МЕТОДЫ ОБРАБОТКИ ЛИДАРНЫХ СИГНАЛОВ ОБРАТНОГО УПРУГОГО РАССЕЯНИЯ

С.А. Имашев, П.В. Козлов, Л.Г. Свердлик, Б.Б. Чен

Рассмотрены два различных усовершенствованных метода восстановления профилей оптических характеристик аэрозоля по лидарным сигналам обратного упругого рассеяния.

Ключевые слова: лидарное уравнение; лидарное отношение; ослабление; обратное рассеяние; аэрозоль.

1. Введение

Для получения надежных количественных результатов при интерпретации лидарных данных, в основе которой лежит решение лидарного уравнения, требуется априорное задание или эмпирическое определение профиля лидарного отношения (S_a). Этот параметр связывает две неизвестные величины – коэффициенты ослабления (α_a) и обратного рассеяния (β_a). В наиболее предпочтительном и доступном виде нахождение S_a может быть достигнуто за счет использования сигнала обратного комбинационного рассеяния (KP), позволяющего независимо определять вертикальные профили $\alpha_a(z)$ и $\beta_a(z)$ [1]. Однако известный недостаток сигналов КР (малая интенсивность) ограничивает проведение лидарных измерений по времени (только в темное время суток) и диапазону высот (до 4,0–5,0 км). Как следствие, дневные серии зондирования атмосферы, являясь важной частью регулярных и специальных лидарных измерений, не позволяют использовать преимущества регистрации сигналов КР.

В отсутствии данных о вертикальном распределении лидарного отношения обычно привлекаются независимые измерения аэрозольной оптической толщины, в частности с помощью солнечного радиометра CIMEL, который обеспечивает наиболее точные значения аэрозольной оптической толщины (AOD), использующиеся как ограничение при решении лидарного уравнения [2, 3, 4]. Интеграл лидарного профиля ослабления, соответствующий полученной фотометром оптической толщине, обеспечивает привязку отношения ослабления в колонне атмосферы к обратному рассеянию. Условие равенства AOD, рассчитанной по лидарным данным и измеренной солнечным фотометром, позволяет вычислять среднее значение лидарного отношения и уточненный искомый профиль коэффициента обратного аэрозольного рассеяния.

Однако даже при наличии данных о независимом от высоты лидарном отношении, остающаяся неопределенность коэффициента ослабления (приблизительно 20%), должна быть учтена из-за возможной изменчивости лидарного отношения с высотой. Ожидаемые погрешности могут быть значительно больше, когда присутствуют приподнятые слои, например, пылевого аэрозоля [5]. Поэтому дополнительно для нахождения связи между коэффициентами обратного рассеяния и ослабления при восстановлении оптических свойств аэрозольных слоев, расположенных на высотах более 4,0 км, используется метод, основанный на определении эффективного лидарного отношения, которое приводит к нулевому коэффициенту обратного рассеяния выше и ниже слоя. Сравнение оценок значений *S*_a, полученных этим методом и применением сигнала КР, показало достаточно хорошее согласие [6].

Вестник КРСУ. 2011. Том 11. № 7 157

Ниже приведены описание двух методик обработки лидарных сигналов обратного упругого рассеяния, оценка преимуществ и области применимости каждой из них, а также типичные примеры результатов измерения.

2. Методика совместной обработки лидарных и фотометрических измерений 2.1. Основные уравнения

Решение лидарного уравнения, связывающего измеряемые сигналы обратного упругого рассеяния с оптическими параметрами атмосферы, можно записать в виде выражения Клетта – Фернальда [7–9]:

$$\beta_{a}(z) = -\beta_{m}(z) + \frac{X(z_{0}) \exp\left[-2\int_{z_{0}}^{z} (S_{a} - S_{m})\beta_{m}(\zeta)d\zeta\right]}{\frac{X(z_{0})}{\beta_{a}(z_{0}) + \beta_{m}(z_{0})} - 2\int_{z_{0}}^{z} S_{a}X(\zeta) \exp\left[-2\int_{z_{0}}^{\zeta} (S_{a} - S_{m})\beta_{m}(z')dz'\right]d\zeta},$$
(1)

