Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света". М: Наука 1981, с.539.
- 267. В.Б.Карпов, В.В.Коробкин, Д.А.Долголенко, "ОВФ излучения эксимерного XeCl лазера при возбуждении различных видов ВР света" Квантовая электроника, **11**, 1350-1353 (1991).
- 268. Горбунов В.А., Паперный С.Б., Петров В.П., Старцев В.Р., "Временное сжатие импульсов при ВРМБ в газах", Квантовая Электроника 10, 1386 (1983).
- 269. Tomov I. V., Fedosejevs R., "High-efficiency stimulated Brillouin scattering of KrF laser radiation in SF6", Opt. Lett. 9, 405 (1984).
- Fedosejevs R., Offenberger A. A., "Subnanosecond pulses from a KrF laser pumped SF6Brillouin amplifier", IEEE J. Quant. Electron. QE-21. 1558-1662 (1985).
- 271. Alimpiev S.S., Bukreev V.S., Vartapetov S.K., Veselovskii I.A., Likhanskii S.V., Obidin A.Z., "Pulse compression of KrF laser radiation by stimulated scattering", Proceedings of ECO4- International congress on Optical Science and Engineering, Hague 11-15 March, 1991. SPIE vol.1503 Excimer lasers and applications III 154-157 (1991).
- 272. T.M.Shay, R.C.Sze, M.Maloney, J.F.Figueria, "120-ps duration pulses by active mode locking of an XeCl laser", J. Appl. Phys. 64, 3758-3760 (1988).
- 273. O.L.Bourne, A.J.Alcock, "Subnanosecond-pulse generation of 308 and 450 nm by truncated stimulated Brillouin scattering", Optics Letts, 9, 411 (1984).
- 274. A.J.Alcock, I.J.Miller, O.L.Bourne. Optics Comms, 62, 127 (1987).
- 275. I.A.McIntyre, K.Boyer, C.K.Rhodes, "Shortening of KrF laser pulses using stimulated Brillouin scattering", Optics Letts, 12, 909 (1987).
- 276. I.S.Huo, A.J.Alcock, O.L.Bourne, "A time-resolved study of sub-nanosecond pulse generation by the combined effects of stimulated Brillouin scattering and laer-induced breakdown". Appl. Phys. B, 38, 125-129 (1985).

- N.A.Kurnit, S.J.Thomas, "Application of a phase-conjugate Brillouin mirror to generation of high-quality variable-duration KrF pulses", IEEEJ. QE-25, 421-429 (1989).
- 278. М.С.Джиджоев, С.В.Краюшкин, В.Т.Платоненко, Е.В.Слободчиков. Квантовая электроника, **18**, 313 (1991).
- 279. Алимпиев С.С., Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А, Лиханский С.В., Обидин А.З., Укорочение импульсов KrF и ArF лазеров при оптическом пробое на поверхности жидкости. Квантовая Электроника 20, 233-236 (1993).
- 280. Alimpiev S.S, Bukreev V.S., Vartapetov S.K., Veselovskii I.A., Likhanskii S.V., Obidin A.Z. Pulse shortening of KrF and ArF lasers in a process of optical breakdown on a liquid surface. Optics Comm., 96, 71-74, (1993).
- Papayannis A., Ancellet G., Pelon J., Megie G., "Multiwavelength lidar for ozone measurements in the troposphere and the lower stratosphere", Appl.Opt. 29, 467-476 (1990).
- 282. Uchino O., Maeda M., Yamamura H., J.Geophys.Res. 88, 5273 (1983).
- 283. Букреев В.С., Вартапетов С.К., Веселовский И.А, Шаблин Ю.С., Измерение озона в нижней тропосфере лидаром дифференциального поглощения. Квантовая Электроника 26, 363-367 (1996).
- 284. Shibata T., Fukuda T., Narikiyo T., Maeda M., "Evaluation of the solar-blind effect in ultraviolet ozone lidar with Raman lasers". Appl.Opt. 26, 2604-2612 (1987).
- 285. Trainor D.W., Hyman H. A., Heinrichs R.M., "Stimulated Raman scattering of XeF* laser radiation in H2". IEEE J.Quantum Electron., 18, 1929-1934 (1982).
- 286. Lou 0. J., "Research on the characteristics of H₂ Raman conversion pumping by a 1-J XeCl excimer laser Appl. Phys", 66, 2265-2273 (1989).
- 287. Баранов В.Ю., Борисов В.М. и др., "ВКР преобразование излучения с λ=308 нм и частотой повторения импульсов до 600 Гц в сжатом водороде".
 Квантовая электроника, 15, 2030-2037 (1988).

