

О сравнении методов восстановления профиля двуокиси азота в атмосфере по многоугловым спектральным наземным измерениям

О. В. Постыляков¹, А. Н. Боровский¹, Д. Р. Шамсутдинов¹, А. И. Чуличков^{1,2}

¹ *Институт физики атмосферы им. А. М. Обухова РАН, Москва, 119017, Россия*
E-mail: oleg.postylyakov@gmail.com

² *Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, Москва, 119991, Россия*

Сравниваются возможные методы восстановления вертикального распределения (ВР) двуокиси азота (NO_2) в нижней тропосфере по данным многоугловых измерений методом дифференциальной спектроскопии MAX-DOAS (*англ.* multi-axis differential optical absorption spectroscopy). Вместе с традиционно используемыми линейными статистическими оценками рассматриваются нелинейные методы, которые ранее не применялись при решении данной задачи. Рассмотренные нелинейные методы (искусственных нейронных сетей и линейного программирования) позволяют использовать априорную информацию о положительности восстанавливаемого вертикального распределения и ожидаемом количестве экстремумов в профиле. Проведены численные эксперименты по сравнению результатов, полученных с использованием новых методов, с результатами, полученными методами линейного статистического оценивания. В предположении, что известна априорная функция распределения вертикального профиля NO_2 с использованием искусственных нейронных сетей получена оценка, которая имеет меньшую среднеквадратичную ошибку, чем оптимальная линейная оценка. Сравнение оценки оптимального статистического оценивания и оценки линейного программирования указывает на то, что предпочтительный метод восстановления (имеющий меньшую среднеквадратичную ошибку) зависит от шума измерения и самого восстанавливаемого ВР. В целом можно отметить, что при большом отношении сигнал/шум и расположении слоёв NO_2 на меньших высотах тропосферы метод линейного программирования показывает себя лучше, чем метод оптимальной статистической оценки. При ухудшении отношения сигнал/шум предпочтение переходит к методу оптимальной статистической оценки. Выбор приоритетного метода оценивания следует осуществлять для конкретных условий выполнения измерений и с учётом ожидаемой однородности ВР примеси.

Ключевые слова: MAX-DOAS, двуокись азота, аэрозоль, вертикальное распределение, оптимальная статистическая оценка, несмещённая линейная оценка, линейное программирование

Одобрена к печати: 24.02.2026

DOI: 10.21046/2070-7401-2026-23-4-377-389

Введение

Окислы азота ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$) — важные индикаторы антропогенного загрязнения воздуха, так как их главным источником в тропосфере является высокотемпературное горение топлива на объектах промышленности и транспорта (Chow et al., 2004). Приземная концентрация NO и NO_2 измеряется с использованием газоанализаторов и широко применяется при экологических исследованиях. Информация об интегральном содержании окислов азота и их вертикальном распределении (ВР) в нижней тропосфере используется для уточнения эмиссий загрязняющих веществ, верификации химико-транспортных моделей, а также для валидации данных дистанционного зондирования атмосферы (Груздев, Елохов, 2009; Chan et al., 2023; Compennolle et al., 2020; Dimitropoulou et al., 2020; Lange et al., 2024). Для получения информации о содержании NO_2 в толще атмосферы широкое распространение получили измерения методом дифференциальной спектроскопии DOAS (*англ.* differential optical absorption spectroscopy) (Platt, Stutz, 2008). Измерения спектров рассеянного в зените солнечного излучения в ультрафиолетовом и видимом диапазоне методом DOAS позволяют восстанавливать интегральное содержание NO_2 и формальдегида (H_2CO) в нижней тропосфере в ясных условиях (Иванов и др., 2012) и в условиях сплошной облачности (Ivanov et al., 2017; Postylyakov et al., 2015).

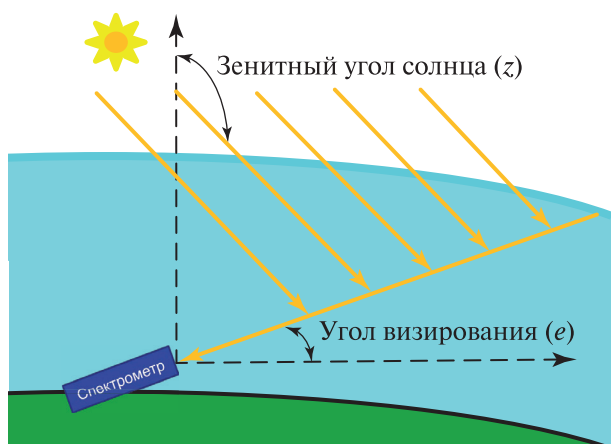


Рис. 1. Схема измерений методом MAX-DOAS. Спектры рассеянного солнечного излучения измеряются последовательно под разными углами визирования e

тельность к содержанию примеси в нижней тропосфере. Серия измерений, проведённых под несколькими углами, несёт информацию о вертикальном распределении примеси в нижней тропосфере (Frieß et al., 2019; Platt, Stutz, 2008; Tirpitz et al., 2021). В настоящее время разрабатываются процедуры стандартизации и контроля качества этих измерений (Van Roozendaal et al., 2024).

Измерения методом DOAS и MAX-DOAS проводятся на научных стационарах Института физики атмосферы им. А. М. Обухова РАН (ИФА РАН): в Москве, на Звенигородской научной станции (Московская обл.) и на Северном Кавказе (г. Кисловодск и Кисловодская высокогорная научная станция) (Иванов и др., 2012; Kanaya et al., 2014; Postlyakov et al., 2015). В ИФА РАН разрабатываются методы восстановления интегрального содержания и ВР малых примесей в нижней тропосфере.

Проводившаяся в 2016 г. международная кампания CINDI-2 (англ. Cabauw INtercomparison of UV-Vis DOAS Instruments) по сравнению приборов и методов MAX-DOAS измерений показала, что большинство групп для восстановления ВР примесей используют метод оптимального статистического оценивания (Frieß et al., 2019; Tirpitz et al., 2021). Эта же тенденция сохранилась и в последующих работах (Castelli et al., 2025; Lange et al., 2024; Van Roozendaal et al., 2024) и сравнениях CINDI-3 (<https://ruisdael-observatory.nl/cindi3/>). В настоящем исследовании выполнено краткое сравнение нескольких нелинейных методов восстановления ВР NO_2 в атмосфере по данным измерений MAX-DOAS с методом оптимального статистического оценивания.

Модель измерения содержания примесей атмосферы методом MAX-DOAS

Рассмотрим задачу оценки профиля концентрации NO_2 . В результате первого этапа обработки спектральных измерений MAX-DOAS получают набор содержания NO_2 в наклонном столбе атмосферы (Иванов и др., 2012) при углах визирования e_i , $i = 1, \dots, m$:

$$\xi_{\text{NO}_2}(e_i) = \int_0^H m_{\text{aer}}(h, e_i) n_{\text{NO}_2}(h) dh + v_i^{\text{NO}_2}(e_i), \quad (1)$$

искажённых шумом $v_i^{\text{NO}_2}(e_i)$, где e_i — угол визирования; H — высота слоя NO_2 ; $m_{\text{aer}}(h, e_i)$ — эффективная воздушная масса слоя на высоте h (Постыляков, 2004); $n_{\text{NO}_2}(h)$ — искомое ВР NO_2 в атмосфере. Значения $m_{\text{aer}}(h, e_i)$ рассчитываются с использованием модели переноса излучения (Постыляков, 2004). Для проведения вычислений необходимо задать альбедо подстилающей поверхности и оптические характеристики атмосферы, такие как вертикальное распределение экстинкции аэрозоля и его индикатрису рассеяния. Вопрос влияния альбедо

на точность восстановления интегрального содержания NO_2 рассмотрен в работе В. А. Иванова и О. В. Постылякова (2010). Для восстановления вертикального распределения экстинкции аэрозоля в методе MAX-DOAS используется набор измерений наклонного содержания столкновительного комплекса $\text{O}_2\text{--O}_2$, аналогичный набору измерений (1):

$$\xi_{\text{O}_4}(e_i) = \int_0^H m_{\text{aer}}(h, e_i) n_{\text{O}_4}(h) dh + v_i^{\text{O}_4}(e_i). \quad (2)$$

В отличие от выражения (1), в соотношении (2) неизвестными являются характеристики аэрозоля, которые влияют на расчёт $m_{\text{aer}}(h, e_i)$, а $n_{\text{O}_4}(h)$ — известное вертикальное распределение содержания $\text{O}_2\text{--O}_2$. В настоящей работе рассматриваются методы восстановления ВР NO_2 по набору измерений (1), а разработка методов восстановления характеристик аэрозоля планируется в отдельном исследовании. Здесь мы предполагаем, что альbedo и оптические характеристики аэрозоля известны и сосредотачиваемся на изучении погрешностей ВР NO_2 , связанных со случайным шумом измерения $v_i^{\text{NO}_2}(e_i)$.