где

$$X(z) = P(z) * z^{2}; \ S_{a}(\lambda, z) = \alpha_{a}(\lambda, z) / \beta_{a}(\lambda, z), \ S_{m}(\lambda, z) = \alpha_{m}(\lambda, z) / \beta_{m}(\lambda, z),$$

P(z) – лидарный сигнал; $\alpha_{a}(z)$ – коэффициент аэрозольного ослабления; a_{m} и β_{m} – коэффициенты молекулярного ослабления и обратного рассеяния соответственно; z₀ – точка калибровки сигнала. Расчет по формуле (1) требует знания высотного распределения функции $S_a(\lambda, z)$. На практике часто при-

нимается упрощающее предположение, что лидарные отношения S_a и S_m являются константами. В случае постоянного S_a формуле (1) для коэффициента обратного аэрозольного рассеяния $\beta_a(z)$ можно придать более простую форму, не требующую вычисления двойных интегралов. Расчет коэффициента $\beta_a(z)$, отношения обратного рассеяния $R(z) = 1 + \beta_a(z) / \beta_m(z)$ и аэрозольной оптической толици $t_a(z)$, риноридется но следности формулести.

зольной оптической толщи t_a(z) выполняется по следующим формулам:

$$\beta_a(z) = \frac{P(z)z^2}{P(z_0)z_0^2}\beta(z_0)\exp(2F(z) + \tau_m(z) - \tau_m(z_0)) - \beta_m(z),$$
(2)

$$R(z) = R(z_0) \frac{P(z)z^2}{P(z_0)z_0^2} \exp(2F(z) + t_m(z) - t_m(z_0)),$$
(3)

$$t_{a}(z) = t_{a}(z_{0}) + F(z)$$
, (4)

где

$$F(z) = \frac{S_a}{S_m} (\tau_m(z_0) - \tau_m(z)) - \frac{1}{2} \ln(1 + 2S_a \frac{\beta(z_0)}{\Phi(z_0)} (\Psi(z_0) - \Psi(z))),$$

$$\Phi(z) = P(z)z^2 \exp(2(1 - S_a / S_m)t_m(z)),$$

$$\Psi(z) = \int_0^z \Phi(z) dz,$$

$$Q(z) = z \Phi(z) / \beta_m(z), z = \int_0^z \alpha_m(z) dz = S_m \int_0^z \beta_m(z) dz - \text{молекулярная оптическая толща; } S_m = \frac{8\pi}{3}; z0 - \text{точка ка-
ювки, в которой считается известной величина } \beta_a(z_0) или R(z_0) и в которой имеет место ло-$$

либр кальный минимум по z в распределении коэффициента $\beta_{a}(z)$.

Отметим, что в точке калибровки функция F(z) обращается в нуль: $F(z_0) = 0$. Для расчета $\beta_a(z)$ по формуле (2) выполняется предварительное вычисление функций $\beta_m(z)$, $\tau_m(z)$, $\Phi(z), \Psi(z)$ с шагом дискретизации лидарного сигнала и тогда расчет коэффициента $\beta_a(z)^m$ и AOD представляет собой простые алгебраические операции. Изменение точки калибровки, лидарного отношения S_a или коэффициента $\beta_a(z)$ в точке калибровки не требует повторного пересчета функций $\Phi(z), \Psi(z)$ в отличие от алгоритма на основе формулы (1), где каждый раз при смене параметров обработки необходимо заново пересчитывать интегральные выражения. Как показал вычислительный эксперимент, алгоритм расчета на основе формулы (2) обладает более высокой устойчивостью по сравнению с алгоритмом расчета, использующим формулу Клетта-Фернальда при обработке лидарных сигналов, полученных в условиях сильной облачности.

Как видно из формулы (2), для восстановления коэффициента $\beta_a(z)$ вдоль трассы необходимо задать, кроме S_a , и значение коэффициента $\beta_a(z_0)$ в точке калибровки. Для задания точки калибровки обычно выбираются такие участки лидарной трассы, где вклад аэрозольного рассеяния в лидарный сигнал пренебрежимо мал по сравнению с релеевским рассеянием.

