

УДК 551.510.413.2

## ОЦЕНКА КАЧЕСТВА ИЗМЕРЕНИЙ КОНЦЕНТРАЦИЙ МАЛЫХ ПРИМЕСЕЙ АТМОСФЕРЫ: АПРИОРНЫЕ СТАТИСТИЧЕСКИЕ ОГРАНИЧЕНИЯ, ОСНОВАННЫЕ НА ФОТОХИМИЧЕСКОМ МОДЕЛИРОВАНИИ

*М. В. Беликович\*, М. Ю. Куликов, А. А. Нечаев, А. М. Фейгин*

Институт прикладной физики РАН, г. Нижний Новгород, Россия

В работе рассмотрены особенности ранее опубликованного метода байесовой статистической оценки качества одновременных спутниковых измерений концентраций малых примесей ОН,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$  на высотах мезосферы. Эти особенности связаны с введением априорных ограничений на истинные (скрытые шумом измерений) значения концентраций, определяемых условием фотохимического равновесия этих примесей. В основе метода лежит вероятностное рассмотрение данных спутниковых измерений, когда истинные значения концентраций ОН,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$  полагаются случайными величинами. Он заключается в построении апостериорной плотности вероятности этих величин и сопоставлении её статистических характеристик с такими же характеристиками исходных данных измерений. В работе показано, что в построении апостериорной плотности вероятности концентраций ОН,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$  есть неоднозначность, связанная с разными способами предельного перехода от трёхмерного вероятностного распределения к поверхностному, которая существенно влияет на статистические средние и приводит к неизбежной систематической ошибке. Представлены основные варианты выбора данной плотности вероятности в зависимости от типа предельного перехода. Для оценки систематической ошибки метода проведено тестирование на искусственно зашумлённых модельных данных по концентрациям ОН,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$ , имитирующих идеальные (несмещённые) измерения. Показано, что выбор предельного перехода типа «одеяло» приводит к наименьшим систематическим ошибкам метода. Применение метода к данным MLS/Aura за июль 2005 года подтвердило сделанное ранее заключение, что спутниковые измерения концентрации  $\text{HO}_2$  содержат существенное систематическое смещение, значительно превышающее систематическую погрешность метода. Вследствие этого, в частности, возникает существенная ошибка в определении локализации максимума концентрации этой компоненты на высотах мезосферы.

### ВВЕДЕНИЕ

Важным свойством атмосферы является присутствие в ней значительного числа малых химических примесей со сравнительно небольшим временем жизни. Это позволяет считать их находящимися в состоянии локального устойчивого фотохимического равновесия. Алгебраические соотношения, следующие из баланса стоков и источников таких примесей, описывают их связи с другими примесями и характеристиками атмосферы. Эти связи уже несколько десятилетий используются для решения широкого спектра задач: определения концентраций примесей, измеряемых нерегулярно (или не измеряемых вовсе), по данным об измеренных концентрациях других компонент; оценки качества (валидации, фильтрации) самих экспериментальных данных, полученных *in situ* или при дистанционных измерениях; оценки констант фотохимических реакций, известных с недостаточной точностью; выявления процессов и реакций, ответственных за вариации концентраций наиболее важных компонент атмосферы (например, озона) в конкретной области атмосферы, и других задач.

В частности, такой подход применялся:

1) для исследования химии приземного слоя и свободной тропосферы (на высотах  $0\div 10$  км) в различных регионах (над мегаполисом, в сельской местности, в горах, над морем) по данным

---

\* belikovich@ipfran.ru

измерений концентраций азотных примесей, пероксидных радикалов, озона, аэрозоля и других компонент с целью понимания процессов, влияющих на баланс приземного озона и качество воздуха [1–3];

2) для анализа химии стратосферы (на высотах  $10\div 50$  км), в том числе для определения критических параметров в каталитических циклах разрушения озона в полярной стратосфере [4–6];

3) для изучения химии компонент семейств нечётного кислорода  $O_x$  ( $O$ ,  $O(1D)$ ,  $O_3$ ) и водорода  $HO_x$  ( $H$ ,  $OH$ ,  $HO_2$ ) и атмосферных свечений в мезосфере (на высотах  $50\div 90$  км) и в области верхней мезосферы—нижней термосферы (на высотах  $80\div 105$  км) [7–10];

4) для построения численных схем решения уравнений, описывающих жёсткие фотохимические системы [11–13].

В недавней работе [14] предложен метод статистической оценки качества одновременных измерений концентраций нескольких атмосферных компонент при наличии алгебраической связи между ними, следующей из условий их фотохимического равновесия. В качестве примера рассмотрены данные одновременных измерений концентраций  $OH$ ,  $HO$  и  $O_3$  на высотах мезосферы и их дневное фотохимическое равновесие. В результате теоретического анализа системы уравнений, отвечающих равновесию, найдено алгебраическое соотношение, связывающее локальные концентрации этих компонент в диапазоне высот  $50\div 100$  км, параметрами которого являются только температура и концентрация воздуха, а также константы восьми химических реакций. На основании расчётов годового цикла эволюции мезосферы—нижней термосферы посредством трёхмерной химико-транспортной модели показано, что данное соотношение хорошо (с точностью не хуже  $3\div 4\%$ ) выполняется во всём моделируемом диапазоне высот независимо от сезона и широты. Разработан метод статистической (по Байесу) фильтрации данных одновременных спутниковых измерений концентраций  $OH$ ,  $HO_2$  и  $O_3$ , предполагающий найденное теоретическое соотношение выполненным, а ошибки измерения — известными. В его основе лежит вероятностное рассмотрение данных спутниковых измерений, когда истинные значения измеряемых концентраций полагаются случайными величинами. Он заключается в построении апостериорной плотности вероятности этих величин и сопоставлении её статистических характеристик с такими же характеристиками исходных данных измерений. В частности, существенное отличие усреднённых (по большому ансамблю) результатов фильтрации от исходных данных позволяет утверждать о наличии систематической ошибки в данных измерений и в определённых случаях оценивать её величину. Результаты применения метода к данным спутниковых измерений MLS/Aura за январь, май и сентябрь 2005 года демонстрируют, что измеренные распределения концентрации  $HO_2$  существенно и систематически занижают положение мезосферного максимума концентрации этой компоненты. Вывод подтверждается результатами моделирования и вторичного восстановления (offline retrieval) концентрации  $HO_2$  из первичных данных измерений MLS [15].

Данная работа посвящена детальному рассмотрению математических особенностей метода, которые связаны с неоднозначностью введения априорных ограничений, задаваемых алгебраической связью. Показано, что учет связи между компонентами  $OH$ ,  $HO_2$  и  $O_3$  при построении плотности вероятности в работе [14] соответствует использованию априорных ограничений, при которых случайные величины находятся на поверхности, задаваемой алгебраической связью. Априорная плотность вероятности случайных величин концентрации примесей  $OH$ ,  $HO_2$  и  $O_3$ , реализующая эти априорные ограничения, является неединственной. Задание такой априорной плотности вероятности тесно связано с определением условной вероятности на множестве меры нуль, в котором фигурирует предельный переход к этому множеству от множества ненулевой меры (см. книгу [16], ч. 2, гл. 9), доступную по адресу [17]). В нашем случае множество меры нуль — это 2-мерная поверхность в 3-мерном пространстве возможных значений концентрации  $OH$ ,  $HO_2$  и  $O_3$ . В работе представлены некоторые возможные варианты априорной плотности ве-

роятности, соответствующие разным предельным переходам и приводящие к различным видам апостериорной плотности вероятности оцениваемых характеристик атмосферы. Основное внимание сфокусировано на собственной систематической ошибке метода, неизбежно возникающей при использовании априорных ограничений, в зависимости от вида апостериорной плотности вероятности. Для оценки этой ошибки проведено тестирование метода на искусственных данных, имитирующих идеальные (без систематической ошибки) измерения. Из расчёта годового цикла эволюции мезосферы—нижней термосферы, выполненного с помощью трёхмерной глобальной химико-транспортной модели, были взяты вертикальные распределения концентрации  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$ , соответствующие траектории спутника. Полученные модельные данные затем были искусственно зашумлены с характеристиками шума, отвечающими распределениям по данным MLS/Aura. В результате показано, что апостериорная плотность вероятности, соответствующая переходу типа «одеяло», приводит к наименьшим систематическим ошибкам оцениваемых характеристик атмосферы. Применение такого типа апостериорной плотности вероятности при обработке данных MLS/Aura за июль 2005 года подтвердило выводы работы [14] о том, что измерения концентрации  $\text{HO}_2$  содержат систематические ошибки, в частности существенно занижают положение мезосферного максимума этой компоненты.

Работа построена следующим образом. В разделах 1 и 2 представлено краткое описание используемой модели и метода, разработанного в [14], соответственно. В разделе 3 рассмотрены дополнительные варианты апостериорной плотности вероятности оцениваемых характеристик атмосферы, используемой в методе. В разделе 4 представлены результаты тестирования этих плотностей при статистической оценке качества данных измерений на искусственно зашумлённых модельных данных и данных MLS/Aura.