После дискретизации выражение (1) можно записать в матричном виде:

$$\xi = \mathbf{Mn} + v, \quad (3)$$

где ξ , $\mathbf{Mn}$, v — векторы размерностью m ; v — случайный шум измерений; $\mathbf{M}$ — матрица $m \times N$, которая переводит вектор $\mathbf{n}$ концентрации NO_2 размерности N , $\mathbf{n} = (n(h_1), \dots, n(h_N))^T$, в вектор $\mathbf{Mn}$.

Методы восстановления вертикального распределения NO_2

Оценивание вертикального распределения NO_2 при известной функции его априорного статистического распределения

Рассмотрим возможные подходы к оцениванию ВР NO_2 $\mathbf{n}$ в рамках математической модели, в которой векторы $\mathbf{n}$ и v являются случайными векторами и известны их функции распределения.

Задача ставится как задача оптимального статистического оценивания — поиска версии $\hat{\mathbf{R}}(\xi)$ вектора $\mathbf{n}$ концентрации NO_2 в среднеквадратичном наименее отличающейся от $\mathbf{n}$:

$$E \|\hat{\mathbf{R}}(\xi) - \mathbf{n}\|_2^2 = \inf_{\mathbf{R}} \left\{ E \|\mathbf{R}(\xi) - \mathbf{n}\|_2^2 \mid \mathbf{R} \in \mathbb{R} \right\}.$$

В общем случае оптимальный алгоритм ищется среди всех алгоритмов, включая нелинейные (E — знак математического ожидания). В этом случае оптимальная статистическая оценка (ОСО) задаётся формулой Байеса для условного среднего:

$$\hat{\mathbf{R}}(\xi) = E(\mathbf{n} \mid \xi). \quad (4)$$

В частном случае, когда векторы $\mathbf{n}$ и v независимы и нормально распределены: $\mathbf{n} \sim \mathcal{N}(\mathbf{n}_0, \mathbf{F})$ и $v \sim \mathcal{N}(0, \Sigma)$, выражение (4) приводится к виду

$$\hat{\mathbf{R}}(\xi) = \mathbf{FM}^* (\mathbf{FM}^* + \Sigma)^{-1} (\xi - \mathbf{Mn}_0) + \mathbf{n}_0. \quad (5)$$

Однако в общем случае расчёт по формуле (4) требует объёмных вычислений и по этой причине редко используется. Нахождение наилучшего алгоритма в классе всех оценок в этом случае часто заменяют на нахождение оптимальной оценки в классе линейных оценок $\mathbf{R}(\xi) = \mathbf{R}\xi + \mathbf{r}$, где $\mathbf{R}$ — матрица $N \times m$ ($\mathbf{R} \in \mathcal{L}_2(\mathcal{R}_N \rightarrow \mathcal{R}_m)$); $\mathbf{r}$ — вектор размерности m ($\mathbf{r} \in \mathcal{R}_m$) и:

$$E \|\hat{\mathbf{R}}\xi + \hat{\mathbf{r}} - \mathbf{n}\|_2^2 = \inf_{\mathbf{R}, \mathbf{r}} \left\{ E \|\mathbf{R}\xi + \mathbf{r} - \mathbf{n}\|_2^2 \mid \mathbf{R} \in \mathcal{L}_2(\mathcal{R}_N \rightarrow \mathcal{R}_m), \mathbf{r} \in \mathcal{R}_m \right\}. \quad (6)$$

Для нахождения линейной оценки (6) достаточно знать первые два момента распределения векторов $\mathbf{n}$ и v , $\mathbf{n} \sim (\mathbf{n}_0, \mathbf{F})$, $v \sim (0, \Sigma)$, $\mathbf{n}$ и v — независимы. Решением этой задачи на минимизацию погрешности оценивания является линейное преобразование

$$\hat{\mathbf{R}}\xi + \hat{\mathbf{r}} = \mathbf{F}\mathbf{M}^*(\mathbf{M}\mathbf{F}\mathbf{M}^* + \Sigma)^{-1}(\xi - \mathbf{M}\mathbf{n}_0) + \mathbf{n}_0. \quad (7)$$

Как видно из выражений (5) и (7), в случае нормального распределения векторов $\mathbf{n}$ и $\mathbf{v}$ оптимальная линейная оценка оказывается наилучшей в классе всех оценок $\mathbb{R}$. Отсюда также следует, что если $\mathbf{n}$ и $\mathbf{v}$ не являются нормально распределёнными, то может существовать нелинейная оценка (4), которая оценивает $\mathbf{n}$ лучше, чем выражение (7). Далее мы рассмотрим построение лучшей, чем линейная, оценки с помощью искусственной нейронной сети (ИНС). Методы искусственного интеллекта, включая ИНС, в последнее время находят своё место при интерпретации данных дистанционного зондирования благодаря быстрому развитию используемых в них специализированных процессоров (Kazanskiy et al., 2025).

Как для построения функции случайного распределения ВР NO_2 в тропосфере, так и для построения обучающей выборки ИНС необходимы большие наборы прямых измерений, например, с использованием баллонов или лидаров. К сожалению, таких измерений для NO_2 проведено недостаточно для того, чтобы оценить второй момент распределения $\mathbf{F}$. Поэтому многие исследовательские группы строят алгоритм восстановления в предположении о корреляции между значениями концентрации примеси на высотах h_i и h_j , задаваемом как

$$F_{ij} \sim \exp\left(-|h_i - h_j|/h_o\right) \quad (8)$$

или

$$F_{ij} \sim \exp\left[-\left((h_i - h_j)/h_o\right)^2\right].$$

Однако выбор параметра модели (высоты h_o), который влияет на радиус корреляции содержания на двух высотах, достаточно произволен и меняется у различных исследовательских групп от 60 до 500 м. В этом заключается одна из причин различия восстанавливаемого ВР NO_2 , получаемого разными исследовательскими группами. Возможные подходы к оцениванию ВР NO_2 $\mathbf{n}$ без использования такой информации мы рассмотрим в следующем разделе.

В этом разделе мы сравним оценивание ВР NO_2 $\mathbf{n}$ с использованием оценки (7) и ИНС в двух численных экспериментах, различающихся априорной функцией распределения ВР NO_2 . В обоих случаях векторы $\mathbf{n}$ и $\mathbf{v}$ были независимы, а матрица корреляций вектора шума $\mathbf{v}$ была диагональной $\Sigma = \sigma^2 \mathbf{I}$. Для наборов случайно сгенерированных ВР NO_2 рассчитывалось наклонное содержание, искажённое случайным шумом. Полученные пары ВР NO_2 $\mathbf{n}$ и модельного измерения ξ (формула (3)) использовались для обучения ИНС и оценивания погрешности восстановления методов оптимального статистического оценивания и ИНС.