Получив из (2) высотное распределение $\beta_a(z)$ после заданного в точке калибровки z_0 значения $\beta_a(z_0)$ (или $R(z_0)$), для расчета аэрозольной оптической толщи $\mathbf{t}_a(z_0)$ слоя (0, z_0) можно использовать формулу

$$\tau_{a}(z_{0}) \equiv \tau_{a}(z_{0}, S_{a}) = \int_{0}^{0} \alpha_{a}(z) dz = S_{a} \int_{0}^{0} \beta_{a}(z) dz.$$
(5)

В силу технических особенностей лидара на начальном участке трассы зондирования протяженностью ≈ 600 м отсутствует полное геометрическое перекрытие между лазерным лучом и полем зрения телескопа, вследствие чего сигнал обратного рассеяния на этом участке регистрируется с большой погрешностью. Рассчитанное по формуле (2) значение коэффициента обратного аэрозольного расссяния при движении от точки калибровки к поверхности земли сначала достигает экстремального (максимального) значения в некоторой точке z_e , в которой выполняется условие $F''(z_e) = 0$, затем уменьшается при $z < z_e$, достигая нулевого значения на некоторой высоте $z_m < z_e$. Поэтому использование соотношения (2) в слое $(0, z_e)$ и, как следствие, выполнение расчетов по формуле (5) некорректно. Примем точку нижнего предела регистрации сигнала $z = z_e$ в качестве границы "теневой зоны" лидара.

Для оценки изменения аэрозольной оптической толщи в слое (0, z,) примем, что коэффициент обратного рассеяния в этом слое равен своему максимальному значению, найденному в нижней точке диапазона (z_e, z_0) т.е. $\beta_a(z) = const = \beta_a(z_e) = F'(z_e)$, откуда при $0 < z < z_e$ имеем линейный характер изменения АОД: $\tau_a(z) = zF'(z_e).$ (6)





Выполняя сшивку соотношений (4) и (6) в точке $z = z_e$, получаем выражение для аэрозольной оптической толщины в слое $(0, z_0)$ через значение функции $F(z_{\rho})$:

$$\tau_a(z_0) = z_e F'(z_e) - F(z_e).$$
(7)

Характер поведения функции F(z)схематически представлен на рис. 1 Пунктир соответствует касательной К графику функции F(z) в точке перегиба $(F''(z_e) = 0)$ до пересечения ее с осью у. Отрезок, отсекаемый на вертикальной оси касательной, численно равен . График высотного распределения аэрозольной опти-

ческой толщины $\tau_a(z_{-})$ может быть определен путем параллельного сдвига графика функции F(z) на величину аэрозольной оптической толщины в точке калибровки.

Вестник КРСУ. 2011. Том 11. № 7

Типичное распределение τ_a по высоте при заданном в точке калибровки значении R=1,02 приведено на рис. 2. В то время как высотное распределение существенно зависит от величины лидарного отношения, нормированный на величину аэрозольной оптической толщи в точке калибровки профиль зависит от *Sa* относительно слабо, что указывает на значительную степень подобия высотных AOD. На высоте 8 км AOD достигает значения 0,8–0,82 от полной толщи, в качестве которой при совместной обработке принимается фотометрическая толща. На высоте 11–12 км нормированная аэрозольная толща принимает значение ~0,9 и в дальнейшем медленно изменяется до значения ~1 на высотах 25–30 км. Отмеченная закономерность была получена при обработке ряда измерений по сериям лидарных сигналов в трех высотных диапазонах.



Рис. 2. Высотное распределение аэрозольной оптической толщи (а) и нормированной аэрозольной оптической толщи (b), рассчитанной для диапазона лидарного отношения $S_a=10-50$ с равномерным шагом $\Delta S_a=5$

При исследовании оптических параметров тропосферного аэрозоля первичные лидарные данные ограничены одиночными зондированиями, обеспечивающими высотный диапазон регистрации сигналов до уровня тропопаузы. На практике данный вид обработки используется гораздо чаще, а точка привязки берется ниже тропопаузы либо, при слабых сигналах КР, – над слоем перемешивания. Для повышения надежности совместной обработки в этих случаях целесообразнее использовать полученные ранее многолетние экспериментальные данные о характере нормированного высотного распределения аэрозольной оптической толщи и связать расчетную оптическую толщу с ее значением из фотометрических измерений соотношением

$$\tau_a(z_0) = k \cdot AOD, \tag{8}$$

где поправочный коэффициент k=0,9, если точка калибровки выбирается на высоте 11–12 км, и k=0,8, если точка калибровки выбирается на высоте 7–8 км.