- 288. Huo Y., Shimizu K., Yagi T., "High-efficiency second-Stokes-order Raman conversion of KrF laser radiation in hydrogen", J.Appl.Phys., 71, 45-48 (1992).
- 289. Вартапетов С.К., Веселовский И.А, ВКР-преобразование излучения KrF лазера в дейтерии. Квантовая Электроника 25, 66-70 (1995).
- 290. Grant W.B., Browell E.V., Higdon M.S., Ismail S., "Raman shifting of KrF laser radiation for tropospheric ozone measurements", Appl. Optics, **30**, 2628 (1991).
- 291. Komine H., "Stimulated vibrational Raman scattering in HD" IEEE J.Quantum Electron., 22, 520-521 (1986).
- 292. Chu Z., Singh U.N., Wilkerson T.D, "Multiple Stokes wavelength generation in H2, D2, and CH4 for lidar aerosol measurements", Appl. Optics, **30**, 4350 (1991).
- 293. Андреев Р.Б., Горбунов В.А., Гулидов С.С., Паперный С.Б., Серебряков В.А., "О роли параметрических эффектов при генерации высших компонент ВКР в газах" Квантовая электроника, 9, 56-59 (1982).
- 294. Bjorklund G.C., "Effects of focusing on third-order nonlinear processes in isotropic media", IEEE J .Quantum Electron., 11, 287 (1975).
- 295. Bartels J., Borchers H., Hausen H., Hellwege K. H., Schafer K. L., Schmidt E. Landolt-Bornstein Zahlenwerte und Functionen (Berlin, Springer-Verlag, 1962, p.6.871 -6.885).
- 296. Грасюк А.З., Зубарев И.Г., Суязов Н.В., "Влияние ширины спектра линии возбуждающего излучения на усиление при вынужденном рассеянии" Письма в ЖЭТФ. **16**, 237-240 (1972).
- 297. Haner D.A., McDermid I.S., "Stimulated Raman shifting of the Nd:YAG fourth harmonic (266 nm) in H₂, HD, and D₂", IEEE J.Quantum Electron., **26**, 1292-1298 (1990).
- 298. Diebe D., Bristow M., Zimmerman R., "Optical cavity design for long pulse excimer lasers", Appl. Optics, 30, 626-644 (1991).
- 299. Schotland R., "Errors in the lidar measurements of atmospheric gases by differential absorption", J.Appl.Meteor., 13, 71 (1974).

- 300. Browell E., Ismail S., Shipley S., "Ultraviolet DIAL measurements of O_3 profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols", Appl.Optics. 24, 2827 (1985).
- 301. Russel P., Swissler T., McCormic M. "Methodology for error analysis and simulation of lidar aerosol measurements", Appl.Optics, 18, 3783 (1979).
- 302. V.A.Kovalev, J.L.McElroy, "Differential absorption lidar measurement of vertical ozone profiles in the troposphere that contains aerosol layers with strong backscattering gradients: a simplified version", Appl.Opt. 33, 8393 (1994).
- 303. W.Steinbrecht, A.I.Carswell, "Evaluation of the effects of Mt. Pinatubo aerosol on DIAL measurements of stratospheric ozone", J.Geophys. Res. 100, 1215 (1995).
- 304. D'Altorio, F.Masci, V.Rizi, G.Visconti, E.Boschi, "Continuous lidar measurements of stratospheric aerosols and ozone in the presence of stratospheric aerosol layers", Geophys. Res. Let. 20, 2865 (1993).
- 305. Wakamatsu Sh., Uno I., Ueda H., Uehara K. Atmospheric Enviroment, 23, 1815 (1989).
- 306. E.V.Browell, G.L.Gregory, R.C.Harris, V.W.J.H. Kirchhoff, Ozone and aerosol distributions over the amazon basin during the wet season, J. Geophys. Res. 95, D 10, 16.887 (1990).
- 307. E.V.Browell, M.A.Fenn, C.F.Butler, W.B.Grant, R.C.Harris, M.C.Shipham,
 "Ozone and aerosol distributions in the summertime troposphere over Canada"
 J.Geophys. Res. 99 D, 1739-1756 (1994).
- 308. M.Beekmann, G.Ancellet, D.Martin, C.Abonnel, G.Duverneuil, F.Eideliman, P.Bessemoulin, N.Fritz, E.Gizard. "Intercomparison of tropospheric ozone profiles obtained by electrochemical sondes, a ground based lidar and an airborne UV-photometer" Atmospheric Environment 29, 1027-1042 (1995).
- 309. Uta-B. Goers, "Laser remote sensing of sulfur dioxide and ozone with the mobile differential absorption lidar ARGOS", Opt. Eng. 34, 3097 (1995).