## 1. ИСПОЛЬЗУЕМАЯ МОДЕЛЬ

В работе применялась глобальная химико-транспортная модель средней атмосферы и нижней термосферы, разработанная Институтом атмосферной физики им. Лейбница (Leibniz Institute of Atmospheric Physics, Kuhlungsborn, Germany) [18]. Основные характеристики модели следующие: 118 высотных уровней (привязанных к давлению) в диапазоне высот  $0\div 135$  км, 32 точки по широте и 64 точки по долготе. Годовая динамика указанной области атмосферы (пространственно-временные поля температуры, давления и всех компонент скорости ветра) взята из результатов расчёта модели СМАМ [19, 20]. Помимо адвекции, в модели учитывается перенос малых примесей молекулярной и турбулентной диффузией. Химический блок модели включает 19 реагирующих компонент ( $\text{O}(1\text{D})$ ,  $\text{O}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$ ,  $\text{H}$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CH}_3$ ,  $\text{N}$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{O}_2$  и  $\text{N}_2$ ), 49 химических реакций и 14 процессов фотодиссоциации.

Данная химико-транспортная модель с динамикой средней атмосферы и нижней термосферы, описываемой моделью СОММА-IAP, использовалась для широкого круга исследований на высотах мезосферы—нижней термосферы [18, 21–24], в том числе была проведена проверка её справедливости, в частности по данным измерений озона [25–28]. Авторы работы успешно применяли модель для исследования равновесия ночного и дневного озона в диапазоне высот  $50\div 100$  км [29–31].

## 2. МЕТОД СТАТИСТИЧЕСКОЙ ОЦЕНКИ КАЧЕСТВА ДАННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ МАЛЫХ ПРИМЕСЕЙ МЕЗОСФЕРЫ

В работе [14] было показано, что мгновенные локальные дневные значения концентраций  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$ , которые взяты на любой высоте из диапазона  $50\div 100$  км в моменты локального времени, отвечающие зенитному углу Солнца меньше  $85^\circ$ , хорошо удовлетворяют соотношению

$$F(\text{OH}, \text{HO}_2, \text{O}_3) = \left( \frac{k_6 \text{MO}_2}{k_6 \text{MO}_2 + k_3 \text{O}_3 + 2k_8 \text{HO}_2} + \frac{k_1 k_7 \text{MO}_2}{k_2 k_4} \right) \frac{k_4 \text{OH}}{k_5 \text{HO}_2} = 1, \quad (1)$$

где  $k_1, \dots, k_8$  — константы реакций, указанных в табл. 1. Значения  $k_1, k_3, \dots, k_8$  и их зависимости от концентрации и температуры воздуха соответствуют последним данным NASA JPL [32]. Значения  $k_2$  в зависимости от номера дня в году, координат и зенитного угла Солнца брались из модели [22].

Таблица 1. Список реакций, учитываемых в выражении (1): М — молекула  $\text{O}_2$  или  $\text{N}_2$

|                                                                                  |       |
|----------------------------------------------------------------------------------|-------|
| $\text{O}(^3\text{P}) + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{O}_3 + \text{M}$ | $k_1$ |
| $\text{O}_3 + h\nu \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}(^1\text{D}, ^3\text{P})$    | $k_2$ |
| $\text{O}_3 + \text{H} \rightarrow \text{O}_2 + \text{OH}$                       | $k_3$ |
| $\text{O} + \text{OH} \rightarrow \text{O}_2 + \text{H}$                         | $k_4$ |
| $\text{O} + \text{HO}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{OH}$                      | $k_5$ |
| $\text{O}_2 + \text{H} + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$            | $k_6$ |
| $\text{O}_3 + \text{OH} \rightarrow \text{O}_2 + \text{HO}_2$                    | $k_7$ |
| $\text{H} + \text{HO}_2 \rightarrow 2\text{OH}$                                  | $k_8$ |

Разработанный метод основан на статистическом восстановлении концентраций малых примесей мезосферы по данным наземных и спутниковых измерений концентраций других компонент, предложенном в работах [33, 34]. Применительно к решаемой задаче он состоит в следующем:

- 1) построении для каждого однократного (на определённом уровне давления) измерения концентраций  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$ ,  $\text{O}_3$  и температуры воздуха, характеризуемого своим набором координат и моментом дневного локального времени, условной плотности вероятности истинных значений концентраций этих компонент при условии конкретных данных измерений с учётом алгебраического соотношения (1);
- 2) вычислении моментов этого распределения (математического ожидания и дисперсии для каждой компоненты);
- 3) усреднении моментов по времени и пространству и сравнении полученных распределений с усреднёнными исходными экспериментальными данными.

Отметим, что по своей сути используемый метод близок к статистическим методам восстановления характеристик атмосферы по данным дистанционного зондирования [35], однако в нашем случае в терминологии [35] оператор «прямой» задачи является единичной матрицей, а используемые априорные распределения нетривиальны. Руководствуясь вышесказанным, уместно называть результаты применения нашего метода результатами восстановления.

Для построения указанной условной плотности вероятности введём для удобства вектор измерений  $\mathbf{x}(\text{HO}_2^{\text{m}}, \text{O}_3^{\text{m}}, \text{OH}^{\text{m}})$ , составленный из одновременно измеренных концентраций  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$  на некоторой высоте (уровне давления) в некий момент дневного локального времени, и вектор состояния  $\mathbf{u}(\text{HO}_2^{\text{ret}}, \text{O}_3^{\text{ret}}, \text{OH}^{\text{ret}})$ , компонентами которого служат истинные (неизвестные нам) величины концентраций. Шум измерений предполагается гауссовым, поэтому

$$\mathbf{x} = \mathbf{u} + \boldsymbol{\xi}, \quad (2)$$

где  $\boldsymbol{\xi}$  — случайный вектор, подчиняющийся распределению

$$w(\boldsymbol{\xi}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2} \Pi_i \sigma_i} \exp \left( - \sum_i \frac{\xi_i^2}{2\sigma_i^2} \right), \quad (3)$$

$\{\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3\} \equiv \{\sigma_{\text{HO}_2}, \sigma_{\text{O}_3}, \sigma_{\text{OH}}\}$  — среднеквадратичные отклонения ошибок измерения концентраций  $\text{HO}_2$ ,  $\text{O}_3$  и  $\text{OH}$  соответственно, считающиеся известными из эксперимента.

Предполагается, что вектор состояния — это случайная величина, удовлетворяющая априорному распределению  $\Psi(\mathbf{u})$ . Апостериорное распределение имеет вид

$$f(\mathbf{u}|\mathbf{x}) \propto \Psi(\mathbf{u})w(\mathbf{x} - \mathbf{u}). \quad (4)$$

В работе [14] выражение (1) было записано в виде функции концентрации ОН от двух других переменных ( $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$ ),  $u_3 = G(u_1, u_2)$ , и введено в априорную функцию распределения следующим образом:

$$\Psi(\mathbf{u}) = \Psi_{\text{ОН}}(\mathbf{u}) = \delta[u_3 - G(u_1, u_2)]\Phi(u_1, u_2), \quad (5)$$

где  $\delta(u)$  — дельта-функция,  $\Phi(u_1, u_2)$  — совместная априорная плотность вероятности  $u_1$  и  $u_2$ , в общем случае выбираемая в виде равномерной функции на достаточно большой двумерной области  $\Sigma$ , размеры которой значительно превосходят возможные в реальных условиях мезосферы значения концентрации  $\text{O}_3$  и  $\text{HO}_2$ :

$$\Phi(u_1, u_2) = \begin{cases} 1/S(\Sigma), & (u_1, u_2) \in \Sigma; \\ 0, & (u_1, u_2) \notin \Sigma, \end{cases}$$

где  $S(\Sigma)$  — площадь области  $\Sigma$ . Конкретный вид этой области не влияет на конечный результат.

Интегрируя выражение (4) по переменной  $u_3$  с учётом (5), получаем следующее выражение для плотности вероятности  $u_1$  и при условии, что наблюдается вектор  $\mathbf{x}$ :

$$f_{\text{ОН}}(u_1, u_2|\mathbf{x}) \propto \exp\left[-\frac{(x_1 - u_1)^2}{2\sigma_1^2}\right] \exp\left[-\frac{(x_2 - u_2)^2}{2\sigma_2^2}\right] \exp\left\{-\frac{[x_3 - G(u_1, u_2)]^2}{2\sigma_3^2}\right\}, \quad (6)$$

где  $(u_1, u_2) \in \Sigma$ . Первые моменты данного распределения находятся по достаточно большой (несколько сотен тысяч пар) выборке  $(u_1, u_2)$ , полученной в результате семплирования плотности вероятности (6) с применением алгоритма Метрополиса—Гастингса [36]:

$$\begin{aligned} \langle u_1 \rangle &= \int_{(u_1, u_2) \in \Sigma} u_1 f_{\text{ОН}}(u_1, u_2|\mathbf{x}) du_1 du_2, & \langle u_2 \rangle &= \int_{(u_1, u_2) \in \Sigma} u_2 f_{\text{ОН}}(u_1, u_2|\mathbf{x}) du_1 du_2, \\ \langle u_3 \rangle &= \int_{(u_1, u_2) \in \Sigma} G(u_1, u_2) f_{\text{ОН}}(u_1, u_2|\mathbf{x}) du_1 du_2. \end{aligned} \quad (7)$$

Среднеквадратичные отклонения распределений равны  $\sigma_j = \sqrt{\langle u_j^2 \rangle - \langle u_j \rangle^2}$ , где угловые скобки означают усреднение в смысле (7). Также для проверки использовался более простой алгоритм выборки с отклонением [36]. Отметим, что оба алгоритма не требуют нормировки функции распределения.