Используя формулу (7), условие поиска лидарного отношения (8) можно записать в форме нелинейного уравнения относительно S_a:



Рис. 3. Зависимость аэрозольной оптической толщи от лидарного отношения и линия, соответствующая фотометрической AOD

Аэрозольная оптическая толща τ_a , рассматриваемая как функция лидарного отношения S_a и рассчитываемая для фиксированной точки калибровки по формуле (7), является некоторой слабо нелинейной монотонно возрастающей функцией и имеет типичный вид, представленный на рис. 3.

(9)

Задание АОD из фотометрических измерений и нахождение точки пересечения графика $\tau_a(z_0)$ с горизонтальной линией $\tau_a = k AOD$ дает значение лидарного отношения S_a и тем самым возмож-

Вестник КРСУ. 2011. Том 11. № 7

ное решение задачи совместной обработки данных лидарных и фотометрических измерений, что демонстрируется на рис. 3.

Рассмотренный метод сводит задачу определения лидарного отношения из совместной обработки к задаче нахождения решения некоторого нелинейного уравнения и не требует привлечения вариационного подхода. Гладкий и монотонный характер изменения зависимости $\tau_a(z_0)$ от лидарного отношения позволяет рассчитать ее в небольшом числе точек, аппроксимировать полиномом малого порядка (третьего или четвертого) от S_a и найти решение алгебраически.

2.2. Алгоритм расчета лидарного отношения

В применяемых в последнее время методиках совместной обработки лидарных и фотометрических данных, например, на Европейской лидарной сети EARLINET, используют алгоритм, предполагающий наличие данных солнечного фотометра CIMEL, включающих аэрозольную оптическую толщину и интегральный показатель обратного рассеяния [10]. Приведенные в статье данные получены с использованием портативной модели солнечного фотометра (Microtops II), который не обладает возможностью наблюдения солнечного ореола, однако имеет погрешность измерения спектральной AOD, сопоставимую с приборами CIMEL (± 0.02).

Схему совместной обработки данных лидарных и фотометрических измерений можно описать следующим пошаговым алгоритмом:

1. Проведение предварительной обработки лидарных измерений для выбора точки калибровки и калибровочного значения в области высот с минимальным содержанием аэрозоля на высотах 30–35 км или ниже тропопаузы (10–12 км), или выше слоя перемешивания.

2. Определение фотометрической аэрозольной оптической толщины *AOD*, соответствующей длинам волн лидара, по данным, синхронизированным по времени с лидарным измерением.

3. Расчет зависимости *AOD* от лидарного отношения в диапазоне значений S_a=10–80 и построение соответствующих графиков на каждой длине волны лидара.

4. Алгебраическое или графическое определение лидарного отношения как точки пересечения линий τ₂(z₀₂S₂) и *k* AOD для каждой длины волны лидара.

5. Восстановление уточненных оптических характеристик вдоль лидарной трассы с учетом полученных лидарных отношений на каждой длине волны зондирования.

В качестве примера на рис. 4 приведены результаты совместной обработки лидарных и фотометрических измерений за 5 апреля (a, b) и 25 октября 2009 г. (c, d).

Видно, что в условиях, близких к фоновым 25 октября 2009 г., разность между коэффициентами незначительная, а при наличии слоев (5 апреля 2009 г.) эта разница может быть существенной (до 25–30%), что связано с уменьшением величины S₂.

3. Методика восстановления коэффициента обратного рассеяния с использованием модели ступенчатого распределения лидарного отношения

Лидарное зондирование с использованием сигнала КР (λ =387 нм) позволяет восстановить оптические характеристики тропосферного аэрозоля на длине волны 355 нм, но при этом проблема восстановления на других длинах волн остается открытой. Необходимо учесть, что использование постоянного лидарного отношения является приближенным способом при восстановлении оптических характеристик даже при применении метода совместной обработки. Отметим также, что в тех случаях, когда в лидарном сигнале есть участки как с фоновым распределением аэрозоля, так и слои с выраженным неоднородным распределением $\beta_a(z)$ (или R(z)), особенно важно получить оценочные значения отношения между коэффициентами обратного рассеяния и ослабления. Как показывают численные расчеты, в подобных ситуациях восстановление характеристик методом Клетта с постоянным лидарным отношением приводит к значениям R < 1 (и, соответственно, $\beta_a < 0$) ниже слоя неоднородности при значениях лидарного отношения $S_a > S_{max}$. Значение S_{max} можно рассматривать как оценку лидарного отношения сверху. Так, для лидарных измерений 23 марта 2009 г. $S_{max} \approx 25 \ sr$, что иллюстрирует рис. 5, на котором совмещены поверхность $R(z, S_a)$ и плоскость R = 1.

