



*А.Н. Боровский, О.В. Постыляков*

Первые результаты восстановления  
вертикального распределения  $\text{NO}_2$  в нижней  
тропосфере методом MAX-DOAS на  
Звенигородской научной станции



borovski@ifaran.ru

# Актуальность

## Мониторинг качества воздуха

измерения в фоновых условиях и при наличии загрязняющих веществ, мобильные измерения

## Химико-транспортные модели

валидация, обеспечение данных

## Эмиссии

локализация, оценка, уточнение

Необходимы технологии для измерения вертикального профиля атмосферных частиц в различных условиях

Целевые примеси: индикаторы интенсивности фотохимической активности в атмосфере

NO<sub>2</sub>, HCHO, HONO...

Метод определения профиля целевых частиц: **MAX-DOAS**

Многоосевая дифференциальная спектроскопия поглощения

Высокоточный и стабилизированный прибор для измерения спектра рассеянного солнечного излучения

# Сеть DOAS ИФА

## Минск

- ★ Oriel MS260i ✂
- ★ MARS-B ✂

## Москва

- ★☆ Oriel MS260i (ИФА) ✂
- ★☆ Oriel MS260i (МГУ) 🚫

## Кисловодск

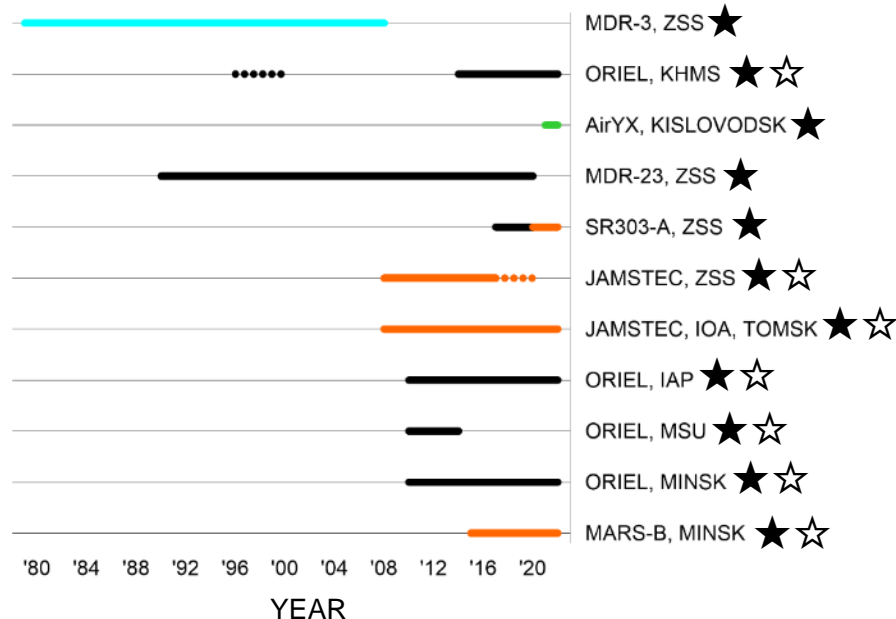
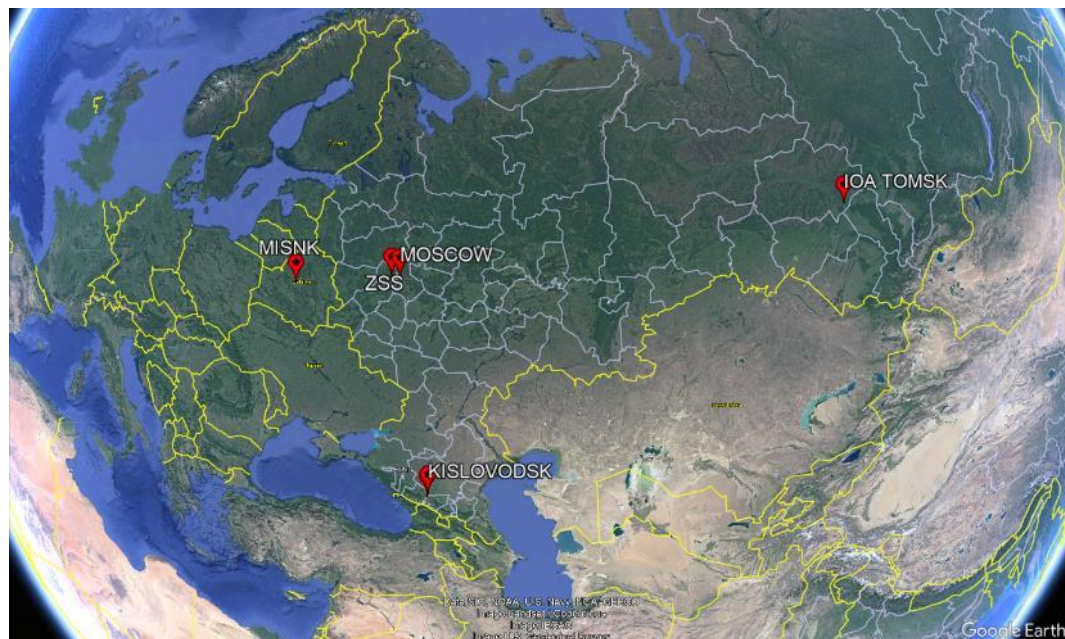
- ★ Oriel MS260i ✓
- ★☆ AirYX ✓
- ★ MDR-3 🚫

## Томск

- ★☆ JAMSTEC 🚫

## Звенигород

- ★ MDP-23 ✂
- ★ Shamrock-303i VIS ✓
- ☆ Shamrock-303i UV 📄
- ★ Oriel MS257 ✂
- ★☆ JAMSTEC 🚫



ZENITH

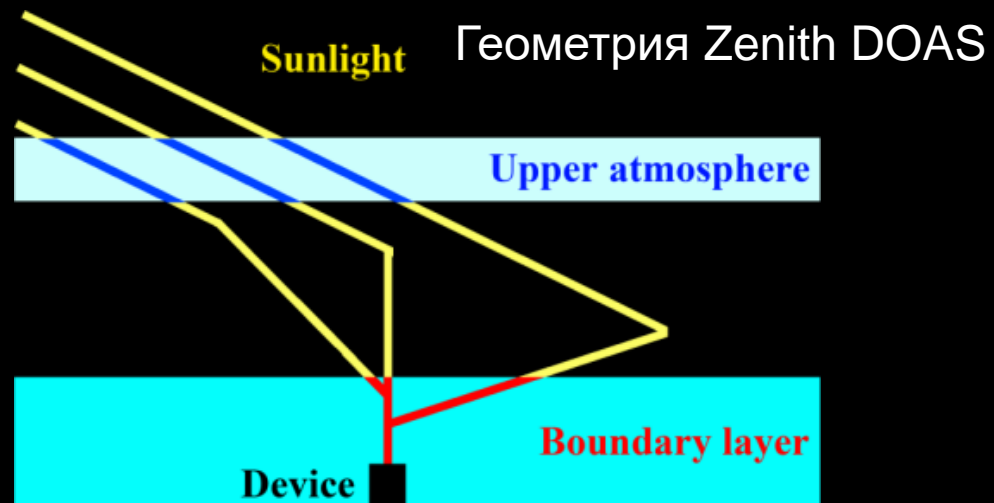
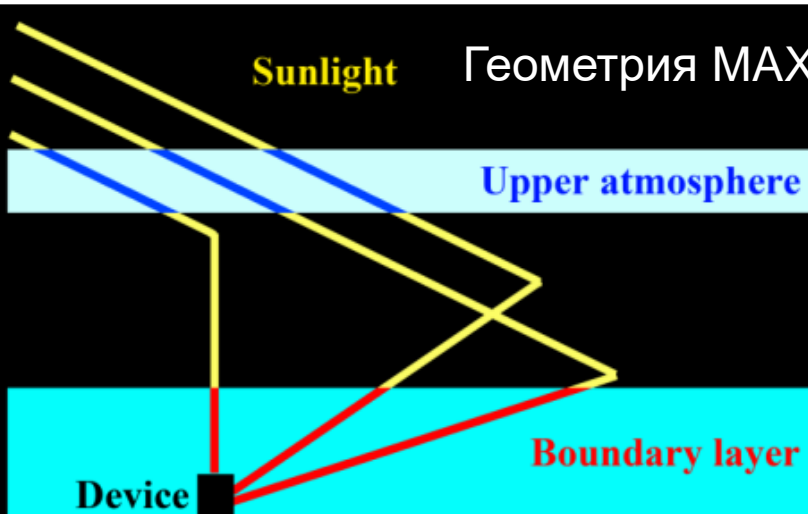
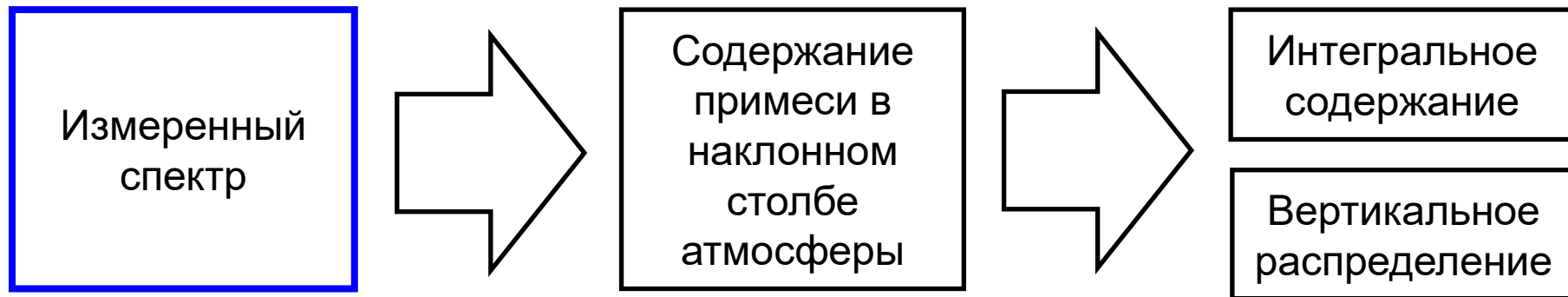
DIRECT SUN