Обнаружение существенной разности между усреднёнными по большому ансамблю как по времени, так и пространству  $\langle u_i \rangle$  и исходными данными является индикатором наличия систематической ошибки измерений. В общем случае для идентификации компоненты, в измерениях концентрации которой содержится эта ошибка, необходимо привлекать результаты моделирования и данные других измерений. Например, обнаруженное в работе [14] существенное занижение положения мезосферного максимума концентрации  $\text{HO}_2$  в данных MLS/Aura было подтверждено результатами расчёта химико-транспортной модели, указанной в разделе 1, и данными вторичного восстановления этой компоненты из первичных данных измерений MLS [15].

### 3. НЕОДНОЗНАЧНОСТЬ ПОСТРОЕНИЯ АПРИОРНОЙ ФУНКЦИИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ

Из теории и практики применения статистических методов восстановления характеристик атмосферы по данным дистанционного зондирования [35] известно, что введение априорного ограничения всегда вызывает смещения результата восстановления, которые могут быть довольно

большими в случае существенных ошибок в измеренных данных. Теоретически возможно выбрать априорную вероятность так, что в среднем получается среднее по распределению истинной величины. Для этого необходимо, чтобы априорное распределение в точности совпадало с истинным, что нереализуемо с практической точки зрения. Однако можно попытаться уменьшить эту ошибку путём выбора оптимальных априорных ограничений. Дело в том, что в нашем случае существует, помимо выражения (5), бесконечное число различных способов, которыми можно учесть алгебраическую связь (1) в априорной функции  $\Psi(\mathbf{u})$ . Например, если выражение (1) записать как функцию концентрации  $\text{O}_3$  от  $\text{HO}_2$  и  $\text{OH}$ ,  $u_2 = Z(u_1, u_3)$ , то

$$\Phi_{\text{O}_3}(\mathbf{u}) = \delta[u_2 - Z(u_1, u_3)]\Phi'(u_1, u_3), \quad (8)$$

где вспомогательная функция  $\Phi'(u_1, u_3)$  введена аналогично  $\Phi(u_1, u_3)$ , и апостериорная плотность распределения имеет вид

$$f_{\text{O}_3}(u_1, u_3|\mathbf{x}) \propto \exp\left[-\frac{(x_1 - u_1)^2}{2\sigma_1^2}\right] \exp\left\{-\frac{[x_2 - Z(u_1, u_3)]^2}{2\sigma_2^2}\right\} \exp\left[-\frac{(x_3 - u_3)^2}{2\sigma_3^2}\right]. \quad (9)$$

Другой вариант искомой плотности вероятности получается, если выражение (1) записать как функцию концентрации  $\text{HO}_2$  от  $\text{O}_3$  и  $\text{OH}$ ,  $u_1 = Q(u_2, u_3)$ :

$$\Phi_{\text{HO}_2}(\mathbf{u}) = \delta[x_1 - Q(u_2, u_3)]\Phi''(u_2, u_3), \quad (10)$$

где вспомогательная функция  $\Phi''(u_2, u_3)$  введена аналогично  $\Phi(u_1, u_3)$  и  $\Phi'(u_1, u_3)$ :

$$f_{\text{HO}_2}(u_2, u_3|\mathbf{x}) \propto \exp\left\{-\frac{[x_1 - Q(u_2, u_3)]^2}{2\sigma_1^2}\right\} \exp\left[-\frac{(x_2 - u_2)^2}{2\sigma_2^2}\right] \exp\left[-\frac{(x_3 - u_3)^2}{2\sigma_3^2}\right]. \quad (11)$$

Отметим, что плотности вероятности (6), (9) и (11) не эквиваленты друг другу. Действительно, если в выражении (9) сделать замену переменных  $(u_1, u_3) \rightarrow (u_1, u_2)$ , оно перейдёт в

$$f_{\text{O}_3}(u_1, u_2|\mathbf{x}) \propto f_{\text{OH}}(u_1, u_2|\mathbf{x}) \left| \frac{\partial G(u_1, u_2)}{\partial u_2} \right|, \quad (12)$$

где  $|\partial G(u_1, u_2)/\partial u_2|$  — модуль якобиана замены переменных. Поскольку эта замена нелинейная, этот множитель не является постоянным. Следовательно распределения (12) и (6) существенно различны и их отличие тем больше, чем сильнее меняется якобиан на характерной ширине функции (6), определяемой шумом измерений.

Распределения вероятностей (4) и (6) имеют простой геометрический смысл. Рассмотрим случайную величину  $\nu$ , имеющую плотность вероятностей  $w_x(\mathbf{u}) \equiv w(\mathbf{x} - \mathbf{u})$ , в нашем случае это трёхмерное нормальное распределение. Формула (4) описывает пересечение функции  $w_x(\mathbf{u})$  с априорной плотностью вероятности  $\Psi(\mathbf{u})$ . Таким образом, выражение (6) описывает условную плотность вероятности величины  $\nu$  при условии того, что она лежит на поверхности (с краем)  $L$ , задаваемой выражением  $u_3 = G(u_1, u_2)$ . Это и есть основа рассматриваемого метода оценки качества данных одновременных спутниковых измерений.

Нетрудно заметить, что плотность вероятности (9) имеет тот же геометрический смысл что и (6) — условное распределение случайной величины  $\nu$  при условии того, что она находится на поверхности  $L$ , только в случае (9) используется другая параметризация поверхности. Дело в том, что двумерная поверхность  $L$  является множеством меры нуль (фигурой нулевого объёма) в трёхмерном пространстве возможных векторов состояния ( $\text{HO}_2^{\text{ret}}$ ,  $\text{O}_3^{\text{ret}}$ ,  $\text{OH}^{\text{ret}}$ ). В свою очередь, определять условную вероятность на множестве меры нуль можно по-разному (см. парадокс

Борея—Колмогорова [16, 17, 37]). Случаи (6), (9) и, с некоторыми оговорками, (11) представляют различные варианты её определения.

Рассмотрим дельта-функцию в (5) как предел дельта-последовательности:

$$\delta(\tilde{u}_3) = \lim_{\Delta u_3 \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta u_3} \alpha_{\Delta u_3}(\tilde{u}_3), \quad (13)$$

где

$$\alpha_{\Delta u_3} = \begin{cases} 1/\Delta u_3, & \tilde{u}_3 \in [0, \Delta u_3]; \\ 0, & \tilde{u}_3 \notin [0, \Delta u_3]. \end{cases}$$

Тогда если в (5) вместо дельта-функции будет стоять член последовательности (13), то выражение (4) будет представлять условное распределение случайной величины  $\nu$  при условии того, что она находится в области  $\Omega_{\text{ОН}}(\Delta u_3)$  такой, что

$$\mathbf{u} \in \Omega_{\text{ОН}}(\Delta u_3) : u_3 \in [G(u_1, u_2), G(u_1, u_2) + \Delta u_3], \quad (u_1, u_2) \in \Sigma, \quad (14)$$

т. е. область  $\Omega_{\text{ОН}}(\Delta u_3)$  имеет конечный объём и заключена между поверхностью  $L$  и такой же поверхностью, полученной параллельным переносом  $L$  на  $\Delta u_3$  по оси  $u_3$ . Нетрудно видеть, что последовательность областей  $\Omega_{\text{ОН}}(\Delta u_3)$  при  $\Delta u_3 \rightarrow 0$  стремится к множеству меры нуль, описываемому поверхностью  $L$ . Точно так же априорные распределения (8) и (10) соответствуют предельным переходам от объёмной области к множеству меры нуль, задаваемому поверхностью  $L$ . При этом, аналогично (14), соответствующие последовательности областей заключены между поверхностью  $L$  и параллельной ей поверхностью, смещённой по одной из координат.

Рассмотрим другой вариант построения апостериорной плотности вероятности  $f_{\text{ОН}}^{\text{patch}}(u_1, u_2 | \mathbf{x})$ , который получается при предельном переходе способом, названным нами «одеяло». Член стремящейся к множеству меры нуль последовательности  $\Omega_{\text{patch}}(\rho)$  является областью, точки которой удалены от поверхности  $L$  на расстояние (в евклидовой метрике) не больше  $\rho$ :

$$\mathbf{u} \in \Omega_{\text{patch}}(\rho) : \inf |\mathbf{u} - \mathbf{u}_L| \leq \rho, \quad \mathbf{u}_L \in L, \quad (15)$$

где  $\mathbf{u}_L \in L$ . При  $\rho \rightarrow 0$  последовательность  $\Omega_{\text{patch}}(\rho)$  очевидным образом стремится к множеству, заданному поверхностью  $L$ . Рассмотрим условную вероятность события  $\nu \in \Delta \Omega_{\text{patch}}(\rho)$  при условии, что  $\nu \in \Omega_{\text{patch}}(\rho)$ :

$$P[\nu \in \Delta \Omega_{\text{patch}}(\rho) | \nu \in \Omega_{\text{patch}}(\rho)] = \frac{\int_{\Delta \Omega_{\text{patch}}(\rho)} w(\mathbf{x} - \mathbf{u}) d\mathbf{u}}{\int_{\Omega_{\text{patch}}(\rho)} w(\mathbf{x} - \mathbf{u}) d\mathbf{u}}. \quad (16)$$