Для решения задачи восстановления ВР $\mathbf{n}$ была использована ИНС с архитектурой Residual MLP (англ. Residual Multi-Layer Perceptron) (Shafiq, Gu, 2022). Модель состоит из следующих компонентов:

- входного полносвязного слоя: преобразует 9 входных признаков в пространство размерности 256;
- последовательности из 5 остаточных блоков;
- выходного полносвязного слоя: проецирует вектор признаков (англ. features) размерности 256 в 46 целевых значений (англ. targets) по числу значений высоты.

Использование пропускающих соединений (англ. skip-connections) позволяет избежать проблемы исчезающего градиента и способствует обучению более глубоких сетей.

Обучение модели проводилось с использованием следующих гиперпараметров:

- Функция потерь: среднеквадратическая ошибка MSE (англ. Mean Squared Error).
- Оптимизатор: адаптивный метод с отдельным затуханием весов (AdamW) со скоростью обучения (англ. learning rate) $\eta = 0,002$ и параметром L2-регуляризации (англ. weight decay) 10^{-4} (Kingma, Ba, 2014).
- Размер пакета (англ. batch size): 128.
- Количество эпох: 750.
- Регуляризация: метод отсева (англ. dropout) с вероятностью отключения 0,2.

Для оценки качества модели на тестовой выборке использовались метрики: средняя квадратическая ошибка MSE, корень из средней квадратической ошибки RMSE (англ. Root Mean Squared Error) и коэффициент детерминации R^2 . Исходные данные были разделены на обучающую и тестовую выборки в соотношении 85 к 15 % соответственно.

В первом численном эксперименте случайное распределение $BP\ NO_2\ \mathbf{n}$, использованное для генерации обучающей выборки ИНС, было нормальным с матрицей ковариаций, задаваемой выражением (8) при $h_0 = 200$ м. Заметим, что такое распределение $\mathbf{n}$ не физично, поскольку концентрация может принимать отрицательные значения. Полученная в этом численном эксперименте среднеквадратическая погрешность восстановления методов оптимального статистического оценивания (4) и ИНС совпала и была равна теоретически предсказываемой для наилучшей оценки. Это согласуется с тем, что линейная оценка (7) в этом случае совпадает с байесовской оценкой (4) и не может быть улучшена.

Во втором численном эксперименте случайным образом был сформирован набор значений BP , принимающих только положительные значения. Количество экстремумов в профилях определялось случайным образом: один максимум имели 75 % профилей, а два максимума и один минимум — 25 %; положения экстремумов были случайным образом равномерно распределены по высоте; значения производной профиля генерировались случайным образом, а её знак выбирался с учётом типа соседних экстремумов. Средний профиль NO_2 и диагональные элементы матрицы ковариаций набора $BP\ NO_2$, сгенерированного таким образом, показаны на рис. 2а. Полученная в этом численном эксперименте среднеквадратическая погрешность восстановления методов линейного статистического оценивания (7) и ИНС в зависимости от дисперсии шума измерения σ^2 показаны на рис. 2б. Как видно, метод ИНС имеет большую точность, чем обычно используемая линейная оценка.

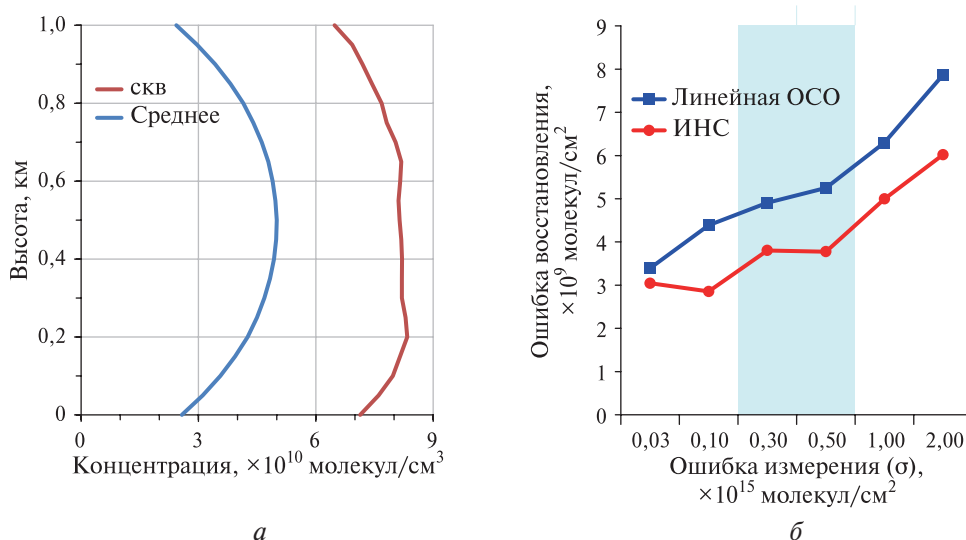


Рис. 2. Средний профиль NO_2 и диагональные элементы матрицы ковариаций (на рисунке обозначены «скв») набора $BP\ NO_2$, построенных для второго численного эксперимента (а). Среднеквадратическая погрешность восстановления линейной ОСО и ИНС (б). Голубым цветом закрашена область типичных ошибок измерения наклонного содержания NO_2

Оценивание вертикального распределения NO_2 в отсутствии статистической информации о его распределении

Для случаев, когда отсутствует статистическая информация о $BP\ NO_2$, мы сравнили два подхода.

Можно построить линейную оценку $\bar{R}\xi + \bar{r}$, которая даёт наиболее точную версию профиля Un и является решением задачи на минимизацию средней ошибки при условии несмещённости её среднего:

$$E\|\bar{\mathbf{R}}\xi + \bar{\mathbf{r}} - \mathbf{U}\mathbf{n}\|_2^2 = \inf_{\mathbf{R}, \mathbf{r}} \left\{ E\|\mathbf{R}\xi + \mathbf{r} - \mathbf{U}\mathbf{n}\|_2^2 \mid \mathbf{R} \in \mathcal{L}_2(\mathcal{R}_N \rightarrow \mathcal{R}_m), \mathbf{r} \in \mathcal{R}_m, \forall \mathbf{n} : E(\mathbf{R}\xi + \mathbf{r}) = \mathbf{U}\mathbf{n} \right\}. \quad (9)$$

Линейный оператор $\mathbf{U}$ может описывать, например, желаемое разрешение по высоте. Решение задачи (9) — несмещённая линейная оценка (НЛО) — задаётся выражением

$$\bar{\mathbf{R}}\xi = \mathbf{U}\mathbf{M}^*(\mathbf{M}\mathbf{M}^* + \Sigma)^{-1}\xi, \mathbf{r} = 0. \quad (10)$$

Однако этот метод обычно имеет большую случайную погрешность, чем оценка вектора $\mathbf{U}\mathbf{n}$ со смещением.

Для того чтобы избежать значительного увеличения ошибки при использовании метода НЛО (10), мы рассмотрели и исследовали второй подход к алгоритму восстановления ВР примеси по данным измерений MAX-DOAS. Этот подход состоит в существенном сужении класса возможных вертикальных распределений NO_2 на основе предположения о количестве экстремумов в восстанавливаемом ВР NO_2 . Например, в утренние часы, когда высока вероятность температурных инверсий, можно предположить наличие нескольких максимумов в ВР примеси. После установления конвективного перемешивания более вероятно, что ВР NO_2 имеет один максимум. Такие формы ВР NO_2 подтверждаются баллонными измерениями (см., например, (Pisano et al., 1997)). Априорная информация о количестве максимумов в ВР может быть уточнена с использованием, например, измерений температурного профилемера по обнаруживаемым температурным инверсиям. Кроме этого, мы используем априорную информацию о положительности ВР NO_2 .