MAX-DOAS

2D MAX-DOAS

☆ - UV   ★ - VIS

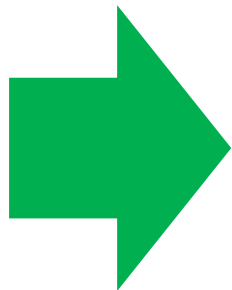
# Основы метода DOAS





# Основы DOAS: восстановление содержания в наклонном столбе атмосферы

Измеренный спектр

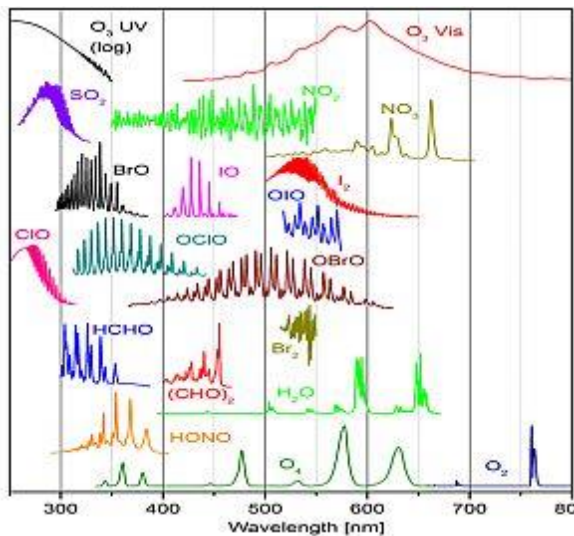


Содержание примеси в наклонном столбе атмосферы

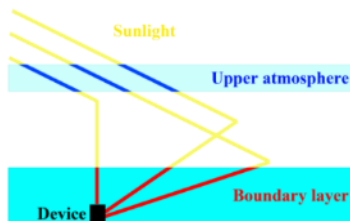
MAD-CAT 2013



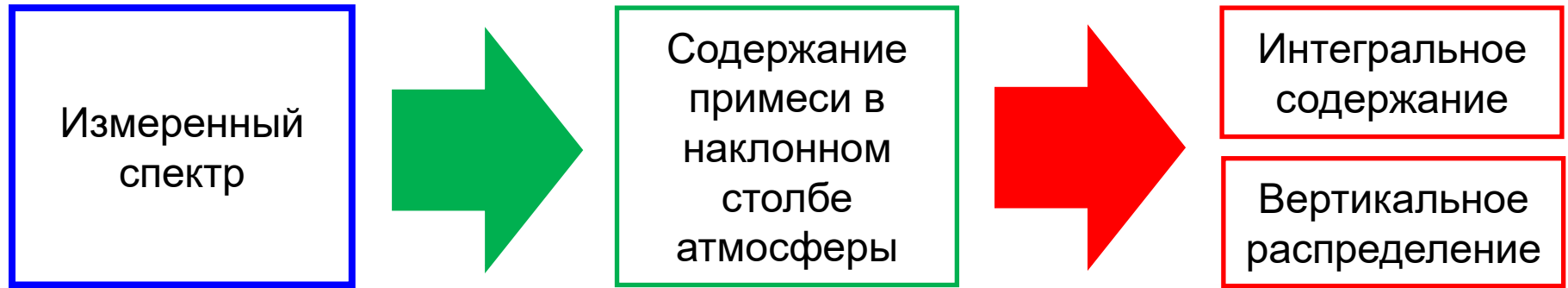
$$S_i: \sum_k \left( \ln \left( \frac{I_0(\lambda_k)}{I(\lambda_k)} \right) - \sum_i \sigma_i(\lambda_k) \cdot S_i \right)^2 \rightarrow \min$$



$I(\lambda_k)$  - измеренный спектр;  
 $I_0(\lambda_k)$  - опорный спектр;  
 $\sigma_i(\lambda_k)$  - сечения поглощения;  
 $S_i$  - содержание примеси в наклонном столбе атмосферы.



# Basing of DOAS: восстановление характеристик содержания примеси в нижней тропосфере



	Оптимальная оценка	LUT
+	<ul style="list-style-type: none"><li>• Оценка ошибок, оценка вертикального разрешения</li></ul>	<ul style="list-style-type: none"><li>• Быстрые расчёты</li></ul>
-	<ul style="list-style-type: none"><li>• Зависимость от априорной информации</li></ul>	<ul style="list-style-type: none"><li>• Ограничение сценариев</li></ul>

Методы восстановления характеристик содержания примесей в нижней тропосфере исследуются и разрабатываются научными группами по всему миру, включая наш институт.

# MAX-DOAS

Two steps algorithm:

- 1) The **slant column**  $X(e_i, z)$  of NO<sub>2</sub> is determined by DOAS procedure using spectral measurements.
- 2) The **vertical profile** of NO<sub>2</sub>  $n(h)$  is estimated basing on spectral measurements at different direction of observation

$$X(e_i, z) = \int dh \cdot m(e_i, z, h) \cdot n(h)$$

$m(e_i, z, h)$  - layer air mass factor calculated using a linearized RT model.

После дискретизации схему (1) можно записать в виде

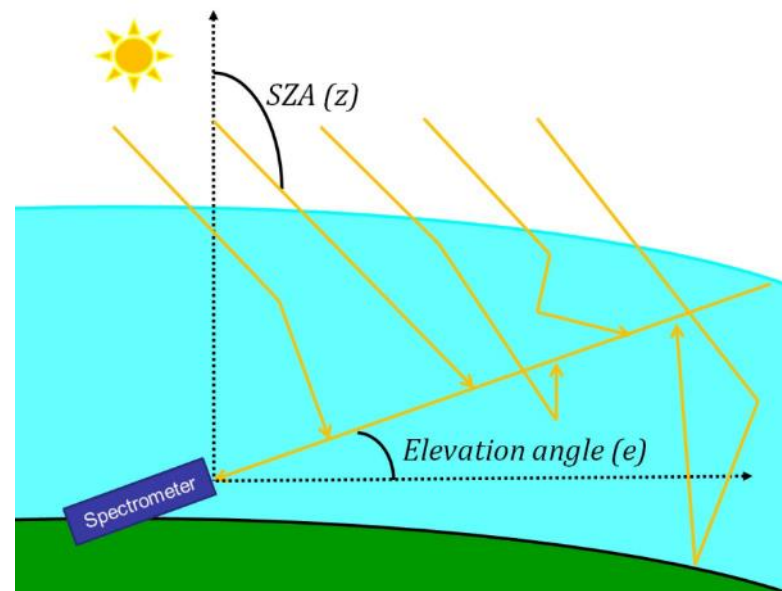
$$\xi = Mn + v \quad (2),$$

где  $\xi$ ,  $Mn$ ,  $v$  – векторы размерности  $m$ ,

$v$  – случайный шум измерения,

$M$  – матрица  $m \times N$ ,

$n$  - вектор концентраций NO<sub>2</sub> размерности  $N$



# MAX-DOAS : оптимальное оценивание

It is possible to write scheme (1) after the discretization like

$$\xi = Mn + \nu \quad (2),$$

## Optimal statistical estimation

$\nu \sim (\mathbf{0}, \Sigma)$  and  $n \sim (n_0, \mathbf{F})$  are known

$$\hat{R}\xi + \hat{r} = FM^*(MFM^* + \Sigma)^{-1} (\xi - Mn_0) + n_0$$

✓ **How to obtain a correlation matrix for layers of different heights if there are very, very few balloon measurements?**

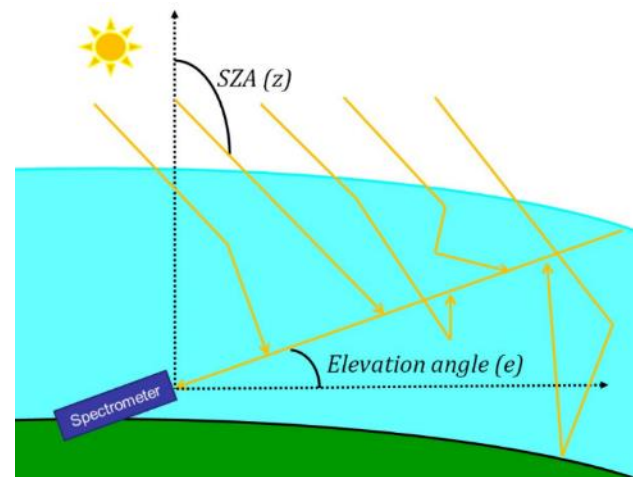
- Not enough balloon or other measurements of  $NO_2$  profile
- Only some model. The most commonly used parametric models are:

$$F_{ij} \sim \exp(-(h_i - h_j)/h_0)$$

$$F_{ij} \sim \exp(-((h_i - h_j)/h_0)^2)$$

But  $h_0$  varies from 60 m to 500 m for various groups, in some publications  $h_0 = 10$  km.

✓ **How to take into account the non-negativity of concentrations  $n(h)$ ?**





# MAX-DOAS ИФА : линейное программирование

Рассмотрим подход, состоящий в существенном сужении класса возможных профилей  $\{n\}$ .