где  $\Delta \Omega_{\text{patch}}(\rho)$  — малая часть области  $\Omega_{\text{patch}}(\rho)$ , определяемая точкой  $(u_1^*, u_2^*) \in \Sigma$  на поверхности  $L$  и размерами  $\Delta u_1, \Delta u_2$  по осям  $u_1, u_2$ . В результате область задана выражениями

$$\mathbf{u} \in \Delta \Omega_{\text{patch}}(\rho) : \mathbf{u} \in \Omega_{\text{patch}}(\rho), \quad u_1 \in [u_1^*, u_1^* + \Delta u_1], \quad u_2 \in [u_2^*, u_2^* + \Delta u_2]. \quad (17)$$

Из геометрического смысла «одеяла» очевидно, что числитель в выражении (16) равен

$$\int_{\Delta \Omega_{\text{patch}}(\rho)} w(\mathbf{x} - \mathbf{u}) d\mathbf{u} = 2\rho I(\Delta L) + o(\rho^2), \quad (18)$$

где

$$I(\Delta L) = \int_{\Delta L} w(\mathbf{x} - \mathbf{u}) dS(u_1, u_2) = \iint_{\substack{u_1 \in [u_1^*, u_1^* + \Delta u_1] \\ u_2 \in [u_2^*, u_2^* + \Delta u_2]}} w(\mathbf{x} - \mathbf{u}) \sqrt{1 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_1}\right)^2 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_2}\right)^2} du_1 du_2 \quad (19)$$

— поверхностный интеграл первого рода по части поверхности  $L$ , ограниченной в соответствии с (17),  $o(\rho^2)$  — величина более высокого порядка малости. Знаменатель в (16) отличается от числителя только областью интегрирования, поэтому он также пропорционален  $\rho$ . В пределе  $\rho \rightarrow 0$  выражение (16) принимает вид

$$\lim_{\rho \rightarrow 0} P[\boldsymbol{\nu} \subset \Delta\Omega_{\text{patch}}(\rho) | \boldsymbol{\nu} \subset \Omega_{\text{patch}}(\rho)] = \frac{\iint_{\substack{u_1 \in [u_1^*, u_1^* + \Delta u_1] \\ u_2 \in [u_2^*, u_2^* + \Delta u_2]}} w(\mathbf{x} - \mathbf{u}) \sqrt{1 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_1}\right)^2 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_2}\right)^2} du_1 du_2}{\iint_{(u_1, u_2) \in \Sigma} w(\mathbf{x} - \mathbf{u}) \sqrt{1 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_1}\right)^2 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_2}\right)^2} du_1 du_2}. \quad (20)$$

В пределе  $\rho \rightarrow 0$  условие  $\boldsymbol{\nu} \subset \Delta\Omega_{\text{patch}}(\rho)$  эквивалентно условиям  $u_1 \in [u_1^*, u_1^* + \Delta u_1]$  и  $u_2 \in [u_2^*, u_2^* + \Delta u_2]$ , в то время как  $u_3 = G(u_1, u_2)$ . Пользуясь малостью  $\Delta u_1$  и  $\Delta u_2$ , получаем

$$\begin{aligned} P(u_1 \in [u_1^*, u_1^* + \Delta u_1], u_2 \in [u_2^*, u_2^* + \Delta u_2] | \boldsymbol{\nu} \subset L) &= \\ &= \iint_{\substack{u_1 \in [u_1^*, u_1^* + \Delta u_1] \\ u_2 \in [u_2^*, u_2^* + \Delta u_2]}} f_{\text{OH}}^{\text{patch}}(u_1, u_2 | \mathbf{x}) du_1 du_2 \approx f_{\text{OH}}^{\text{patch}}(u_1^*, u_2^* | \mathbf{x}) \Delta u_1 \Delta u_2. \end{aligned} \quad (21)$$

В свою очередь, числитель (20) равен

$$\begin{aligned} \iint_{\substack{u_1 \in [u_1^*, u_1^* + \Delta u_1] \\ u_2 \in [u_2^*, u_2^* + \Delta u_2]}} w(\mathbf{x} - \mathbf{u}) \sqrt{1 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_1}\right)^2 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_2}\right)^2} du_1 du_2 \approx \\ \approx w(\mathbf{x} - \mathbf{u}^*) \sqrt{1 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_1}\right)^2 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_2}\right)^2} \Delta u_1 \Delta u_2, \end{aligned} \quad (22)$$

где  $\mathbf{u}^* = \{u_1^*, u_2^*, G(u_1^*, u_2^*)\}$ . В результате апостериорная плотность вероятности  $u_1$  и  $u_2$  при условии, что наблюдается вектор  $\mathbf{x}$ , равна

$$\begin{aligned} f_{\text{OH}}^{\text{patch}}(u_1, u_2 | \mathbf{x}) &\propto \\ &\propto \exp\left[-\frac{(x_1 - u_1)^2}{2\sigma_1^2}\right] \exp\left[-\frac{(x_2 - u_2)^2}{2\sigma_2^2}\right] \exp\left\{-\frac{[x_3 - G(u_1, u_2)]^2}{2\sigma_3^2}\right\} \sqrt{1 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_1}\right)^2 + \left(\frac{\partial G}{\partial u_2}\right)^2}. \end{aligned} \quad (23)$$

В случае проведения подобного анализа в другой параметризации поверхности, например  $u_2 = Z(u_1, u_3)$ , получим

$$\begin{aligned} f_{\text{O}_3}^{\text{patch}}(u_1, u_3 | \mathbf{x}) &\propto \\ &\propto \exp\left[-\frac{(x_1 - u_1)^2}{2\sigma_1^2}\right] \exp\left\{-\frac{[x_2 - Z(u_1, u_3)]^2}{2\sigma_2^2}\right\} \exp\left[-\frac{(x_3 - u_3)^2}{2\sigma_3^2}\right] \sqrt{1 + \left(\frac{\partial Z}{\partial u_1}\right)^2 + \left(\frac{\partial Z}{\partial u_3}\right)^2}. \end{aligned} \quad (24)$$

Нетрудно показать, что плотности вероятности (23) и (24) эквивалентны с точностью до замены переменных, т. е.  $f_{\text{OH}}^{\text{patch}}(u_1, u_3 | \mathbf{x}) \propto f_{\text{O}_3}^{\text{patch}}(u_1, u_3 | \mathbf{x})$ .

Таким образом, выше представлены некоторые варианты введения априорных ограничений, соответствующие разным способам перехода от объёмных вероятностных распределений к поверхностным и приводящие, вообще говоря, к различным видам апостериорной плотности вероятности.