Предположим, что ВР примеси является унимодальной функцией (имеет один максимум). Это означает, что $n(h)$ не уменьшается в интервале от поверхности Земли до некоторой высоты h_c и не увеличивается в интервале от h_c до H . Тогда для вектора $\mathbf{n}$ справедливы неравенства $n_1 \leq \dots \leq n_c$ и $n_c \geq \dots \geq n_N$ ($n_c = n(h_c)$). Для оценки вектора $\mathbf{n}$ решим задачу на минимум:

$$\min_c \left\{ \inf_{\mathbf{n}} \left\{ \|\xi - \mathbf{M}\mathbf{n}\| \mid \mathbf{n} : 0 \leq n_1 \leq \dots \leq n_c, n_c \geq \dots \geq n_N \geq 0 \right\} \mid c : 1 \leq c \leq N \right\}, \quad (11)$$

где $\|\mathbf{x}\|$ — норма вектора $\mathbf{x}$ размерности m : $\|\mathbf{x}\| = \max\{|x_i|, 1 \leq i \leq m\}$. Для фиксированного положения максимума концентрации примеси h_c задача на минимизацию (11) сводится к задаче линейного программирования (ЛП) (см., например, работы (Васильев, 2011; Юань, Чуличков, 2015)). Минимизация по c проводится перебором $c = 1, \dots, N$.

Кроме ограничений на количество максимумов в профиле к задаче ЛП можно свести априорную информацию об ограничениях на производную ВР примеси (приращения концентрации между слоями).

Проверить согласие предположения об унимодальности профиля концентрации NO_2 с результатом измерения можно, если известны ограничения на координаты v_i погрешности измерения. При условии, что $v_i \leq \varepsilon$, то ВР, полученное минимизацией (11), не противоречит результатам измерений, когда значение минимума (11) не превышает ε . Если это условие не выполняется, модель может быть усложнена предположением, что ВР примеси имеет два максимума и один минимум.

Численные эксперименты по сравнению методов восстановления вертикального распределения NO_2

Сравним в численных экспериментах результаты оценки ВР NO_2 , получаемые методом оптимальной статистической оценки (7) с параметризацией (8) и методом линейного программирования (11) на некоторых примерах. На рис. 3–5 (см. с. 383–385) приведены примеры восстановления ВР NO_2 в численных экспериментах. В качестве исходных синтетических ВР NO_2 использовалось распределение примеси с двумя слоями. При экспериментах варьировалась толщина слоёв и содержание примеси в них. Для каждого синтетического ВР NO_2 реше-

нием прямой задачи получена серия содержания NO_2 в наклонном столбе атмосферы, каждое из которых соответствует одному из направлений визирования (0° ; 10° ; 20° ; 30° ; 40° ; 50° ; 60° ; 70° ; 75° ; 80° ; 82° ; 84° ; 85° ; 86° ; 87° ; 88° ; 89° ; $89,3^\circ$; $89,6^\circ$; $89,8^\circ$; $89,9^\circ$). Прямая задача решалась с использованием линеаризованной модели переноса излучения в сферически симметричной атмосфере МСС++ (Постыляков, 2004). Таким образом, для каждого синтетического профиля была получена серия содержаний NO_2 в наклонном столбе атмосферы. Данные каждой серии искажались случайным шумом с дисперсией $\sigma^2 = (0,3 \cdot 10^{15} \text{ молекул/см}^2)^2$, характерной для многоугловых измерений. Всего для каждой серии разыгрывалось 100 реализаций добавляемого случайного шума. Восстановление ВР NO_2 проводилось методами оптимального статистического оценивания и линейного программирования для каждой из реализаций и рассчитывалось среднее восстановленное ВР и ВР среднеквадратичного отклонения восстановленного ВР от истинного $\delta(h)$. Расчёты выполнены для длин волн вблизи 450 нм, зенитного угла Солнца 40° , альбедо подстилающей поверхности 5 %.

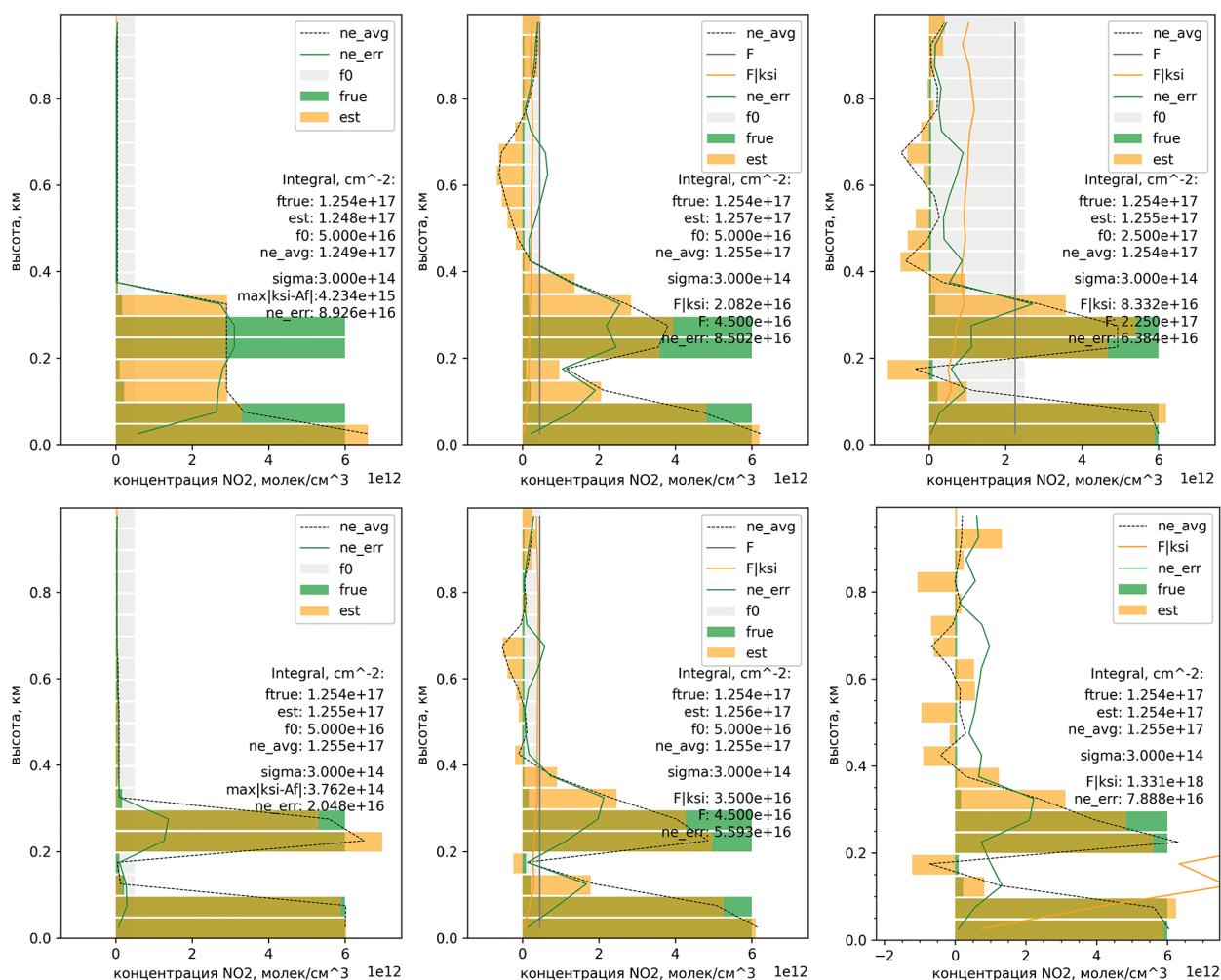


Рис. 3. Пример восстановления ВР NO_2 с двумя слоями толщиной 100 м, расположенными на высотах от 0 до 300 м, при погрешности измерения содержания NO_2 в наклонном столбе атмосферы $\sigma = 0,3 \cdot 10^{15} \text{ молекул/см}^2$. Исходное ВР показано зелёными столбиками (frue), результат восстановления при одной реализации шума — жёлтыми (est), профиль априорного среднего содержания NO_2 — серые столбиками (f_0). Методы восстановления: левый столбец — ЛП с одним максимумом (сверху), ЛП с двумя максимумами (снизу); средний столбец — ОСО с $h_0 = 200$ м и априорным средним NO_2 $0,5 \cdot 10^{12} \text{ молекул/см}^3$, ОСО с $h_0 = 25$ м и априорным средним NO_2 $0,5 \cdot 10^{12} \text{ молекул/см}^3$; правый столбец — ОСО с $h_0 = 200$ м и априорным средним NO_2 $2,5 \cdot 10^{12} \text{ молекул/см}^3$, НЛО. Чёрная пунктирная линия (ne_avg) — средний восстановленный профиль по 100 реализациям шума, зелёная сплошная линия (ne_err) — профиль среднеквадратичного отклонения восстановленного профиля от истинного