Будем предполагать, что профиль концентрации представляет собой неотрицательную унимодальную функцию, т.е. функцию, имеющую один максимум. Это означает, что  $n(h)$  не убывает на интервале от 0 до некоторой высоты  $h_c$  и не возрастает на интервале от  $h_c$  до  $H$ . Тогда для координат вектора  $n$  выполнены неравенства  $0 \leq n_1 \leq \dots \leq n_c$  и  $n_c \geq \dots \geq n_N \geq 0$ . Для оценки вектора  $n$  решим задачу на минимум

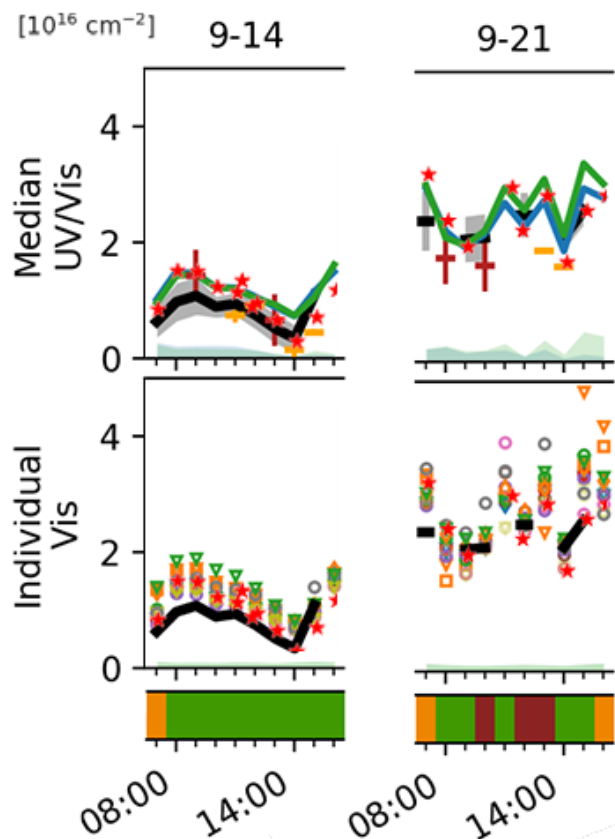
$$\min_c \left\{ \min_{0 \leq n_1 \leq \dots \leq n_c \text{ \& } n_c \geq \dots \geq n_N \geq 0} \|\xi - Mn\| \right\}$$

где

$$\|x\| = \max\{|x_i|; i: 1 \leq i \leq m\}$$

При фиксированном положении высоты максимума концентрации  $h_c$  задача на минимум по координатам вектора  $n$  сводится к задаче линейного программирования. Минимизация по  $c$  производится перебором  $c=1, \dots, N$ .

# MAX-DOAS : оптимальное оценивание



★ Retrieval of A.M. Obukhov IAPh



Direct-Sun DOAS



Direct-Sun error



NO<sub>2</sub> Lidar



Radiosonde



DOAS median UV



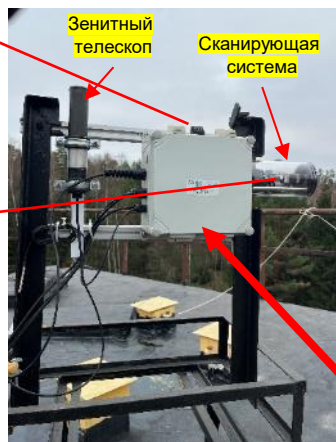
DOAS median Vis



Вид с камеры



# MAX-DOAS: измерения в Звенигороде



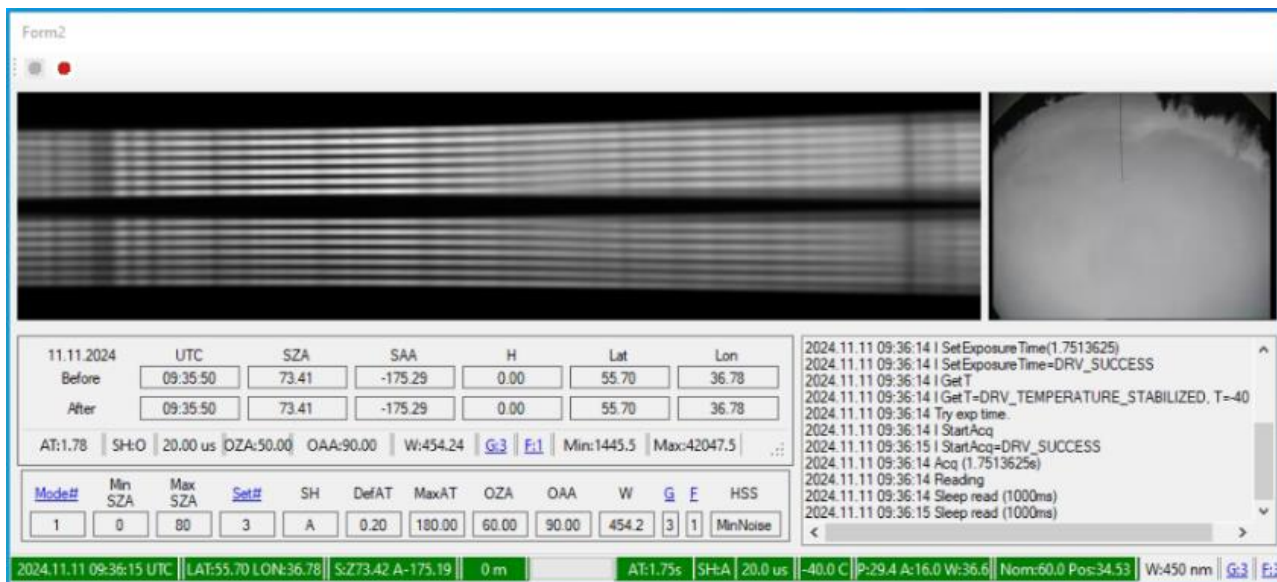
- ПЗС матрица 2048×512 пикселей, водяное охлаждение  $-40^{\circ}\text{C}$
- 2 оптических входа: зенитный и MAX-DOAS
- Спектральный диапазон: 425-490 нм
- Полуширина а.ф. = 0.45 нм
- Время записи спектра 0.5 с (день) – 3 мин (глубокие сумерки)
- Поверен в международных сравнениях CINDI-2, 2016 г
- Углы над горизонтом: 1°, 2°, 3°, 5°, 10°, 20°, 30°, 40° и 90° (зенит)





# MAX-DOAS: измерения в Звенигороде

Автоматический подбор времени экспозиции по уровню максимального сигнала в спектре

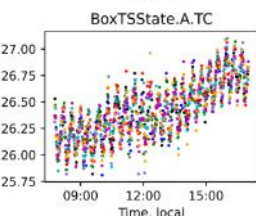
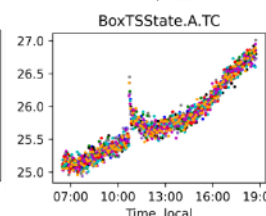
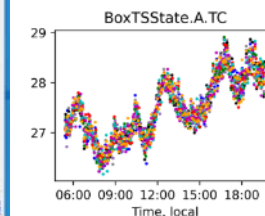
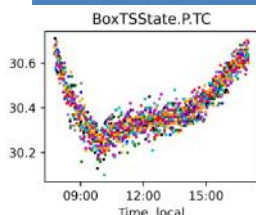
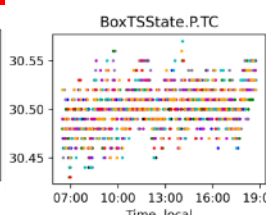
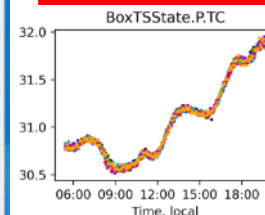


## Система температурной стабилизации

2023.06.14

2023.08.17

2023.09.27



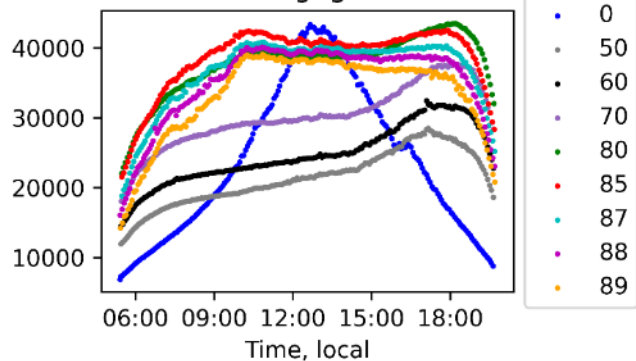
СZA	Метод	Режим
0 - 80	MAX-DOAS	Мин. шум измерений
80 - 100	Z-DOAS	Макс. производительность