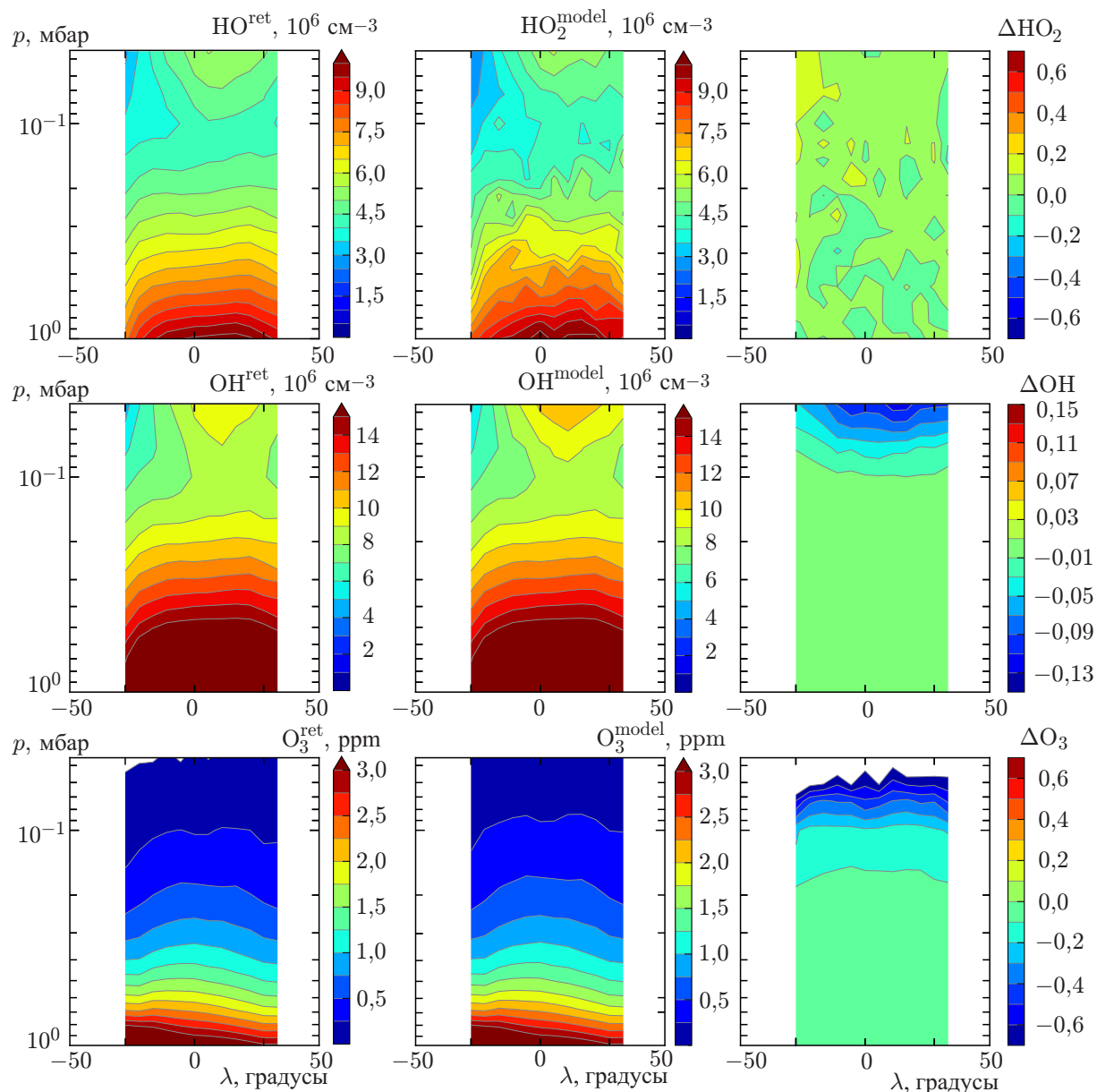


Рис. 1. Усреднённые по пространству (по долготе) и времени (за июль 2005 года) дневные распределения концентраций  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$ : результаты восстановления (левый столбец) с использованием апостериорной плотности вероятности (6), модельные данные (средний столбец) и их относительная разница (правый столбец)

#### 4. РЕЗУЛЬТАТЫ ПРИМЕНЕНИЯ РАЗЛИЧНЫХ ВАРИАНТОВ АПОСТЕРИОРНОЙ ФУНКЦИИ К ОБРАБОТКЕ МОДЕЛЬНЫХ И РЕАЛЬНЫХ ДАННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

Как уже упоминалось, рассматриваемый метод оценки качества данных измерений приносит неизбежную систематическую ошибку (ошибку метода), т. е. даже в случае идеальных данных, в которых нет систематической ошибки измерений, результат применения метода может заметно отличаться от исходных данных. Оценку систематической погрешности метода можно получить,

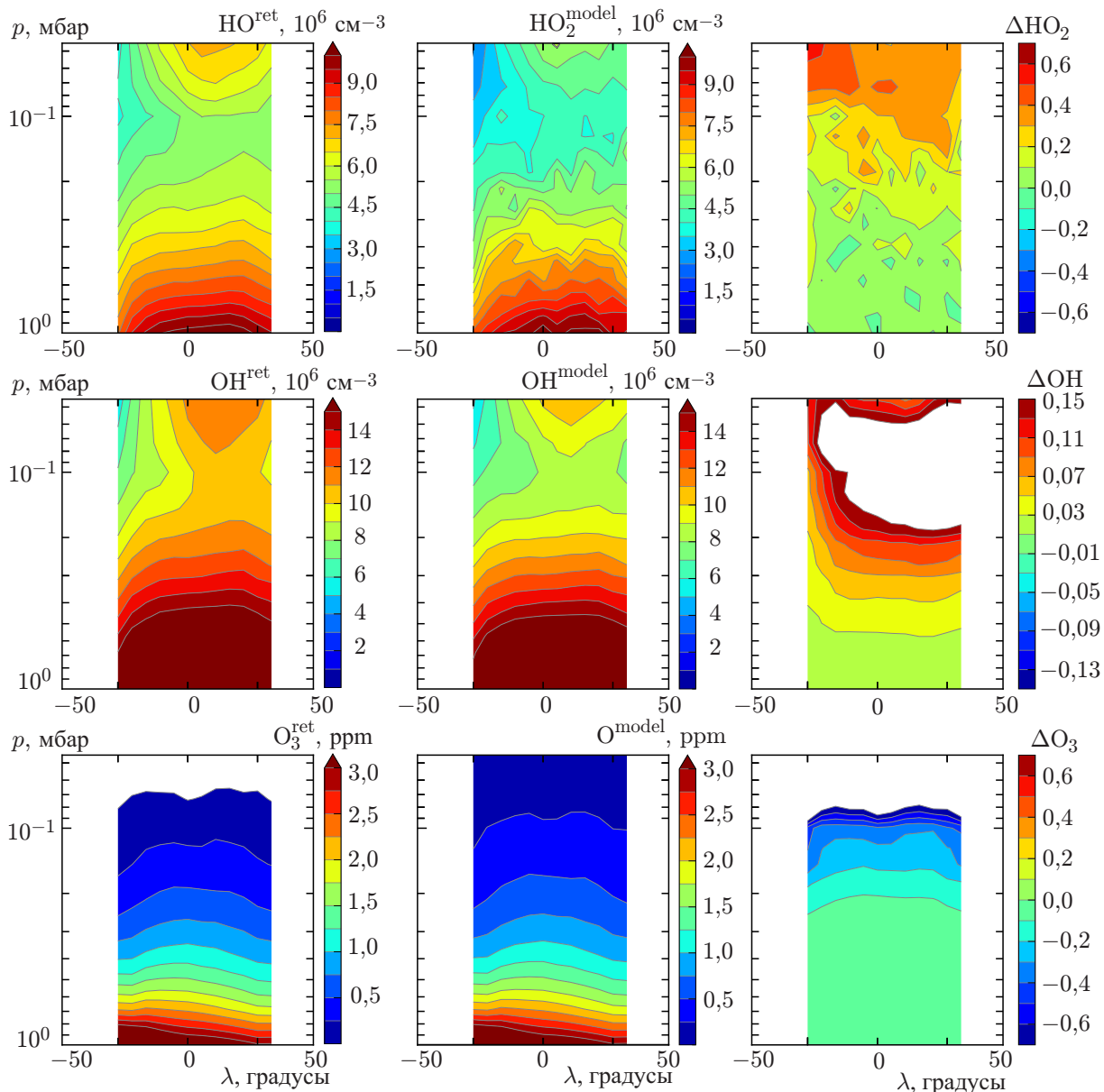


Рис. 2. Усреднённые по пространству (по долготе) и времени (за июль 2005 года) дневные распределения концентраций OH, HO<sub>2</sub> и O<sub>3</sub>: результаты восстановления (левый столбец) с использованием апостериорной плотности вероятности (9), модельные данные (средний столбец) и их относительная разница (правый столбец)

применив его к идеальным данным, имитирующим измерения спутника. Такие данные были получены с помощью расчёта годового цикла эволюции мезосферы—нижней термосферы посредством описанной в разделе 1 глобальной химико-транспортной модели и соответствуют июлю 2005 года. Из реальных спутниковых данных MLS/Aura за тот же период была взята информация об орбите спутника (положение, дата и дневное локальное время в моменты измерений), уровнях давления, на которых проводились измерения концентраций OH, HO<sub>2</sub> и O<sub>3</sub>, и величинах ожидаемых ошибок (дисперсиях) этих измерений. Рассматривался диапазон давлений  $p = 1 \pm 0,046$  гПа (соответствует высотам примерно  $50 \div 70$  км), где данные MLS/Aura пригодны для научных приложений [38–40]. Из результатов расчётов брались вертикальные распределения температуры и концентраций HO<sub>2</sub>