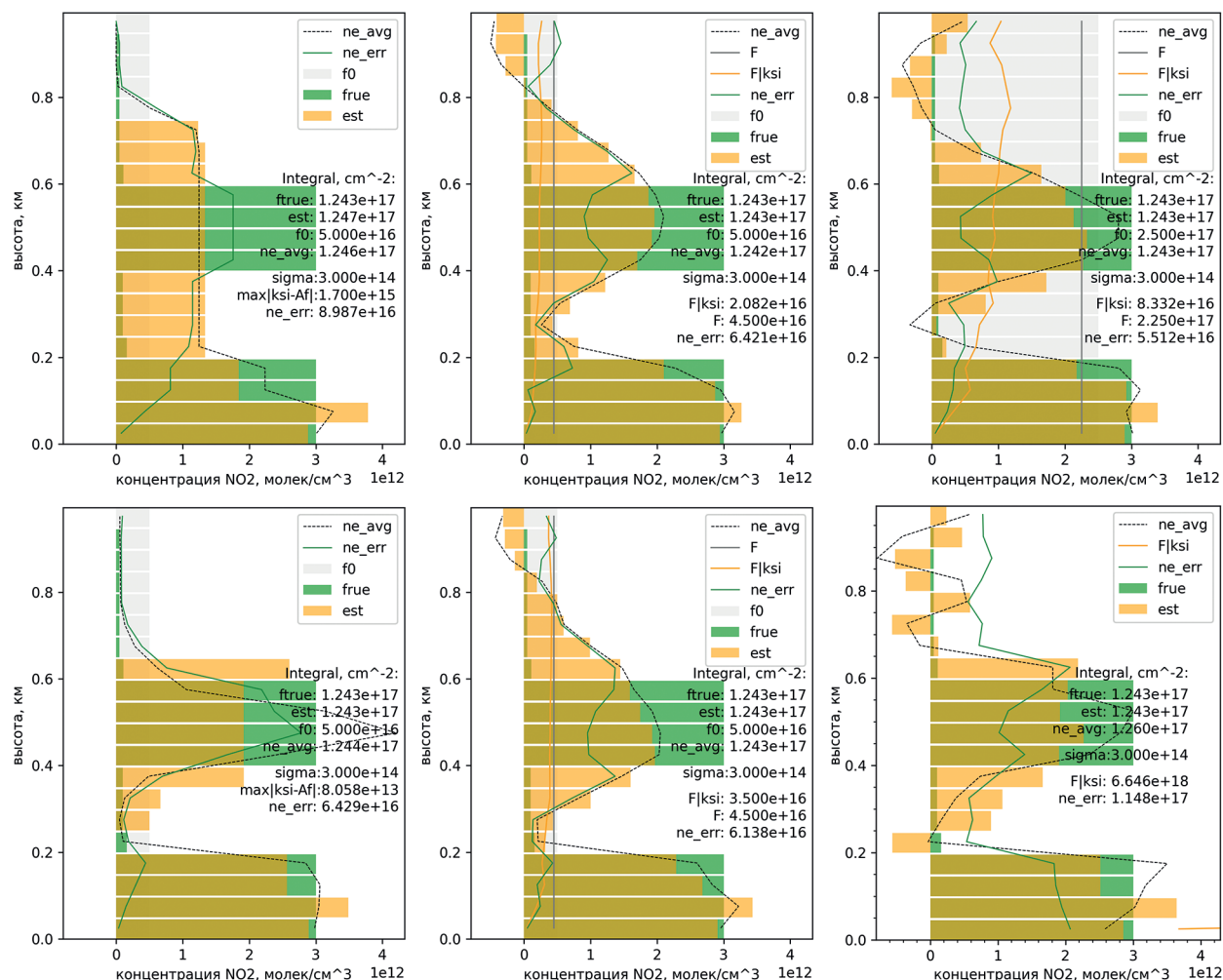


Рис. 4. То же, что на рис. 3, но для профиля NO_2 с двумя слоями толщиной 200 м каждый, расположенными на высотах от 0 до 600 м

В численных экспериментах, представленных на рис. 3 и 4, интегральное содержание NO_2 высокое и составляет примерно $125 \cdot 10^{15}$ молекул/см². Такое содержание может наблюдаться в крупных городах и вблизи крупных промышленных объектов. На рис. 5 содержание NO_2 на порядок меньше, около $16 \cdot 10^{15}$ молекул/см². Из приведённых примеров можно отметить, что возможность восстановления слоёв в профилях, а также ошибка восстановления для рассматриваемых методов зависят как от отношения сигнал/шум, так и от высоты слоёв. Видно, что увеличение отношения сигнал/шум ведёт к уменьшению ошибок, а более высоко расположенные слои восстанавливаются хуже всеми методами.

Сравниваемые методы восстановления являются оптимальными с точки зрения минимизации различающихся критериев. Для их количественного сравнения на основе одного общего критерия рассмотрим суммарную ошибку восстановления:

$$\delta = \sqrt{\int \delta^2(h) dh}.$$

Зависимость ошибки восстановления δ от погрешности измерения σ для профилей, показанных на рис. 3–5, приведена на рис. 6 (см. с. 386).

Для профиля с большим содержанием NO_2 и низким расположением слоёв (см. рис. 3) минимальную ошибку восстановления δ при всех рассмотренных погрешностях измерения $0,03 \cdot 10^{15}$ молекул/см² $\leq \sigma \leq 2 \cdot 10^{15}$ молекул/см² даёт метод ЛП с двумя возможными максимумами (см. рис. 6а).