Вид с камеры

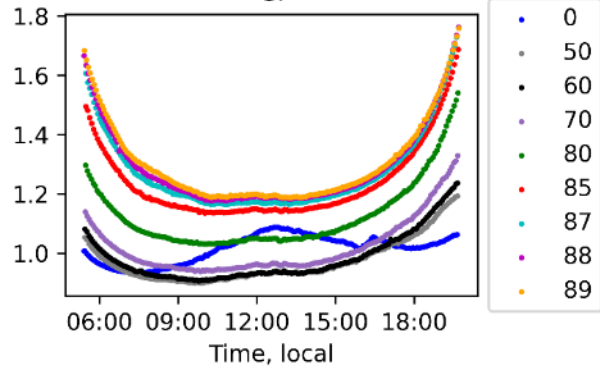
# MAX-DOAS: измерения в Звенигороде

14.06.2023

AvgSgl

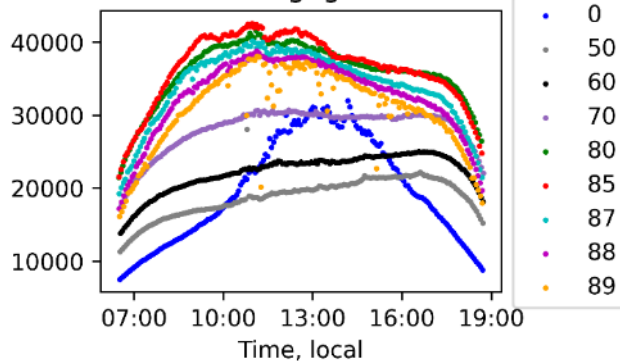


CI

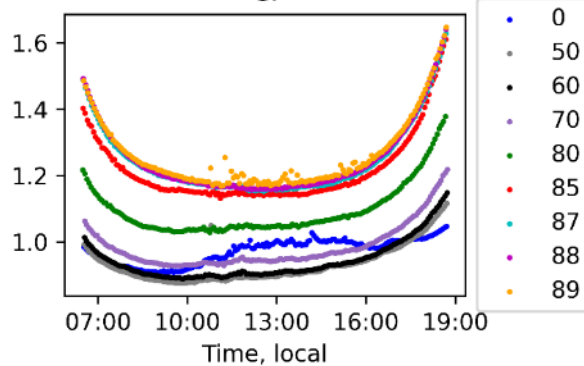


17.08.2023

AvgSgl

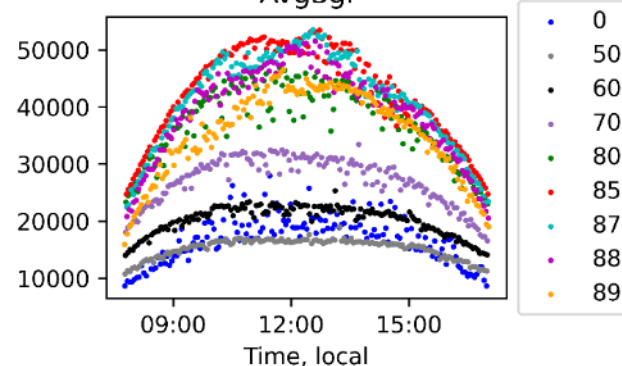


CI

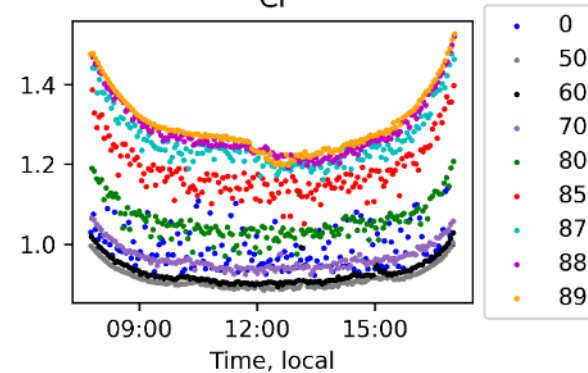


27.09.2023

AvgSgl



CI





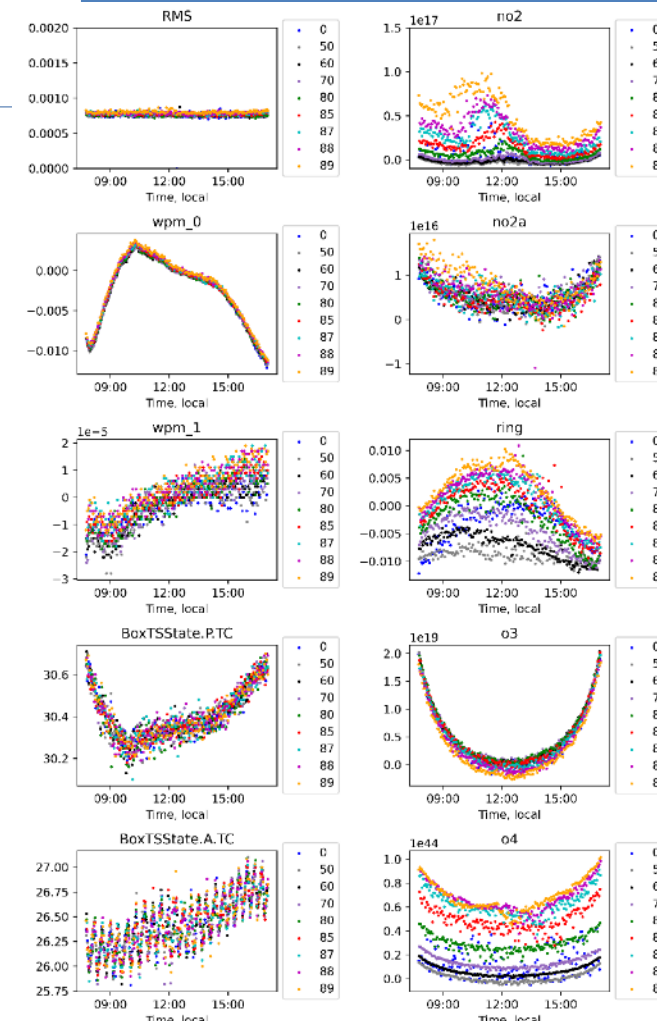
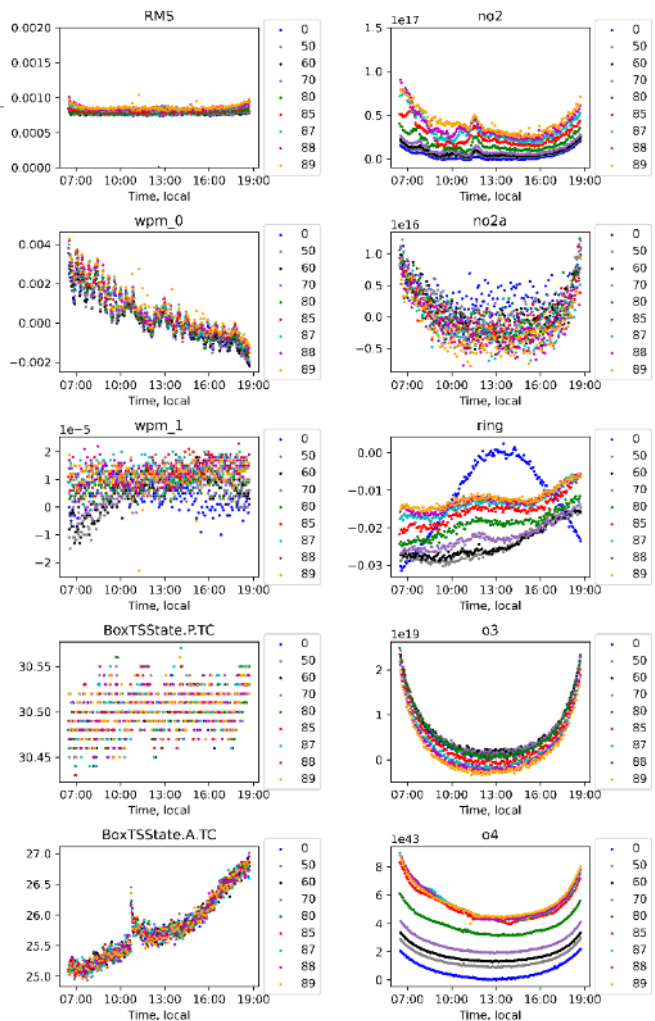
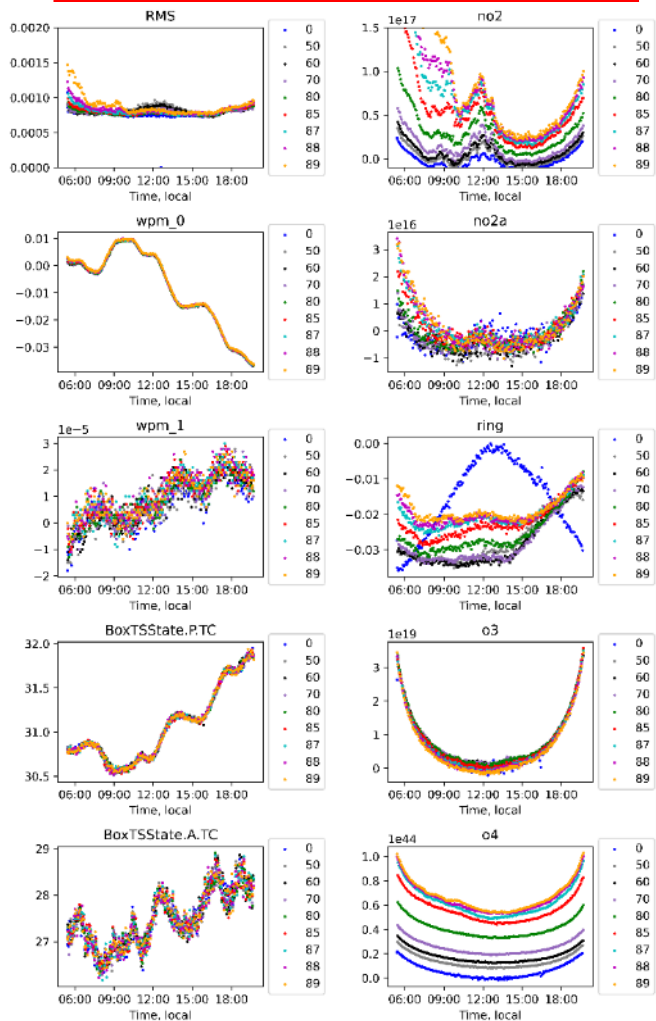
# Результаты DOAS-анализа: наклонные толщи

Ошибка восстановления NO<sub>2</sub> = 0.003E17 молек / см<sup>2</sup>

14.06.2023

17.08.2023

27.09.2023



# MAX-DOAS: измерения в Звенигороде

Two steps algorithm:

- 1) The **slant column**  $X(e_i, z)$  of NO<sub>2</sub> is determined by DOAS procedure using spectral measurements.
- 2) The **vertical profile** of NO<sub>2</sub>  $n(h)$  is estimated basing on spectral measurements at different direction of observation