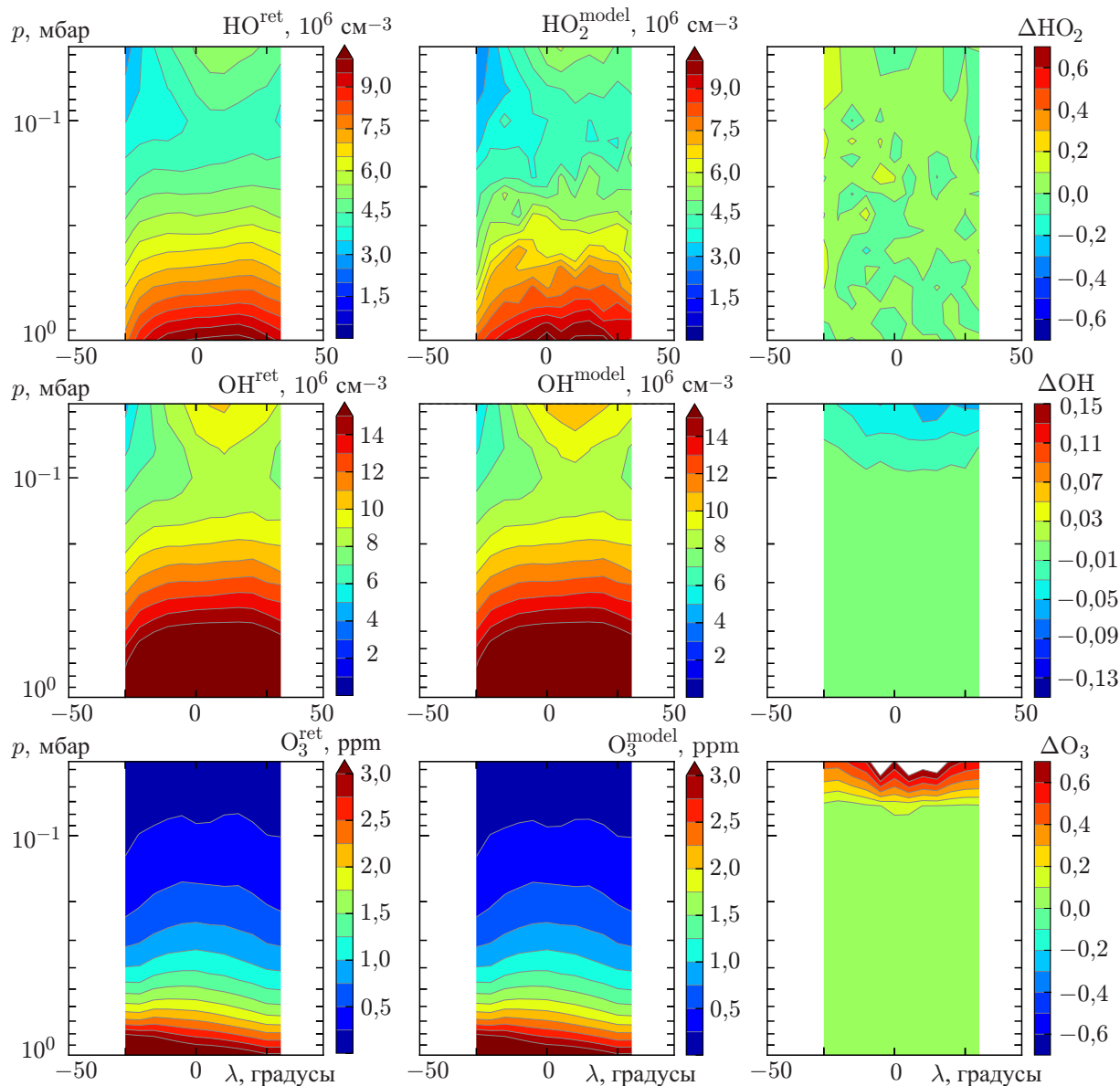


Рис. 3. Усреднённые по пространству (по долготе) и времени (за июль 2005 года) дневные распределения концентраций  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$ : результаты восстановления (левый столбец) с использованием апостериорной плотности вероятности (11), модельные данные (средний столбец) и их относительная разница (правый столбец)

и  $\text{O}_3$  в указанном диапазоне давлений и интерполировались на траекторию спутника. Затем по ним вычислялись локальные профили концентрации  $\text{OH}$  с помощью алгебраической связи (1), в которой использовались те же коэффициенты реакций (прежде всего, существенно зависящий от локального времени и высоты коэффициент фотодиссоциации озона), что и в последующем алгоритме восстановления. Наконец, к полученным модельным распределениям концентраций был добавлен гауссов шум с характеристиками, отвечающими данным MLS/Aura.

На рис. 1–4 представлены результаты обработки модельных (идеальных) данных с использованием апостериорных плотностей вероятности (6), (9), (11) и (23) соответственно<sup>1</sup>. Для каждого

<sup>1</sup> На рисунках концентрация  $\text{O}_3$  выражена в миллионных долях (parts per million, ppm);  $\lambda$  — географическая

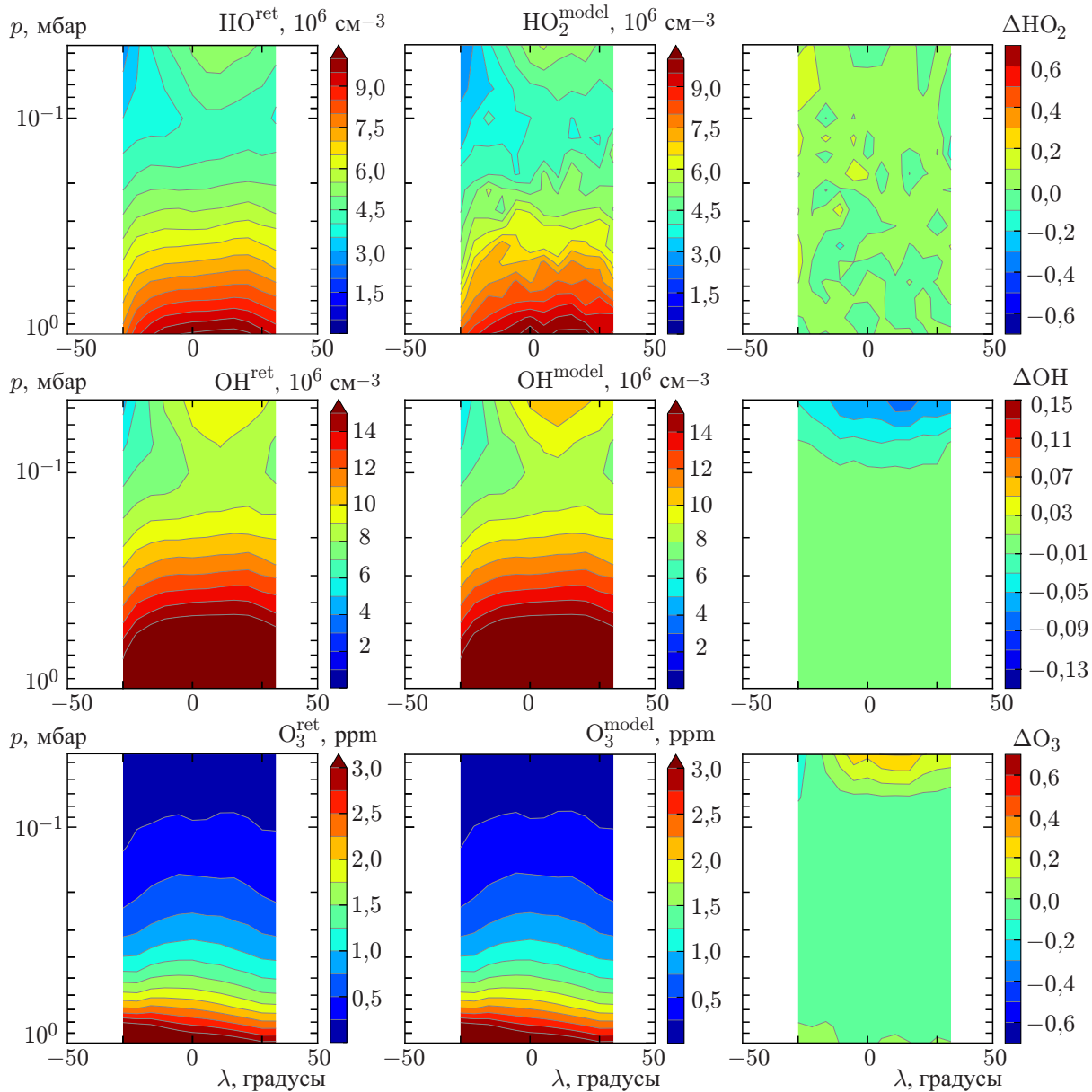


Рис. 4. Усреднённые по пространству (по долготе) и времени (за июль 2005 года) дневные распределения концентраций  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$ : результаты восстановления (левый столбец) с использованием апостериорной плотности вероятности (23), модельные данные (средний столбец) и их относительная разница (правый столбец)

спутникового измерения (сгенерированного, как указано выше) на определённом уровне давления строилась соответствующая апостериорная плотность, производилось её семплирование и по полученному ансамблю находилось среднее. Рисунки 1–4 демонстрируют, как результаты применения метода в среднем за месяц отличаются от исходных данных. Отметим, что, поскольку количество профилей, попавших в каждую ячейку усреднения по времени и пространству, составляет величину порядка 3 000, влияние конкретной реализации шума на средние значения заметно

широта. Относительная разность концентраций  $X^{\text{ret}}$  и  $X^\alpha$  вычисляется по формуле  $\Delta X = (X^{\text{ret}} - X^\alpha)/X^\alpha$ , где  $\alpha = \{\text{model, MLS}\}$ ,  $X = \{\text{OH, HO}_2 \text{ и } \text{O}_3\}$ .