- 310. C. Senff, J. Bosenberg G. Peters, T.Schaberl, Remote sensing of turbulent ozone fluxes and the ozone budget in the convective boundary layer with DIAL and radar-RASS: a case study, Beitr. Phys. Atmosph. 69, 161 (1996).
- 311. G. Ancellet , F.Ravetta, "Compact airborne lidar for tropospheric ozone: description and field measurements", Appl.Opt. 37, 5509 (1998).
- 312. Lamarque J.F., Langford A.O., Proffitt M.H., "Cross-tropopause mixing of ozone through gravity wave breaking: observation and modeling", J. Geophys. Res. 101, D17, 22969 (1995).
- A.O.Langford, M.H. Proffitt, T.E. VanZandt, J.-F.Lamarque, "Modulation of tropospheric ozone by a propagating gravity wave". J. Geophys. Res. 101, D 21, 26.605 (1996).
- 314. J.-L. Baray, J.Leveau, J.Porteneuve, G.Ancellet, P.Keckhut, F.Posny, S.Baldy, "Description and evaluation of a tropospheric ozone lidar implemented on an existing lidar in the southern subtropics", Appl.Opt. 38, 6808 (1999).
- 315. H.Eisele, H.E.Scheel, R.Sladkovic, T.Trickl, "High-resolution lidar measurements of stratosphere-troposphere exchange", J. Atmospheric Sciences 56, 319 (1999).
- 316. K.A.Elsayed, S.Chen, L.Petway, B.Meadows, W.D.Marsh, W.C.Edwards, J.C.Barnes, R.J.DeYoung, "High-energy, efficient, 30-Hz ultraviolet laser sources for airborne ozone-lidar systems", Appl.Opt. 41, 2734 (2002).
- 317. E. Wallinder, H.Edner, P. Ragnarson, S.Svanberg, "Vertically sounding ozone lidar system based on a KrF excimer laser, Physica Scripta" 55, 714 (1997).
- 318. Veselovskii I.A., Bucreev V.S, Vartapetov S.K., Shablin Y.P, H.Cha, J.Lee. "Night and day-time ozone measurements in boundary layer by differential absorption lidar. Journal of Korean Physical Society" 30, 563-568 (1997).
- 319. V.Simeonov, V.Mitev, H. Van den Berg, B.Calpini, "Raman frequency shifting in CH₄:H₂:Ar mixture pumped by the fourth harmonic of a Nd:YAG laser", Appl.Opt. 37, 7112 (1998).

- 320. G.Ancellet, M.Beekmann, "Evidence for the chanes in the ozone concentrations in the free troposphere over Soutern France from 1976 to 1995", Atmospheric Environment 17, 2835 (1997).
- 321. F.de Tomassi, M.R.Perrone, M.L.Protopapa,"Monitoring O₃ with solar-blind Raman lidars", Appl.Opt. 40, 1314 (2001).
- 322. W.E.Eichinger, D.I.Cooper, F.L.Archuletta, D.Hof, D.B.Holtkamp, R.R.Karl, C.R.Quick, J.Tiee, "Development of a scanning, solar-blind, water Raman lidar". Applied Optics 33, 3923-3932 (1994).
- 323. D.Kim, H.Cha, J.Lee and I.A.Veselovskii. Day-time Raman lidar for water vapor and ozone concentration measurements. Journal of Korean Physical Society 30, 458-462 (1997).
- 324. D.Kim, H.Cha, K.Song, J.Lee and I.A.Veselovskii. Ecological monitoring by differential absorption lidar (DIAL) and Raman lidar techniques. Journal of Korean Physical Society, 30, 57-64 (1997).
- 325. Boyarchuk K.A., Veselovskii I.A., Karelin A.V., Shirokov R.V. Anthropogenous sources of tropospheric ozone variations, - Physics of Vibrations, 9, 90-96 (2001).
- 326. Белоглазов М.И., Карпечко А.Ю., Румянцев С.А. "Озон в тропосфере высоких широт", в кн. "Физика околоземного космического пространства", Апатиты: изд. Кольского научного центра РАН, 2000, 706с., с. 669 – 704.
- 327. Белан Е.Д, "Проблема тропосферного озона и некоторые результаты его измерений", Оптика атмосферы и океана, 9, № 9, 1184–1213 (1996).
- 328. M.Peleg, M.Luria, G.Sharf, A.Vanger, G.Kallos, V.Kotroni, K.Lagouvardos, M.Varinou, "Observational evidence of an ozone episode over the Greater Athens area," Atmospheric Environment 31, 3969 (1997).
- 329. Еланский Н.Ф., Смирнова О.И., "Концентрация озона и окислов азота в приземном воздухе г. Москвы", Изв. РАН Физика атмосферы и океана 33, №5, 597–611 (1997).
- 330. Труды ИОФАН, т. 21, М.: Наука, 1989.

- 331. Hough A.M., Derwent R.G., "Changes in the global concentration of tropospheric ozone due to human activities", Nature 334, 645–648 (1990).
- 332. Wofsy S.C., Sachse G.W., Gregory G.L. at.al., "Atmospheric chemistry in the Arctic and Subarctic: influence of natural fires, industrial emissions, and stratospheric inputs", J.Geopys. Res. 97, D15, 16731–16746 (1992).