$$X(e_i, z) = \int dh \cdot m(e_i, z, h) \cdot n(h)$$

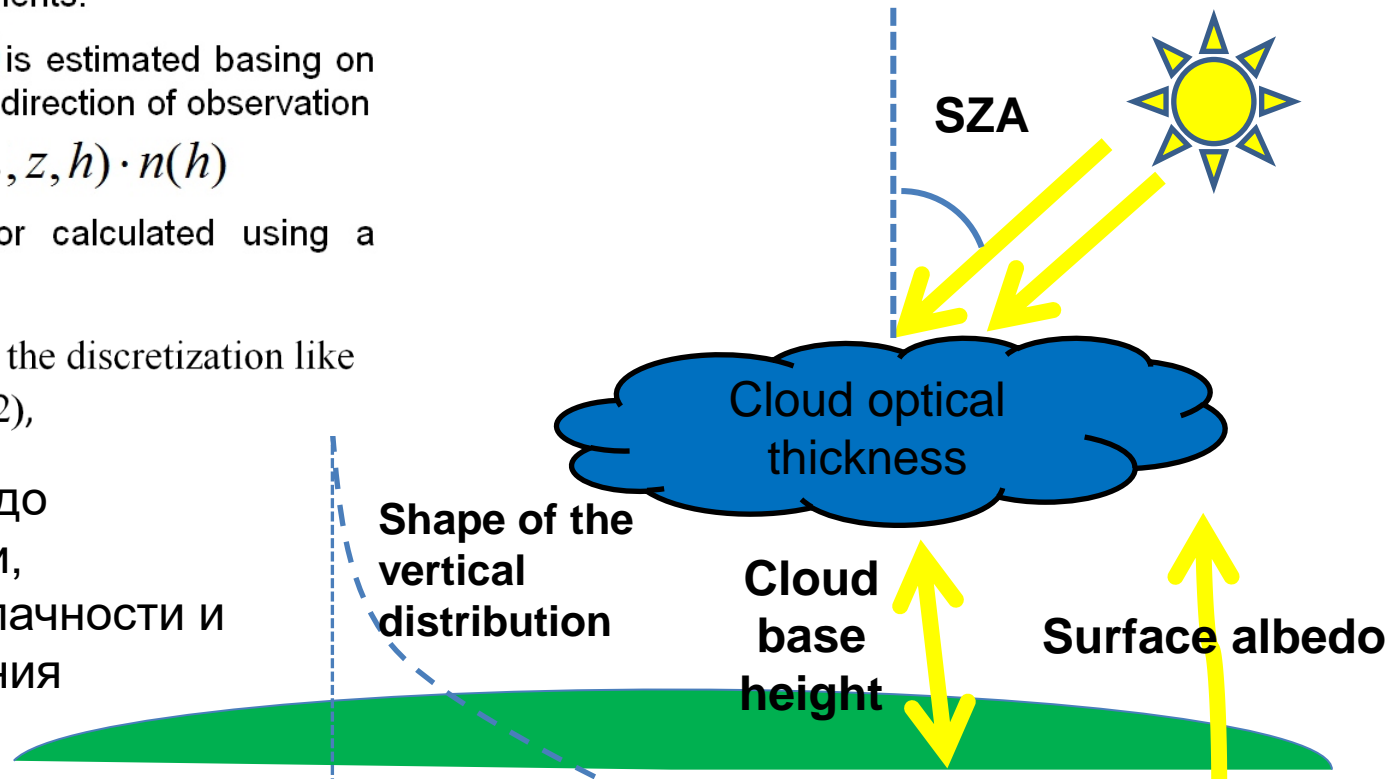
$m(e_i, z, h)$  - layer air mass factor calculated using a linearized RT model.

It is possible to write scheme (1) after the discretization like

$$\xi = Mn + \nu \quad (2),$$

$m(e_i, z, h)$  зависит от альbedo подстилающей поверхности, геометрии наблюдений, облачности и вертикального распределения

**экстинкции аэрозоля**

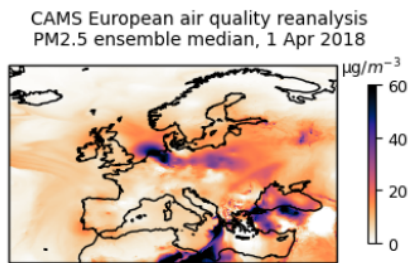


**Info** 26 Sep 2024 **Welcome to the New Atmosphere Data Store (ADS)! This new system is in its early days of full operations and still undergoing enhance disruptions are to be expected. Your feedback is key to improve the user experience on the new ADS for the benefit of everyone. Thank you!**

# CAMS European air quality reanalyses

<a href="#">Overview</a>	<a href="#">Download</a>	<a href="#">Documentation</a>
--------------------------	--------------------------	-------------------------------

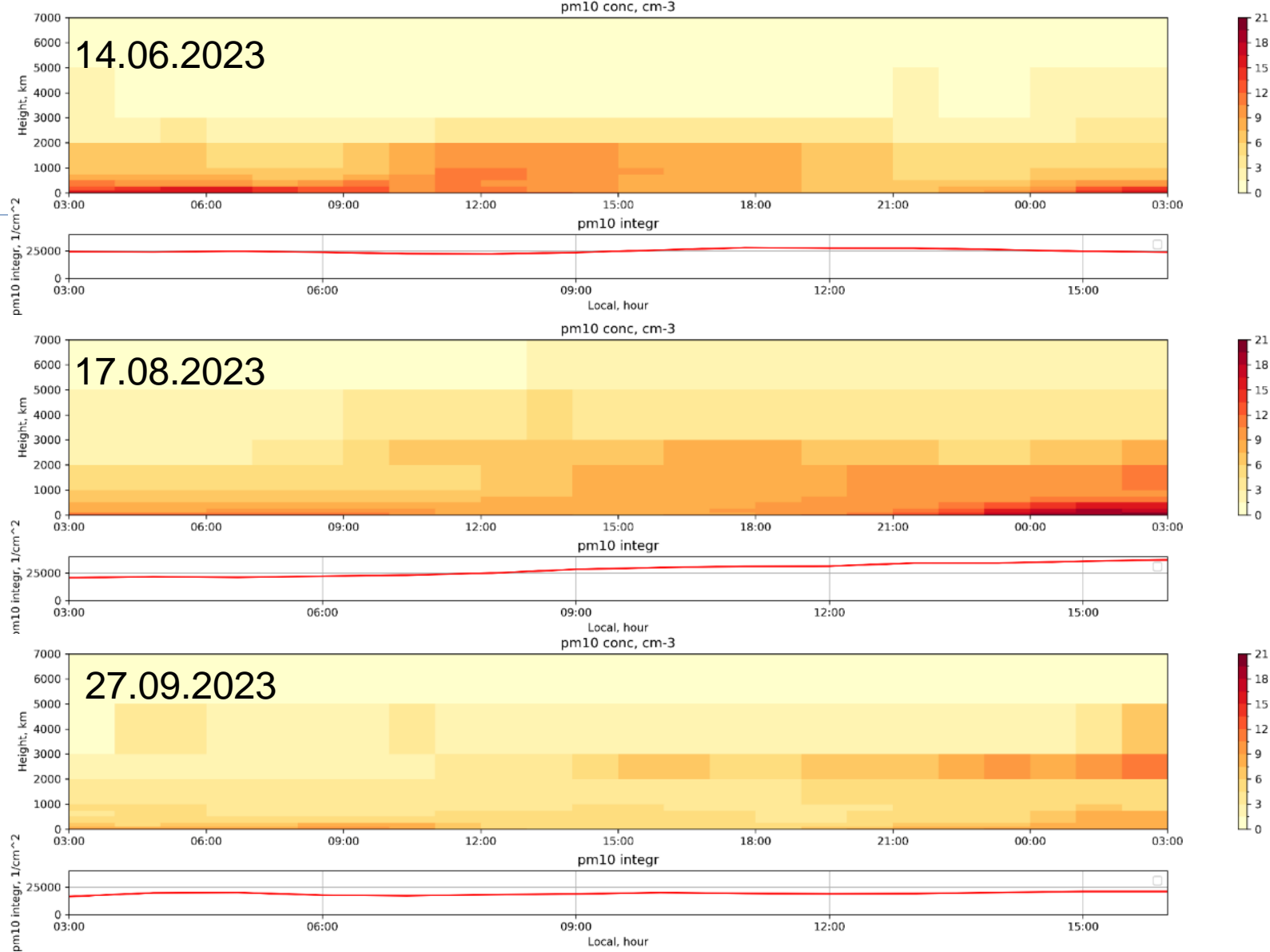
Data description	
Data type	Gridded
Horizontal coverage	Europe (east boundary=25.0° W, west=45.0° E, south=30.0° N, north=72.0°)
Horizontal resolution	0.1°x0.1° (10 km x 10 km)
Vertical coverage	Surface, 50m, 100m, 250m, 500m, 750m, 1000m, 2000m, 3000m, 5000m
Temporal coverage	2013 - 2023
Temporal resolution	monthly files containing 1-hourly analyses
File format	NetCDF
Update frequency	twice a year
Reanalysis-type	interim, validated