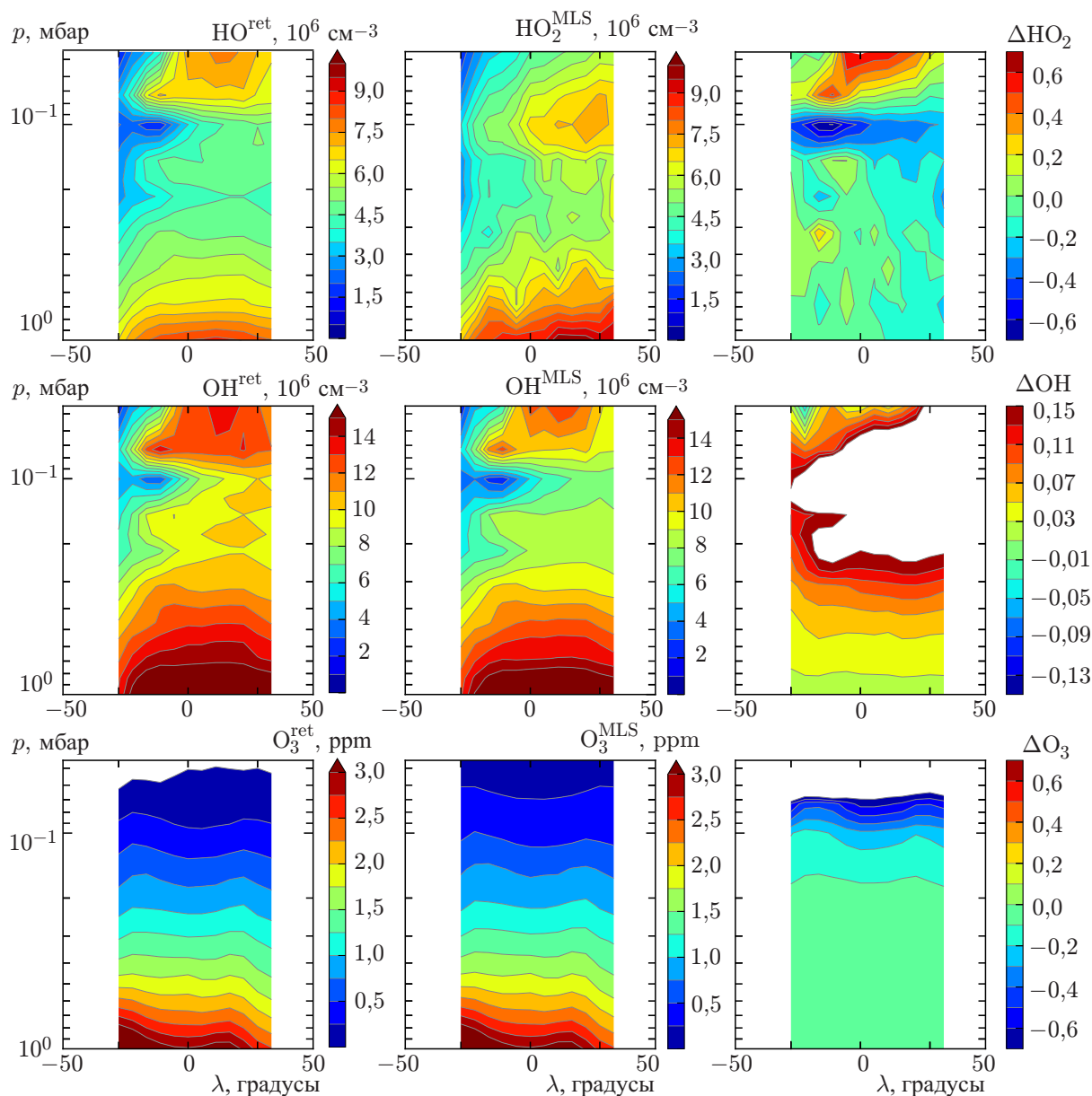


Рис. 5. Усреднённые по пространству (по долготе) и времени (за июль 2005 года) дневные распределения концентраций OH, HO<sub>2</sub> и O<sub>3</sub>: результаты восстановления (левый столбец) с использованием априорной плотности вероятности (9), измерения MLS/Aura (средний столбец) и их относительная разница (правый столбец)

только в концентрации HO<sub>2</sub>. Это вызвано большой относительной дисперсией шума её измерения, которая для спутника MLS/Aura в диапазоне  $1 \div 0,046$  гПа в среднем составляет  $100 \div 1000$  % [14]. Можно видеть, во-первых, что плотность вероятности (9) является наихудшей с точки зрения её использования при статистической оценке качества данных реальных измерений, она приводит к значительным (вплоть до 100 %) систематическим смещениям всех трёх восстановленных компонент. В случае функций (6) и (11) ошибки в восстановленных распределениях концентраций OH и HO<sub>2</sub> оказываются незначительными, но возникают заметные (более 50 %) систематические ошибки восстановления концентрации O<sub>3</sub> на больших высотах. Наконец, лучшей является апостериорная плотность вероятности (23), в частности систематические

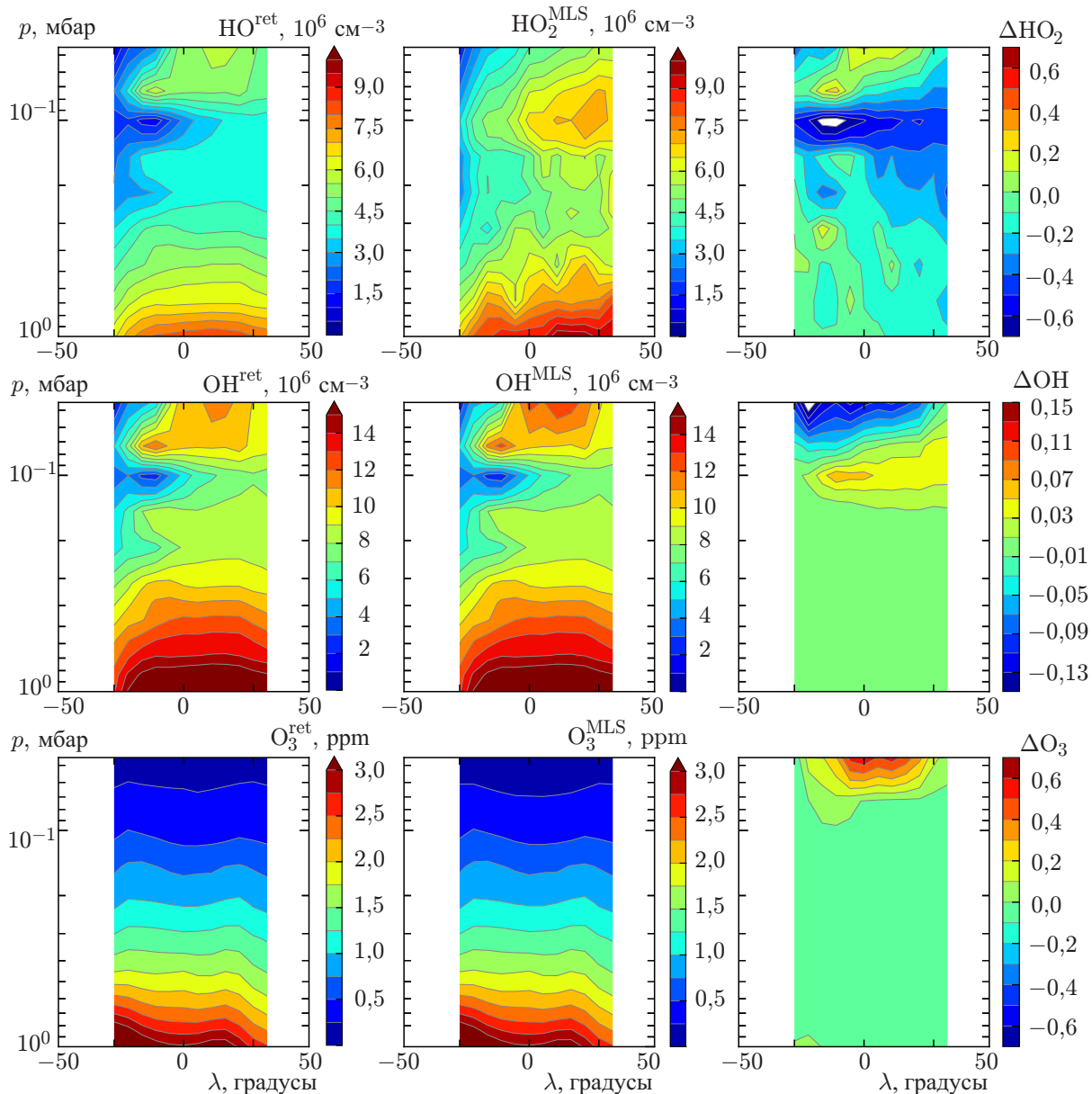


Рис. 6. Усреднённые по пространству (по долготе) и времени (за июль 2005 года) дневные распределения концентраций  $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$  и  $\text{O}_3$ : результаты восстановления (левый столбец) с использованием априорной плотности вероятности (23), измерения MLS/Aura (средний столбец) и их относительная разница (правый столбец)

отклонения в распределении концентрации  $\text{O}_3$  на больших высотах, возникающие в результате её применения, не превышают  $20 \div 30\%$ .

На рис. 5 и 6 представлены результаты обработки реальных спутниковых данных измерений MLS/Aura за июль 2005 года с использованием апостериорных плотностей вероятности (9) и (23) соответственно. Можно видеть, во-первых, что применение наихудшей (в указанном выше смысле) плотности вероятности приводит к тем же систематическим отклонениям восстановленных распределений от исходных, что и в предыдущем случае (см. рис. 2), которые скрывают действительные ошибки измеренных данных. Более того, в восстановленных распределениях концентрации  $\text{OH}$  возникают нереалистичные локальные максимумы. Во-вторых, применение апо-

стериорной плотности вероятности (23) подтверждает выводы работы [14], сделанные на основе данных за январь, май и сентябрь 2005 года, что данные измерений концентрации  $\text{HO}_2$  спутником MLS/Aura содержат существенные систематические ошибки и, в частности, значительно занижают положение мезосферного максимума. Это обстоятельство серьёзно ограничивает применимость этих данных MLS/Aura по концентрации  $\text{HO}_2$  для решения классических проблем аэронамии средней атмосферы, в частности  $\text{HO}_x$ -дилеммы и проблемы дефицита озона [41–43], которые обсуждаются несколько последних десятилетий.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе рассмотрены математические особенности метода статистической оценки качества данных измерений, связанные с неоднозначностью введения априорных ограничений (которая отвечает разным способам перехода от объёма к поверхности) и приводящие к различным видам апостериорной плотности вероятности. Показано, что апостериорная плотность вероятности, соответствующая переходу от объёма к поверхности типа «одеяло», приводит к наименьшим систематическим ошибкам оцениваемых характеристик атмосферы. Таким образом, в данной работе завершена разработка метода статистической оценки качества данных одновременных спутниковых измерений концентраций малых примесей в атмосфере, который в последующих исследованиях будет использован для анализа многолетней базы данных MLS/Aura и других спутниковых программ по исследованию фотохимии мезосферы и нижней термосферы.