Один из методов оценки лидарного отношения, используемый при расчете оптических характеристик перистых облаков, рассмотрен в работе [10]. В его основе лежит определение эффективного лидарного отношения, которое приводит к нулевому коэффициенту обратного рассеяния выше и ниже аэрозольного слоя. Используя данный подход, но несколько модифицировав его, можно предложить метод восстановления оптических характеристик, использующий ступенчатое распределение лидарного отношения. Подобное распределение S_a фактически отражает имеющиеся, как правило, различия



Рис. 4. Результаты совместной обработки лидарных (λ=532 нм) и фотометрических измерений 25 октября и 5 апреля 2009 г.:

а) и с) – восстановленные профили коэффициента обратного аэрозольного рассеяния при $S_a=31,6$ и при $S_a=26,0$ соответственно;

b) и d) – разность коэффициентов обратного аэрозольного рассеяния, рассчитанных при восстановленных значениях S и S = const=50

оптических и микрофизических свойств частиц пограничного слоя от аэрозольных слоев в свободной тропосфере [11]. При этом обработка данных, полученных в условиях явно выраженных тропосферных слоев, расположенных на высотах более 4,0 км и не примыкающих к РВL производится в соответствии со схемой, представленной на рис. 6. На схеме z_0 – точка калибровки, z_1 и z_2 – границы перехода к фоновым значениям аэрозоля. Лидарное отношение при $z > z_1$ и $z < z_2$, как и в [12], в расчетах принято равным 50, а значение S_a при $z_2 \le z \le z_1$ подлежит определению из условия равенства $R(z_2, S_a) = R(z_1, S_a)$. Лидарное уравнение решается от точки калибровки до нижней границы диапазона регистрации сигнала.

Расчет лидарного отношения реализован в виде алгоритма с элементами графической визуализации. Последовательность действий при этом следующая:

1. Задается точка калибровки z_0 и калибровочное значение R_0 .

1. Задается точка калиоровки z_0 и калиоровочное значение K_0 . 2. Задаются границы слоя неоднородности сигнала (z_1, z_2) . 3. На равномерной сетке $S_a = \{S_1, S_2, ..., S_n\}$ значений лидарного отношения рассчитывается набор профилей $R(z, S_k)$ k = 1, 2, ..., n. 4. Строится поверхность $R(z, S_a)$ и линия уровня R = const = 1. Минимум проекции этой ли-нии на плоскость (z, S_a) дает рассмотренную выше оценку сверху S_{max} . 5. Строится проекция линии уровня $\Delta R = 0$ для поля $\Delta R = R(z, S_a) - R(z_1, S_a)$ Пересечение этой линии с прямой $z = z_2$ дает искомое значение лидарного отношения, обеспечивающее равенство $R(z, S_a) = R(z, S_a)$ $R(z_2, S_a) = R(z_1, S_a) \; .$



Рис. 5. Распределение отношения рассеяния в пространстве переменных (z, S_a) Расчет

по данным лидарных измерений 23 марта 2009 г. на $\lambda{=}532$ нм



Рис. 6. Схема ступенчатого распределения лидарного отношения (сигнал по данным лидарных измерений от 23 марта 2009 г. на λ=532 нм)

Для иллюстрации метода ниже приведены результаты обработки лидарных измерений, выполненных 23 марта 2009 г. на λ=532 нм (рис. 7).



Рис. 7. *а* – изолинии полей: 1 – $R(z, S_a) = 1$; 2 – $R(z, S_a) - R(z_1, S_a) = 0$; δ – распределение отношения рассеяния (λ =532 нм) по данным лидарных измерений 23 марта 2009 г.

Сплошная линия – расчет по модели ступенчатого распределения лидарного отношения $(S_a = 19,1 \text{ в слое } 4,0-8,2 \text{ км})$, пунктирная линия – по модели однородного распределения $(S_a = 50)$

Особенно существенная разница между восстановленными оптическими характеристиками наблюдается в величинах коэффициента обратного аэрозольного рассеяния, которая может достигать 50% в области пограничного слоя (рис. 8).