## Variables

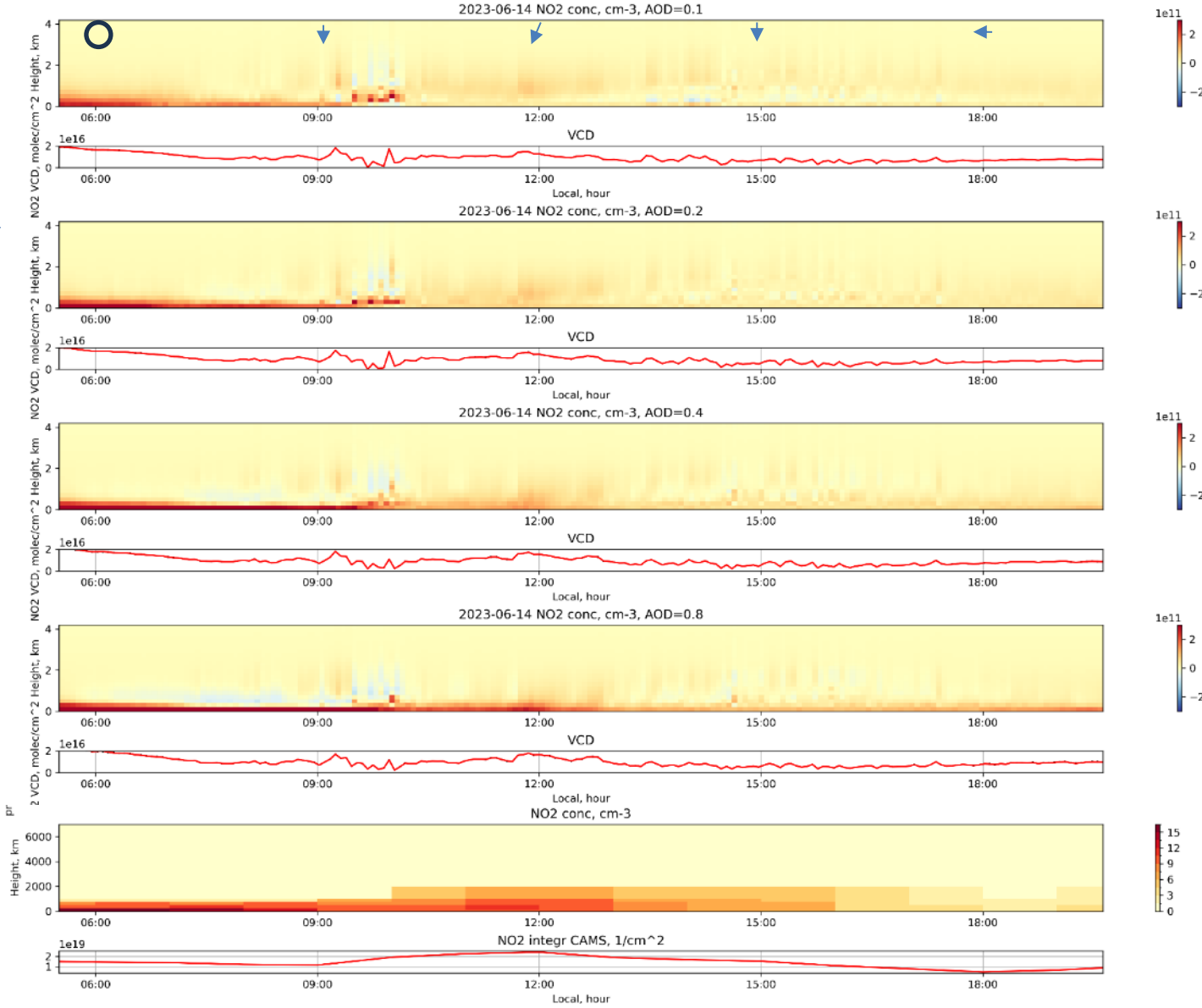
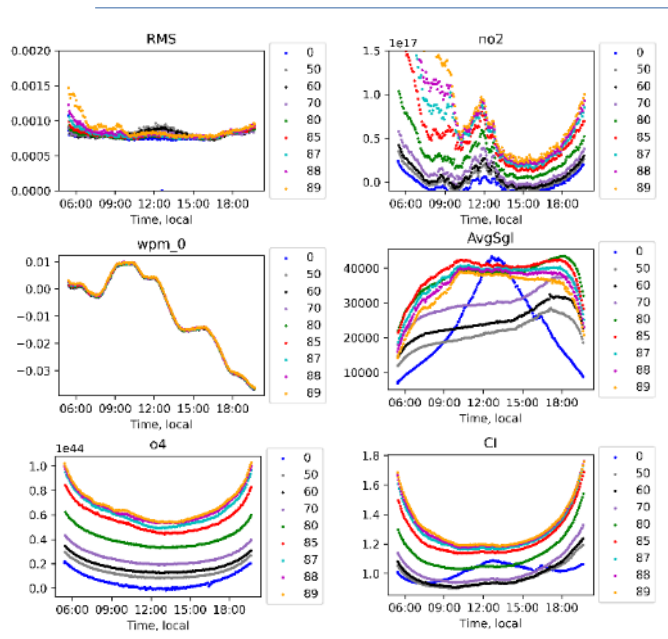
Name	Units
Ammonia	$\mu\text{g m}^{-3}$
Carbon monoxide	$\mu\text{g m}^{-3}$
Formaldehyde	$\mu\text{g m}^{-3}$
Glyoxal	$\mu\text{g m}^{-3}$
Nitrogen dioxide	$\mu\text{g m}^{-3}$
Nitrogen monoxide	$\mu\text{g m}^{-3}$
Non-methane volatile organic compounds (VOCs)	$\mu\text{g m}^{-3}$
Ozone	$\mu\text{g m}^{-3}$
PM10 dust fraction	$\mu\text{g m}^{-3}$
PM10, wildfires only	$\mu\text{g m}^{-3}$
PM2.5 secondary inorganic aerosol fraction	$\mu\text{g m}^{-3}$
Particulate matter d < 10 $\mu\text{m}$ (PM10)	$\mu\text{g m}^{-3}$
Particulate matter d < 2.5 $\mu\text{m}$ (PM2.5)	$\mu\text{g m}^{-3}$
Peroxyacyl nitrates	$\mu\text{g m}^{-3}$
Residential elementary carbon	$\mu\text{g m}^{-3}$
Sulphur dioxide	$\mu\text{g m}^{-3}$
Total elementary carbon	$\mu\text{g m}^{-3}$

# CAMS PM10 profile



14.06.2023

# Оптимальная оценка

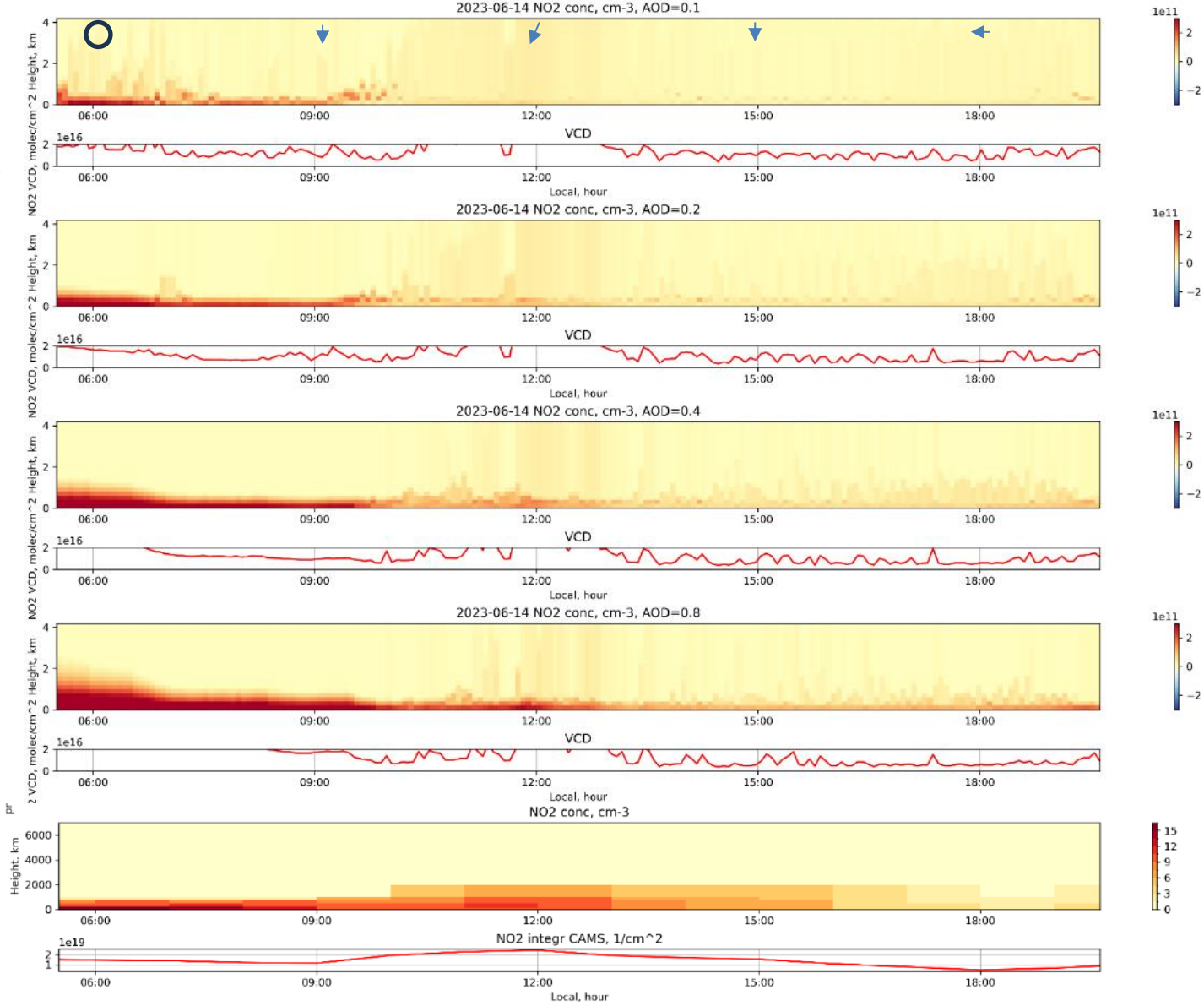
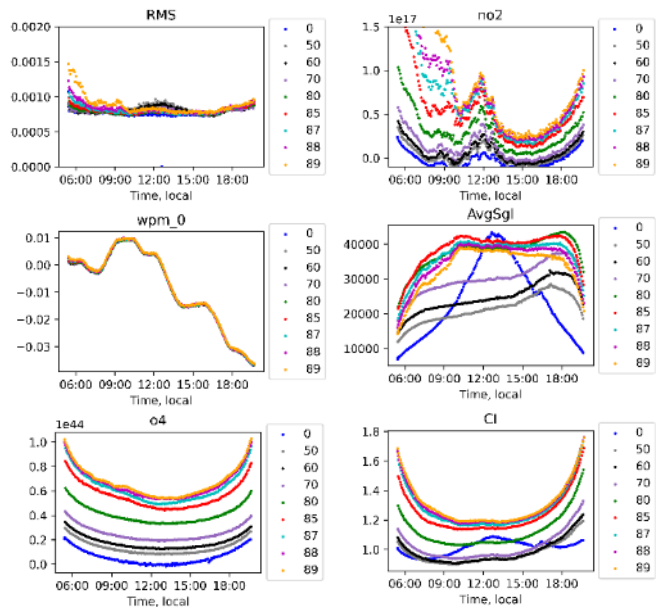