Работа выполнена в рамках программы Президиума РАН № 9 «Терагерцовая оптоэлектроника и спинтроника» (проект 0035–2018–0002) при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 17–05–01142).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Chameides W. // J. Geophys. Res. 1975. V. 80, No. 36. P. 4989.
2. Stedman D. H., Chameides W., Jackson J. O. // Geophys. Res. Lett. 1975. V. 2, No. 1, P. 22.
3. Sobanski N., Tang M. J., Thieser J., et al. // Atmos. Chem. Phys. 2016. V. 16. P. 4867.
4. Pyle J. A., Zavody A. M., Harries J. E., Moffat P. H. // Nature. 1983. V. 305. P. 690.
5. Wetzel G., Oelhaf H., Kirner O., et al. // Atmos. Chem. Phys. 2012. V. 12. P. 6581.
6. Marchand M., Bekki S., Lefevre F., Hauchecorne A. // Geophys. Res. Lett. 2007. V. 34. Art. no. L24809.
7. Evans W. F. J., Llewellyn E. J. // J. Geophys. Res. 1973. V. 78. P. 323.
8. Mlynchak M. G., Hunt L. A., Marshall B. T., et al. // J. Geophys. Res. 2014. V. 119. P. 3516.
9. Smith A. K., Marsh D. R., Mlynchak M. G., Mast J. C. // J. Geophys. Res. 2010. V. 115. Art. no. D18309.
10. Siskind D. E., Marsh D. R., Mlynchak M. G., et al. // Geophys. Res. Lett. 2008. V. 35. Art. no. L13809.
11. Douglass A. R., Jackman C. H., Stolarski R. S. // J. Geophys. Res. 1989. V. 94, No. D7. P. 9862.
12. Rasch P. J., Boville B. A., Brasseur G. P. // J. Geophys. Res. 1995. V. 100, No. D5. P. 9041.
13. Tulet P., Grini A., Griffin R. J., Petitcol S. // J. Geophys. Res. 2006. V. 111. Art. no. D23208.
14. Kulikov M. Y., Nechaev A. A., Belikovich M. V., et al. // Atmos. Chem. Phys. 2018. V. 18. P. 7453.
15. Millán L., Wang S., Livesey N., et al. // Atmos. Chem. Phys. 2015. V. 15. P. 2889.
16. Lee W., Kanamori H., Jennings P., Kisslinge C. Intern. Handbook of Earthquake & Engineering Seismology. Part A. V. 81A. Cambridge (Massachusetts): Academic Press, 2003. 1200 p.

17. [http://www.ipgp.fr/~tarantola/Files/Professional/Papers\\_PDF/InverseProblemHandbk.pdf](http://www.ipgp.fr/~tarantola/Files/Professional/Papers_PDF/InverseProblemHandbk.pdf).
18. Sonnemann G., Kremp C., Ebel A., Berger U. // Atmos. Environ. 1998. V. 32. P. 3 157.
19. de Grandpre J., Beagley S.R., Fomichev V.I., et al. // J. Geophys. Res. Atmos. 2000. V. 105. P. 26 475.
20. Scinocca J.F., McFarlane N.A., Lazare M., et al. // Atmos. Chem. Phys. 2008. V. 8. P. 7 055.
21. Körner U., Sonnemann G.R. // J. Geophys. Res. Atmos. 2001. V. 106. P. 9 639.
22. Grygalashvyly M., Sonnemann G.R., Hartogh P. // Atmos. Chem. Phys. 2009. V. 9. P. 2 779.
23. Grygalashvyly M., Becker E., Sonnemann G.R. // J. Geophys. Res. 2011. V. 116. Art. no. D18302.
24. Grygalashvyly M., Becker E., Sonnemann G.R. // Space Sci. Rev. 2012. V. 168. P. 333.
25. Hartogh P., Jarchow C., Sonnemann G.R., Grygalashvyly M. // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. Art. no. D18303.
26. Hartogh P., Sonnemann G.R., Grygalashvyly M., Jarchow Ch. // Adv. Space Res. 2011. V. 47. P. 1937.
27. Sonnemann G.R., Grygalashvyly M., Hartogh P., Jarchow C. // Adv. Space Res. 2006. V. 38. P. 2 402.
28. Sonnemann G.R., Hartogh P., Jarchow C., et al. // Adv. Space Res. 2007. V. 40. P. 846.
29. Kulikov M.Y., Belikovich M.V., Grygalashvyly M., et al. // Ann. Geophys. 2017. V. 35. P. 677.
30. Belikovich M.V., Kulikov M.Y., Grygalashvyly M., et al. // Adv. Space Research. 2018. V. 61, No. 1. P. 426.
31. Kulikov M.Yu., Belikovich M.V., Grygalashvyly M., et al. // J. Geophys. Res. Atmos. 2018. V. 123, No. 6. P. 3 228.
32. Burkholder J.B., Sander S.P., Abbatt J., et al. Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies. Evaluation No. 18, JPL Publication 15-10. Pasadena: Jet Propulsion Laboratory, 2015. 1 392 p.
33. Куликов М.Ю., Мухин Д.Н., Фейгин А.М. // Изв. вузов. Радиофизика. 2009. Т. 52, № 9. С. 690.
34. Нечаев А.А., Ермакова Т.С., Куликов М.Ю. // Изв. вузов. Радиофизика. 2016. Т. 59, № 7. С. 605.
35. Rodgers C.D. Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice. Singapore: World Scientific Publishing Co., 2000. 238 p.
36. Chib S., Greenberg E. Understanding the Metropolis-Hastings Algorithm, The American Statistician. 1995. V. 49, No. 4. P. 327.
37. [https://en.wikipedia.org/wiki/Borel%E2%80%93Kolmogorov\\_paradox](https://en.wikipedia.org/wiki/Borel%E2%80%93Kolmogorov_paradox).
38. Wang S., Pickett H., Livesey N., Read W. MLS/Aura Level 2 Hydroperoxy (HO<sub>2</sub>) Mixing Ratio V004. Greenbelt: Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center, 2015. doi:10.5067/AURA/MLS/DATA2013.
39. Wang S., Livesey N., Read W. MLS/Aura Level 2 Hydroxyl (OH) Mixing Ratio V004. Greenbelt: Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center, 2015. doi:10.5067/AURA/MLS/DATA2018.
40. Schwartz M., Froidevaux L., Livesey N., Read W. MLS/Aura Level 2 Ozone (O<sub>3</sub>) Mixing Ratio V004. Greenbelt: Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center, 2015. doi:10.5067/AURA/MLS/DATA2017.
41. Solomon S., Rusch D.W., Thomas R.J., Eckman R.S. // Geophys. Res. Lett. 1983. V. 10. P. 249.
42. Summers M.E., Conway R.R., Siskind D.E., et al. // Science. V. 277. 1997. P. 1 967.
43. Siskind D.E., Stevens M.H., Englert C.R., Mlynchzak M.G. // J. Geophys. Res. Atmos. 2013. V. 118. P. 195.

Поступила в редакцию 17 мая 2018 г.; принята в печать 26 сентября 2018 г.

## EVALUATION OF THE ATMOSPHERIC MINOR SPECIES MEASUREMENTS: A PRIORI STATISTICAL CONSTRAINTS BASED ON PHOTOCHEMICAL MODELING

*M. V. Belikovich, M. Yu. Kulikov, A. A. Nechaev, and A. M. Feigin*

The paper discusses the features of the previously published method of the Bayesian statistical evaluation of simultaneous satellite measurements of the minor species OH, HO<sub>2</sub>, and O<sub>3</sub> at the mesospheric altitudes. These features are due to the introduction of *a priori* constraints on true concentration values (masked by measurement noise), which are determined by the condition of photochemical equilibrium of the species. The method is based on the probabilistic view of the satellite measurement process where the true concentrations of OH, HO<sub>2</sub>, and O<sub>3</sub> are considered as random variables. In such a technique, we construct *a posteriori* probability density of these variables and compare its statistical characteristics with the initial measurement data. It is shown that there is ambiguity in the construction of the *a posteriori* probability density of OH, HO<sub>2</sub>, and O<sub>3</sub>, which is due to the different ways of limiting transition from the three-dimensional probability distribution to the surface one. The ambiguity significantly affects the statistical means and leads to an inevitable systematic error. We present the main options for choosing the probability density, depending on the type of the transition. To estimate the systematic error, we tested the method by using artificial noisy model data on OH, HO<sub>2</sub>, and O<sub>3</sub> that simulate perfect (unbiased) measurements. It is shown that choosing a patch transition leads to the least systematic error. Applying the method to MLS/Aura data of July 2005 confirmed the conclusion made earlier that the satellite measurements of the HO<sub>2</sub> concentration have a significant bias greatly exceeding the systematic error of the method. This leads, in particular, to a significant error in the localization of the concentration maximum of this component at the mesospheric altitudes.