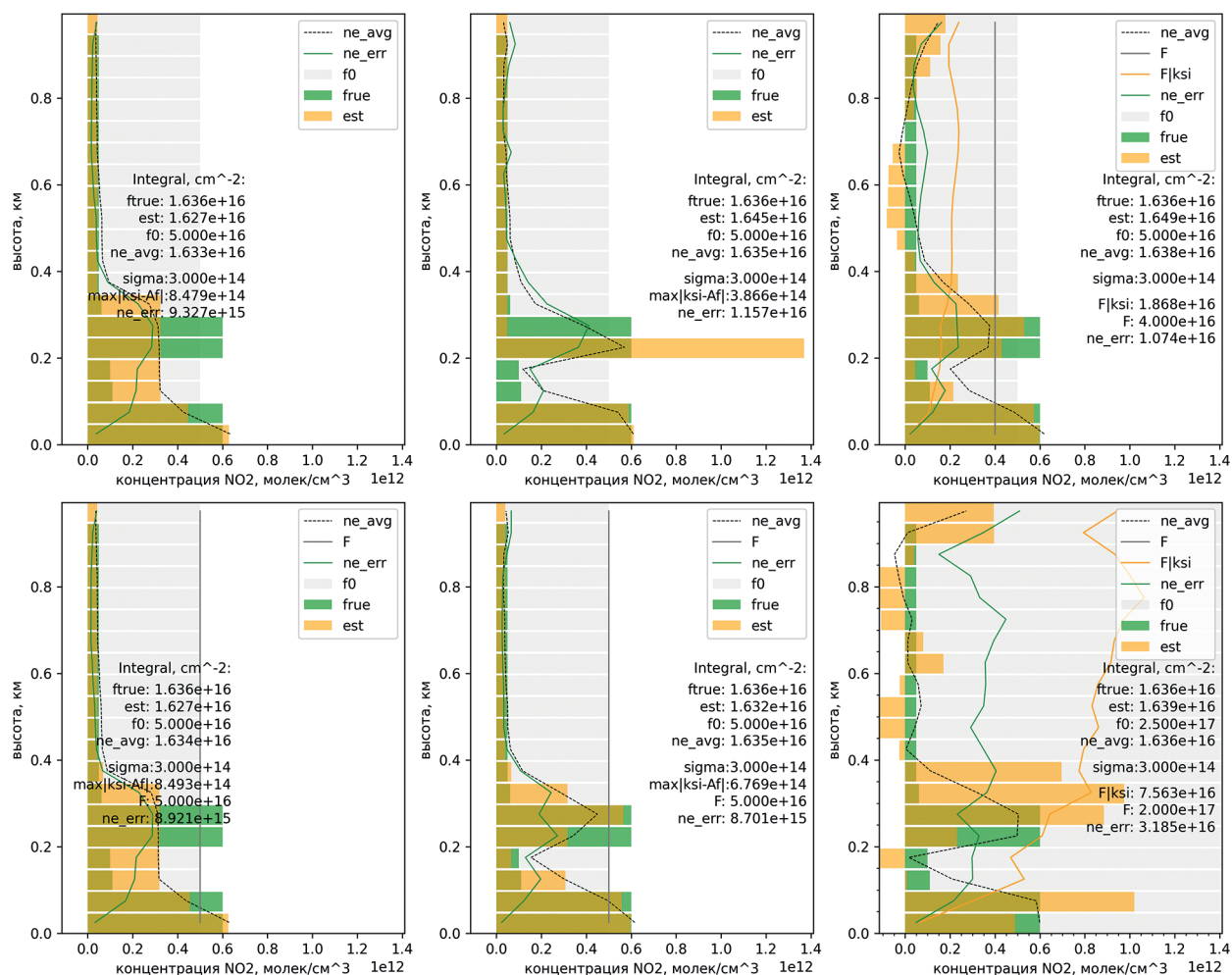


Рис. 5. То же, что на рис. 3, но для профиля NO₂ с меньшей амплитудой изменения содержания примеси, а также показаны другие методы восстановления. Методы восстановления: левый столбец — ЛП с одним максимумом (*сверху*), ЛП с одним максимумом и дополнительным ограничением приращения концентрации между слоями (*снизу*); средний столбец — ЛП с двумя максимумами, ЛП с двумя максимумами и дополнительным ограничением приращения концентрации между слоями; правый столбец — ЛП с двумя максимумами, ЛП с двумя максимумами и дополнительным ограничением приращения концентрации между слоями, ОСО с $h_0 = 20$ м и априорным средним NO₂ $2,5 \cdot 10^{12}$ молекул/см³. Чёрная пунктирная линия (ne_avg) — средний восстановленный профиль по 100 реализациям шума, зелёная сплошная линия (ne_err) — профиль среднеквадратичного отклонения восстановленного профиля от истинного

При более высоком расположении более толстых слоёв (см. рис. 4) близкие ошибки δ при рассмотренных точностях измерения σ дают три варианта ОСО (см. рис. 6б). Заметим, что ошибка δ метода НЛО в основном превышает ошибки других методов и быстро растёт с увеличением погрешности измерения σ . Привлечение априорной информации о положительности профиля и количестве максимумов в методе ЛП приводит к существенному повышению точности восстановления. Для профиля с меньшим содержанием NO₂ (см. рис. 5) лучшим оказывается метод ЛП с одним максимумом (см. рис. 6в). Заметим, что такое ограничение метода не позволяет ему восстановить оба слоя в принципе. На рис. 6 также показаны результаты для методов ЛП с дополнительным ограничением приращения концентрации между слоями. В данном случае они несколько улучшают результаты для метода ЛП с двумя максимумами. Из-за больших ошибок результаты метода НЛО на рис. 6в не показаны.

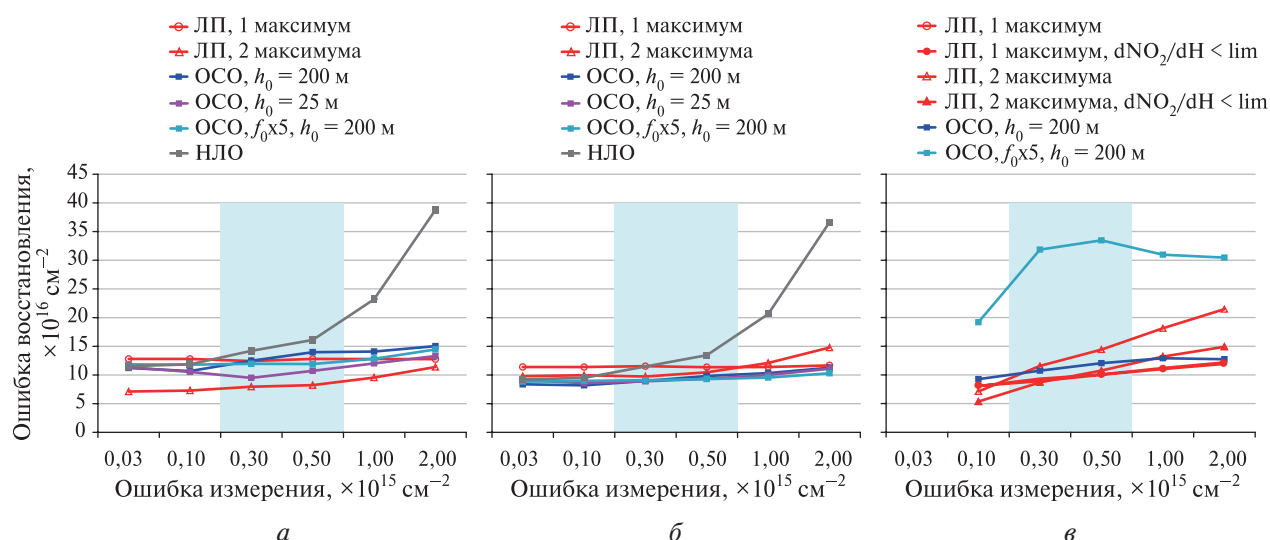


Рис. 6. Зависимость ошибки восстановления профиля δ от ошибки измерения. Голубым закрашена область типичных ошибок измерения наклонного содержания. Результаты приведены для профилей, показанных на рис. 3 (а), 4 (б) и 5 (в). h_0 — параметр h_0 равенства (8), $f_0 \times 5$ — ОСО с априорным средним NO_2 , равным $2,5 \cdot 10^{12}$ молекул/см³, для остальных ОСО априорное среднее NO_2 равно $0,5 \cdot 10^{12}$ молекул/см³

Заключение

В работе рассмотрены возможные методы восстановления вертикального распределения двуокиси азота в нижней тропосфере по данным измерений MAX-DOAS. Вместе с традиционно используемыми линейными статистическими оценками рассматриваются нелинейные методы, которые ранее не применялись при решении данной задачи. Рассмотренные нелинейные методы (искусственных нейронных сетей и линейного программирования) позволяют использовать априорную информацию о положительности восстанавливаемого ВР и ожидаемом количестве экстремумов в профиле. Проведены численные эксперименты по сравнению результатов, полученных с применением новых методов, с результатами, полученными методами линейного статистического оценивания.

В предположении, что известна априорная функция распределения ВР NO_2 и она отлична от многомерного нормального распределения, с использованием ИНС получена оценка, которая имеет меньшую среднеквадратичную ошибку, чем оптимальная линейная оценка.