14.06.2023

# Линейное программирование

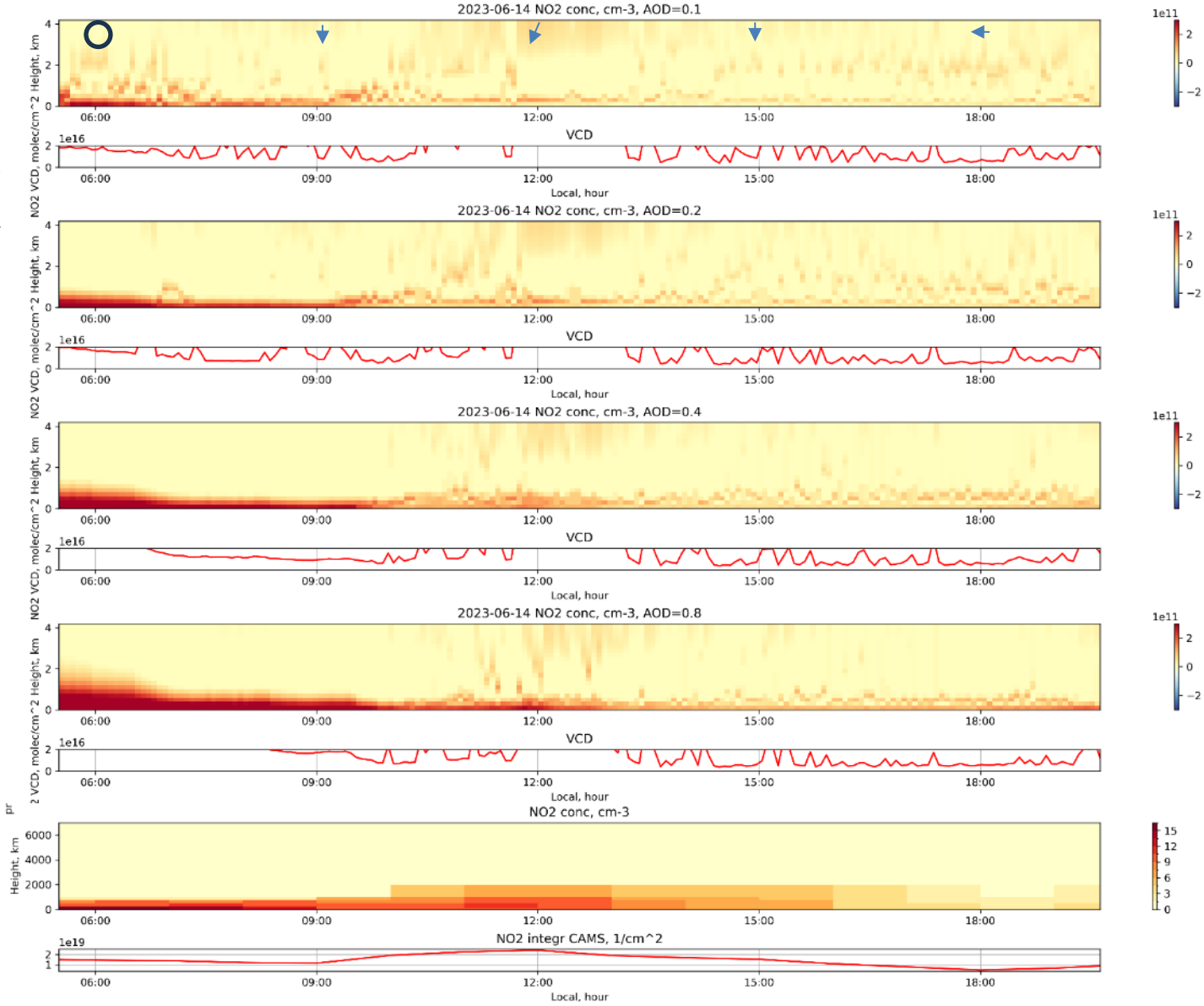
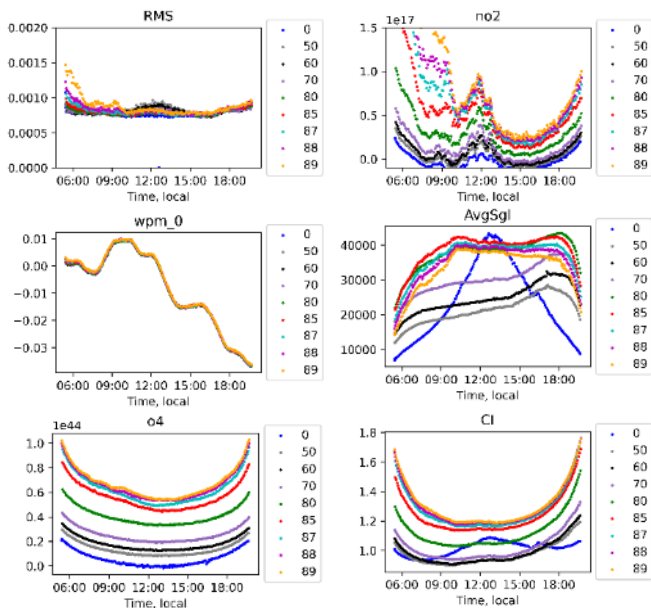
## Один максимум



14.06.2023

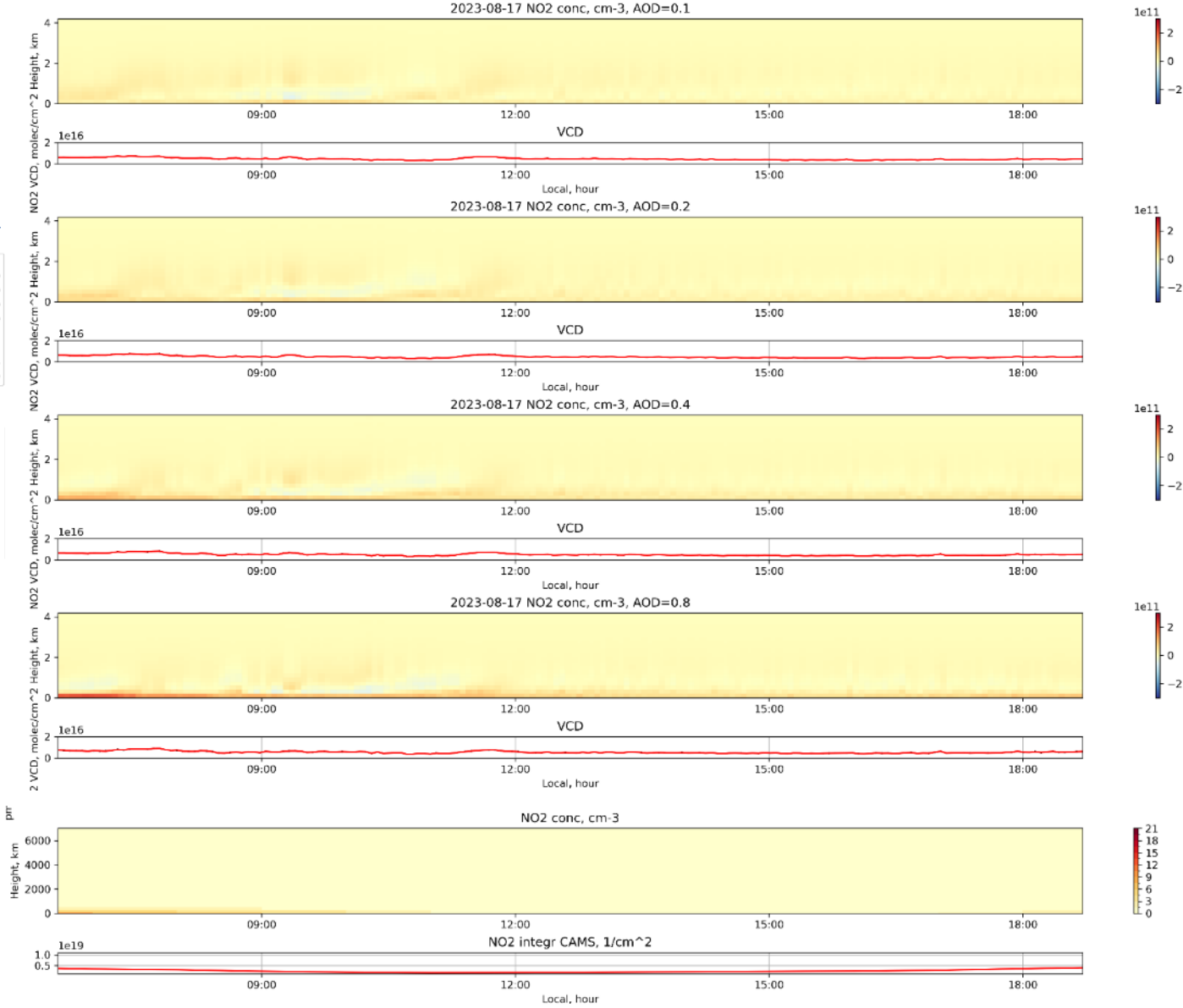
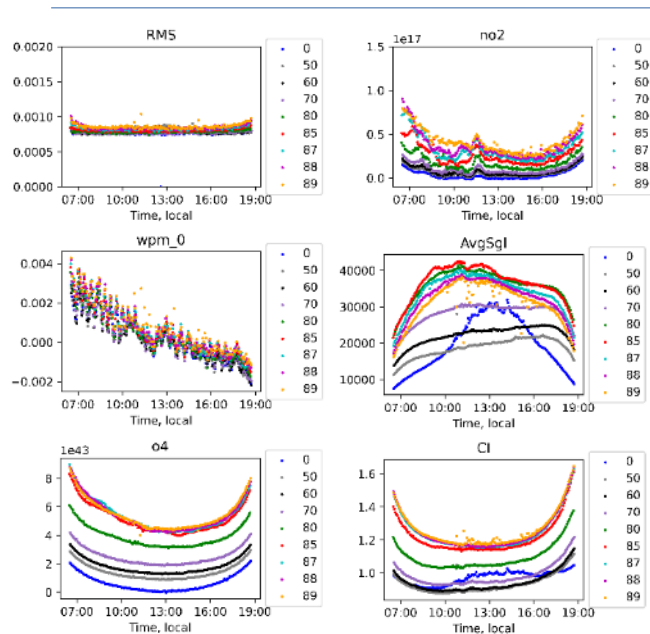
# Линейное программирование