4. Заключение

Рассмотрены два различных усовершенствованных метода восстановления профилей оптических характеристик аэрозоля по лидарным сигналам обратного упругого рассеяния.

Метод совместной обработки лидарных и фотометрических измерений основан на вычислении среднего значения лидарного отношения в слое атмосферы до точки калибровки и применяется для дневных измерений. Использование этого метода более оправдано при малых зенитных углах зондирования, соответствующих периоду времени максимума высоты солнца (± 1,5 часа), когда наблюдаемые солнечным фотометром и лидаром слои атмосферы различаются незначительно.

Вестник КРСУ. 2011. Том 11. № 7



Рис. 8. Распределение восстановленных отношения рассеяния и коэффициента обратного аэрозольного рассеяния по данным лидарных измерений 6 июня 2009 г. (λ =532 нм). S_a = 11,9.

Метод восстановления коэффициента обратного рассеяния с использованием модели ступенчатого распределения лидарного отношения не критичен ко времени проведения измерения и может успешно применяться при наличии на профилях явно выраженного участка неоднородности в свободной тропосфере со значениями отношения рассеяния порядка $R \approx 10$ и выше. Главное достоинство этого метода заключается в возможности использования сигнала обратного упругого рассеяния, который на несколько порядков больше, чем сигнал КР.

Литература

- 1. Ansmann, A., Wandinger, U., Riebesell, M., Weitkamp, C., and Michaelis, W.: Independent measurement of extinction and backscatter profiles in cirrus clouds by using a combined Raman elastic backscatter lidar, Appl. Opt., 31, 7113–7131, 1992.
- Muller D., Mattis I., Ansmann A., Wehner B., Althausen D., Wandinger U.: Closure study on optical and micro-2 physical properties of a mixed urban and Arctic haze air mass observed with Raman lidar and Sun photometer, J. Geophys. Res., Vol. 109, D13206, doi: 10.1029/2003JD004200, 2003.
- 3. Chaikovsky A., Ivanov A., Korol M., Slesar A., Denisov S., Osipenko F., Hutko I., Dubovik O., Holben B., Goloub Ph., Atmospheric participate matter variability in an industrial center from multi-wavelength lidar and Sun-sky radiometer measurements, Proc. of SPIE, Vol. 6160, 61601Y, 2006.
- 4. Pahlow M., Müller D., Tesche M., Eichler H., Feingold G., Eberhard W. and Cheng Y.-F., Retrieval of aerosol properties from combined multiwavelength lidar and sunphotometer measurements, Appl. Opt. 45(28): 7429-42, 2006.
- 5. Gobbi G. P., Barnaba F., and Ammannato L., The vertical distribution of aerosols, Saharan dust and cirrus clouds in Rome (Italy) in the year 2001, Atmos. Chem. Phys., 4, 351-359, 2004.
- Giannakaki E., Balis D. S., Amiridis V., Kazadzis S., Optical and geometrical characteristics of cirrus clouds 6. over a Southern European lidar station, Atmos. Chem. Phys., 7, 5519-5530, 2007.
- 7. Klett, J. D., Stable analytical solution for processing lidar returns, Appl. Opt., 20, 211–220, 1981.
- Fernald, F.G., Analysis of atmospheric lidar observations: Some comments, Appl. Opt., 23, 652–653, 1984. 8
- Klett, J. D., Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios, Appl. Opt., 24, 1638–1643, 1985. 9
- Chaikovsky A., et al., Project ISTC # B-1063. Final Project Technical Report, 2007.
 Amiridis V., Balis D.S., Kazadzis S., Bais A., and GiannakakiE.: Four-year aerosol observations with a Raman lidar at Thessalonik Greece, in the framework of European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET), J. Geophys. Res., Vol. 110, D21203, doi: 10.1029/2005JD006190, 2005.
- 12. Ferrare R.A., Turner D.D., Brasseur L.H., Feltz W.F., Dubovik O., and ToomanT.P. Raman lidar measurements of the aerosol extinction-to-backscatter ratio over the Southern Great Plains, J. Geophys. Res., Vol. 106, № D17, P. 20333-20347, 2001.