Сравнение обычно используемой при интерпретации измерений MAX-DOAS оценки оптимального статистического оценивания и оценки линейного программирования указывает на то, что предпочтительный метод восстановления (имеющий меньшую среднеквадратичную ошибку) зависит от шума измерения и самого восстанавливаемого ВР. В целом можно отметить, что при большом отношении сигнал/шум и расположении слоёв NO_2 на меньших высотах тропосферы метод линейного программирования показывает себя лучше, чем метод оптимальной статистической оценки. При ухудшении отношения сигнал/шум предпочтение переходит к методу оптимальной статистической оценки. Выбор приоритетного метода оценивания следует осуществлять для конкретных условий выполнения измерений и с учётом ожидаемой однородности ВР примеси.

Работа выполнена за счёт средств государственных заданий ИФА им. А. М. Обухова РАН, регистрационный номер темы 1022041800069-7-1.5.9, и МГУ имени М. В. Ломоносова.

Литература

1. Васильев Ф. П. Методы оптимизации. В 2-х кн. Новое изд., перераб. и доп. М.: МЦНМО, 2011. 1056 с.
2. Груздев А. Н., Елохов А. С. Валидация результатов измерений содержания NO_2 в вертикальном столбе атмосферы с помощью прибора ОМІ с борта спутника EOS-Aura по результатам наземных измерений на Звенигородской научной станции // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2009. Т. 45. № 4. С. 477–488.
3. Иванов В. А., Постыляков О. В. Оценка интегрального содержания NO_2 в пограничном слое атмосферы по наблюдениям рассеянной в зените солнечной радиации // Оптика атмосферы и океана. 2010. Т. 23. № 6. С. 471–475.
4. Иванов В. А., Елохов А. С., Постыляков О. В. О возможности оценки объема выбросов NO_2 в городах по зенитным спектральным наблюдениям рассеянной солнечной радиации вблизи 450 нм // Оптика атмосферы и океана. 2012. Т. 25. № 6. С. 544–549.
5. Постыляков О. В. Модель переноса радиации в сферической атмосфере с расчетом послойных воздушных масс и некоторые ее приложения // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2004. Т. 40. № 3. С. 314–329.
6. Юань Б., Чулицков А. И. Об оценке максимальной возможности параметров модели измерений // Вестн. Московского ун-та. Сер. 3: Физика, астрономия. 2015. № 5. С. 24–32.
7. Castelli E., Pettinari P., Papandrea E. et al. Towards a new MAX-DOAS measurement site in the Po Valley: Aerosol optical depth and NO_2 tropospheric VCDs // Remote Sensing. 2025. V. 17. Article 1035. DOI: 10.3390/rs17061035.
8. Chan K. L., Valks P., Heue K.-P. et al. Global Ozone Monitoring Experiment-2 (GOME-2) daily and monthly level-3 products of atmospheric trace gas columns // Earth System Science Data. 2023. No. 15. P. 1831–1870. DOI: 10.5194/essd-15-1831-2023.
9. Chow J. C., Watson J. G., Shah J. J. et al. Megacities and atmospheric pollution // J. Air and Waste Management Association. 2004. V. 54. No. 10. P. 1226–1235. DOI: 10.1080/10473289.2004.10470995.
10. Compernelle S., Verhoelst T., Pinardi G. et al. Validation of Aura-OMI QA4ECV NO_2 climate data records with ground-based DOAS networks: the role of measurement and comparison uncertainties // Atmospheric Chemistry and Physics. 2020. V. 20. Iss. 13. P. 8017–8045. DOI: 10.5194/acp-20-8017-2020.
11. Dimitropoulou E., Hendrick F., Pinardi G. et al. Validation of TROPOMI tropospheric NO_2 columns using dual-scan multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) measurements in Uccle, Brussels // Atmospheric Measurement Techniques. 2020. V. 13. Iss. 10. P. 5165–5191. DOI: 10.5194/amt-13-5165-2020.
12. Frieß U., Beirle S., Alvarado Bonilla L. et al. Intercomparison of MAX-DOAS vertical profile retrieval algorithms: studies using synthetic data // Atmospheric Measurement Techniques. 2019. V. 12. Iss. 4. P. 2155–2181. DOI: 10.5194/amt-12-2155-2019.
13. Ivanov V., Borovski A., Postylyakov O. First comparison of formaldehyde integral contents in ABL retrieved during clear-sky and overcast conditions by ZDOAS technique // Proc. SPIE. Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere XXII. 2017. V. 10424. Article 104240O. DOI: 10.1117/12.2278235.
14. Kanaya Y., Irie H., Takashima H. et al. Long-term MAX-DOAS network observations of NO_2 in Russia and Asia (MADRAS) during the period 2007–2012: instrumentation, elucidation of climatology, and comparisons with OMI satellite observations and global model simulations // Atmospheric Chemistry and Physics. 2014. V. 14. Iss. 15. P. 7909–7927. DOI: 10.5194/acp-14-7909-2014.
15. Kazanskiy N., Khabibullin R., Nikonorov A., Khonina S. A comprehensive review of remote sensing and artificial intelligence integration: Advances, applications, and challenges // Sensors. 2025. V. 25. No. 19. Article 5965. DOI: 10.3390/s25195965.
16. Kingma D. P., Ba J. L. Adam: A method for stochastic optimization // <https://arxiv.org/>. arXiv:1412.6980. 2014. 15 p. DOI: 10.48550/arXiv.1412.6980.
17. Lange K., Richter A., Bösch T. et al. Validation of GEMS tropospheric NO_2 columns and their diurnal variation with ground-based DOAS measurements // Atmospheric Measurement Techniques. 2024. V. 17. Iss. 21. P. 6315–6344. DOI: 10.5194/amt-17-6315-2024.
18. Pisano J. T., McKendry I., Steyn D. G., Hastie D. R. Vertical nitrogen dioxide and ozone concentrations measured from a tethered balloon in the Lower Fraser Valley // Atmospheric Environment. 1997. V. 31. No. 14. P. 2071–2078. DOI: 10.1016/S1352-2310(96)00146-X.
19. Platt U., Stutz J. Differential optical absorption spectroscopy. Principles and applications. Berlin: Springer, 2008. 614 p.
20. Postylyakov O., Borovski A., Ivanov V. On determination of formaldehyde content in atmospheric boundary layer for overcast using DOAS technique // Proc. SPIE. 21st Intern. Symp. Atmospheric and Ocean Optics: Atmospheric Physics. 2015. V. 9680. Article 96804O. DOI: 10.1117/12.2205925.

21. *Shafiq M., Gu Z.* Deep residual learning for image recognition: A survey // *Applied Sciences*. 2022. V. 12. Article 8972. DOI: 10.3390/app12188972.
22. *Tirpitz J.-L., Frieß U., Hendrick F et al.* Intercomparison of MAX-DOAS vertical profile retrieval algorithms: studies on field data from the CINDI-2 campaign // *Atmospheric Measurement Techniques*. 2021. V. 14. Iss. 1. P. 1–35. DOI: 10.5194/amt-14-1-2021.
23. *Van Roozendaal M., Hendrick F., Friedrich M.M. et al.* Fiducial reference measurements for air quality monitoring using ground-based MAX-DOAS instruments (FRM4DOAS) // *Remote Sensing*. 2024. V. 16. Article 4523. DOI: 10.3390/rs16234523.