## Два максимума



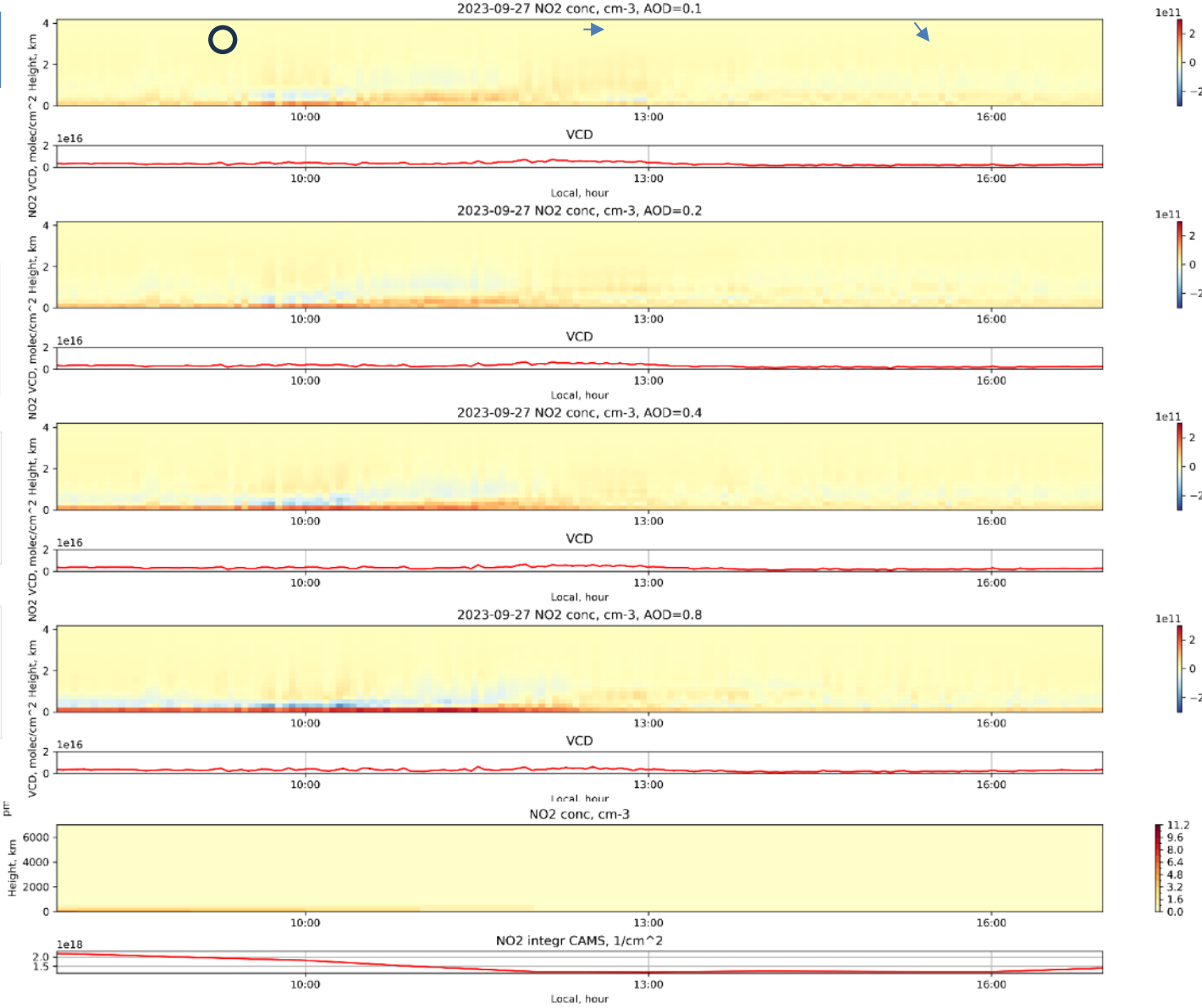
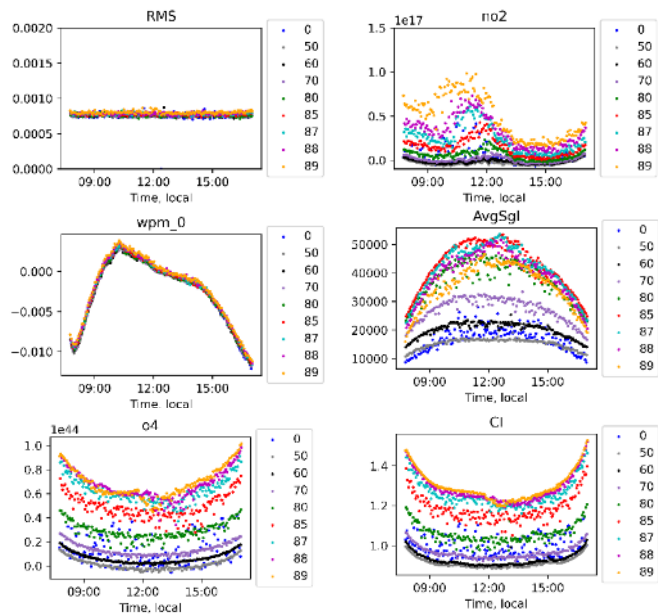
17.08.2023

# Оптимальная оценка



27.09.2023

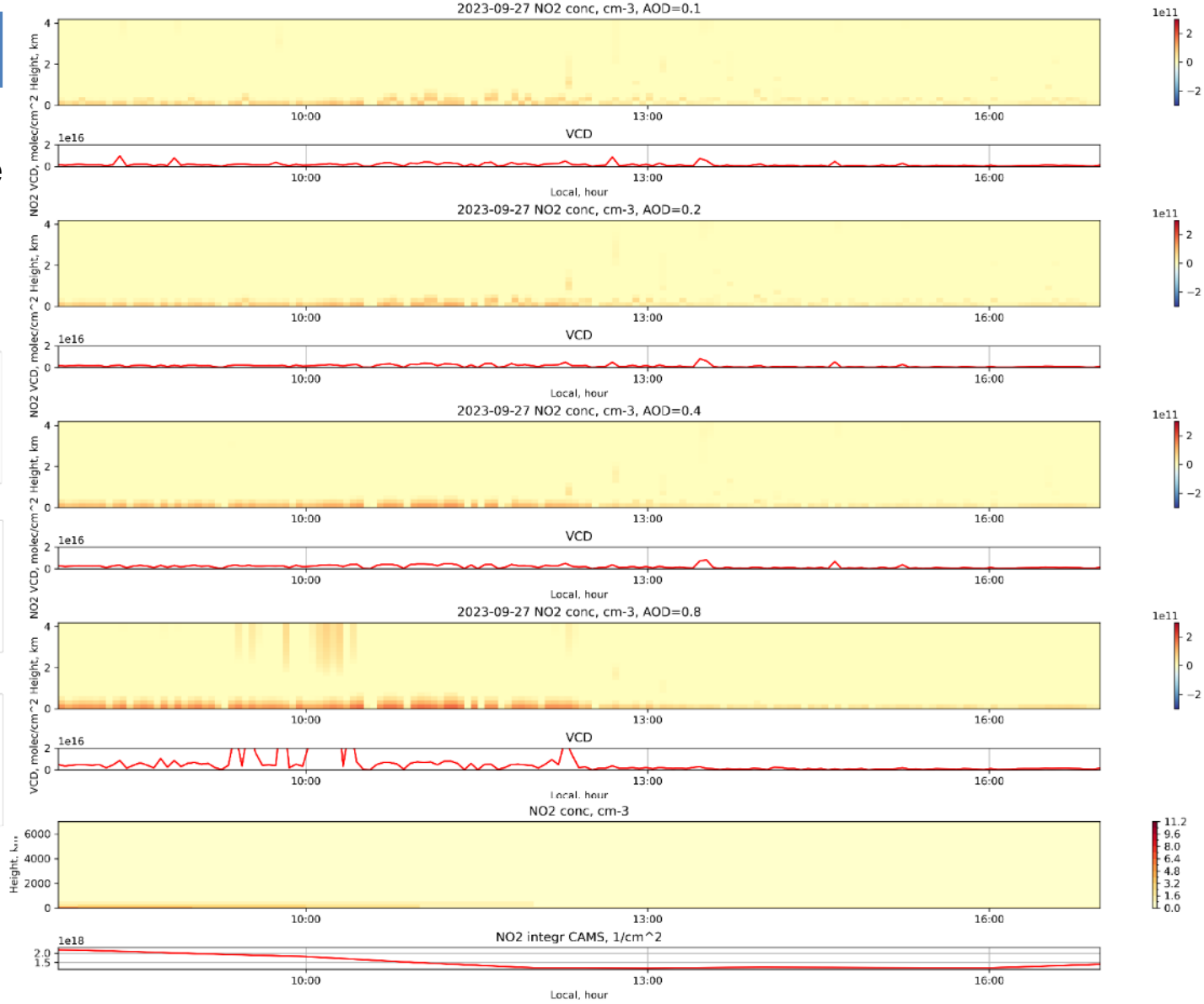
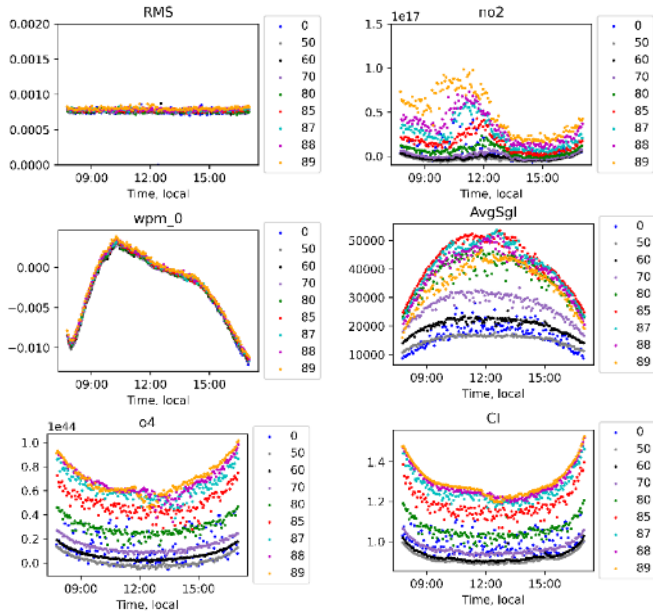
# Оптимальная оценка



27.09.2023

# Линейное программирование

## Два максимума





# Заключение

- Представлены разработанные в ИФА методы восстановления вертикального распределения  $\text{NO}_2$  по данным измерений MAX-DOAS: 1) оптимального оценивания и 2) на основе линейного программирования
- Представлен измерительный комплекс, который проводит измерения MAX-DOAS на Звенигородской научной станции
- Приведены первые результаты измерения вертикального распределения  $\text{NO}_2$  в нижней тропосфере методом MAX-DOAS на Звенигородской научной станции
- Показано, что методы на основе линейного программирования нуждаются в корректировке условий на максимальное значение концентрации  $\text{NO}_2$  и её производной по высоте
- Показано, что для уменьшения неопределённости, связанной с информацией об аэрозоле, необходимы сопутствующие измерения оптических характеристик аэрозоля или метод восстановления вертикального распределения коэффициента экстинкции аэрозоля по тем же измерениям MAX-DOAS

**Спасибо за внимание!**