On comparison of NO₂ profile estimation methods based on MAX-DOAS measurements

O.V. Postylyakov¹, A.N. Borovski¹, D.R. Shamsutdinov¹, A.I. Chulichkov^{1,2}

¹ A. M. Obukhov Institute of Atmospheric Physics RAS, Moscow 119017, Russia
E-mail: oleg.postylyakov@gmail.com

² Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia

We compared possible methods for retrieving the vertical profiles (VP) of nitrogen dioxide (NO₂) in the lower troposphere based on multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) measurements. Along with traditionally used linear statistical estimates, nonlinear methods that have not previously been applied to solve this problem are considered. The considered nonlinear methods, including artificial neural networks and linear programming, allow using a priori information about the positivity of the reconstructed vertical distribution and the expected number of extrema in the profile. Numerical experiments were conducted to compare the results obtained using the new methods with those obtained using linear statistical estimation methods. Assuming that the a priori distribution function of NO₂ VP is known, an estimate was obtained using an ANN (Artificial Neural Network) that has a smaller root-mean-square error than the optimal linear estimate. A comparison of the optimal statistical estimation and linear programming estimates indicates that the preferred retrieval method (with a lower root-mean-square error) depends on the measurement noise and the retrievable time series itself. In general, it can be noted that, for high signal-to-noise ratios and NO₂ layers located at lower tropospheric altitudes, the linear programming method performs better than the optimal statistical estimation method. As the signal-to-noise ratio deteriorates, preference shifts to the optimal statistical estimation method. The choice of the preferred estimation method should be made on the basis of specific measurement conditions and expected homogeneity of the pollutant VP.

Keywords: MAX-DOAS, nitrogen dioxide, aerosol, vertical distribution, optimal statistical estimation, unbiased linear estimation, linear programming

Accepted: 24.02.2026

DOI: 10.21046/2070-7401-2026-23-4-377-389

References

1. Vasilyev F.P., *Metody optimizatsii* (Optimization methods), in two books, Moscow: MTsNMO, 2011, 1056 p. (in Russian).
2. Gruzdev A.N., Elokhov A.S., Validating NO₂ measurements in the vertical atmospheric column with the OMI instrument aboard the EOS AURA satellite against ground-based measurements at the Zvenigorod Scientific Station, *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics*, 2009, V. 45, No. 4, pp. 444–455, DOI: 10.1134/S0001433809040057.
3. Ivanov V.A., Postylyakov O.V., Estimation of integral NO₂ content in atmospheric boundary layer using observations of scattered in zenith radiation, *Optika Atmosfery i Okeana*, 2010, V. 23, No. 6, pp. 471–475 (in Russian).

4. Ivanov V. A., Elokhov A. S., Postlyakov O. V., On the possibility of estimating the volume of NO₂ emissions in cities using zenith spectral observations of diffuse solar radiation near 450 nm, *Atmospheric and Oceanic Optics*, 2012, V. 25, No. 6, pp. 434–439, DOI: 10.1134/S1024856012060061.
5. Postlyakov O. V., Spherical radiative transfer model with computation of layer air mass factors and some of its applications, *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics*, 2004, V. 40, No. 3, pp. 276–290.
6. Yuan B., Chulichkov A. I., On the estimation of the Maximum possibility for the parameters of a measurement model, *Moscow University Physics Bull.*, 2015, V. 70, pp. 353–361, DOI: 10.3103/S002713491505015X.
7. Castelli E., Pettinari P., Papandrea E. et al., Towards a new MAX-DOAS measurement site in the Po Valley: Aerosol optical depth and NO₂ tropospheric VCDs, *Remote Sensing*, 2025, V. 17, Article 1035, DOI: 10.3390/rs17061035.
8. Chan K. L., Valks P., Heue K.-P. et al., Global Ozone Monitoring Experiment-2 (GOME-2) daily and monthly level-3 products of atmospheric trace gas columns, *Earth System Science Data*, 2023, No. 15, pp. 1831–1870, DOI: 10.5194/essd-15-1831-2023.
9. Chow J. C., Watson J. G., Shah J. J. et al., Megacities and atmospheric pollution, *J. Air and Waste Management Association*, 2004, V. 54, No. 10, pp. 1226–1235, DOI: 10.1080/10473289.2004.10470995.
10. Compernelle S., Verhoelst T., Pinardi G. et al., Validation of Aura-OMI QA4ECV NO₂ climate data records with ground-based DOAS networks: the role of measurement and comparison uncertainties, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, V. 20, Iss. 13, pp. 8017–8045, DOI: 10.5194/acp-20-8017-2020.
11. Dimitropoulou E., Hendrick F., Pinardi G. et al., Validation of TROPOMI tropospheric NO₂ columns using dual-scan multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) measurements in Uccle, Brussels, *Atmospheric Measurement Techniques*, 2020, V. 13, Iss. 10, pp. 5165–5191, DOI: 10.5194/amt-13-5165-2020.
12. Frieß U., Beirle S., Alvarado Bonilla L. et al., Intercomparison of MAX-DOAS vertical profile retrieval algorithms: studies using synthetic data, *Atmospheric Measurement Techniques*, 2019, V. 12, Iss. 4, pp. 2155–2181, DOI: 10.5194/amt-12-2155-2019.
13. Ivanov V., Borovski A., Postlyakov O., First comparison of formaldehyde integral contents in ABL retrieved during clear-sky and overcast conditions by ZDOAS technique, *Proc. SPIE. Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere XXII*, 2017, V. 10424, Article 104240O, DOI: 10.1117/12.2278235.
14. Kanaya Y., Irie H., Takashima H. et al., Long-term MAX-DOAS network observations of NO₂ in Russia and Asia (MADRAS) during the period 2007–2012: instrumentation, elucidation of climatology, and comparisons with OMI satellite observations and global model simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, V. 14, Iss. 15, pp. 7909–7927, DOI: 10.5194/acp-14-7909-2014.
15. Kazanskiy N., Khabibullin R., Nikonorov A., Khonina S., A comprehensive review of remote sensing and artificial intelligence integration: Advances, applications, and challenges, *Sensors*, 2025, V. 25, No. 19, Article 5965, DOI: 10.3390/s25195965.
16. Kingma D. P., Ba J. L., Adam: A method for stochastic optimization, <https://arxiv.org/>, arXiv:1412.6980, 2014, 15 p., DOI: 10.48550/arXiv.1412.6980.
17. Lange K., Richter A., Bösch T. et al., Validation of GEMS tropospheric NO₂ columns and their diurnal variation with ground-based DOAS measurements, *Atmospheric Measurement Techniques*, 2024, V. 17, Iss. 21, pp. 6315–6344, DOI: 10.5194/amt-17-6315-2024.
18. Pisano J. T., McKendry I., Steyn D. G., Hastie D. R., Vertical nitrogen dioxide and ozone concentrations measured from a tethered balloon in the Lower Fraser Valley, *Atmospheric Environment*, 1997, V. 31, No. 14, pp. 2071–2078, DOI: 10.1016/S1352-2310(96)00146-X.
19. Platt U., Stutz J., *Differential optical absorption spectroscopy. Principles and applications*, Berlin: Springer, 2008, 614 p.
20. Postlyakov O., Borovski A., Ivanov V., On determination of formaldehyde content in atmospheric boundary layer for overcast using DOAS technique, *Proc. SPIE. 21st Intern. Symp. Atmospheric and Ocean Optics: Atmospheric Physics*, 2015, V. 9680, Article 96804O, DOI: 10.1117/12.2205925.
21. Shafiq M., Gu Z., Deep residual learning for image recognition: A survey, *Applied Sciences*, 2022, V. 12, Article 8972, DOI: 10.3390/app12188972.
22. Tirpitz J.-L., Frieß U., Hendrick F. et al., Intercomparison of MAX-DOAS vertical profile retrieval algorithms: studies on field data from the CINDI-2 campaign, *Atmospheric Measurement Techniques*, 2021, V. 14, Iss. 1, pp. 1–35, DOI: 10.5194/amt-14-1-2021.
23. Van Roozendaal M., Hendrick F., Friedrich M. M. et al., Fiducial reference measurements for air quality monitoring using ground-based MAX-DOAS instruments (FRM4DOAS), *Remote Sensing*, 2024, V. 16, Article 4523, DOI: 10.3390/rs16234523.