

基于OMI的亚洲地区对流层NO₂高分辨率反演产品POMINO v2.1及其与其他产品的定量对比

张宇航¹, 林金泰¹, 刘梦瑶², 孔浩¹, 陈璐璐¹, 翁宏健¹, 李春锦¹

1. 北京大学 物理学院大气与海洋科学系 气候与海气实验室, 北京 100871;

2. 荷兰皇家气象学会(KNMI), 德比尔特 3731GA

摘要: 对流层二氧化氮(NO₂)是一种重要的痕量污染气体。现有基于OMI卫星探测器、覆盖亚洲地区的NO₂公开产品QA4ECV、OMNO2和POMINO受到广泛使用,然而对于这三个产品的差异的定量认识仍然不足。我们将前期开发的POMINO产品进行了改进和优化,更新至v2.1并将反演区域扩大至覆盖东亚、东南亚和南亚大部分地区,随后定量分析了QA4ECV、OMNO2 v4和POMINO v2.1对流层NO₂垂直柱浓度在2015年—2020年在不同采样条件下的异同。结果显示,POMINO版本的更新对自身NO₂柱浓度反演结果的整体影响较小(<10%)。当3个产品均基于POMINO v2.1进行一致采样时,产品之间在整个亚洲区域的平均差异约为10%,在京津冀等污染地区的差异最高可达40%。3个产品均显示,京津冀地区NO₂柱浓度在五年间下降了约30%,而长三角地区的变化趋势较小。当3个产品进行分别采样时,POMINO v2.1的有效数据量比其他两个产品增加了11%—44%,特别是更好地保留了重污染情形下的NO₂数据,从而降低了采样引起的对NO₂污染水平的系统性低估。本研究对于NO₂卫星产品差异的定量分析有助于认识氮氧化物污染状况以及排放和影响评估。

关键词: 卫星遥感,氮氧化物,OMI探测器,对流层NO₂垂直柱浓度,气溶胶,数据采样,大气污染

引用格式: 张宇航,林金泰,刘梦瑶,孔浩,陈璐璐,翁宏健,李春锦.2022.基于OMI的亚洲地区对流层NO₂高分辨率反演产品POMINO v2.1及其与其他产品的定量对比.遥感学报,26(5): 971-987

Zhang Y H, Lin J T, Liu M Y, Kong H, Chen L L, Weng H J and Li C H. 2022. High-resolution Tropospheric NO₂ Retrieval over Asia based on OMI POMINO v2.1 and quantitative comparison with other products. National Remote Sensing Bulletin, 26(5):971-987[DOI: 10.11834/jrs.20221413]

1 引言

氮氧化物(NO_x=NO+NO₂)是大气痕量气体的重要组成部分,其排放主要来自生物质燃烧、土壤、闪电等自然源,以及能源、工业、交通、民用等人为源(Krotkov等,2016;van der A等,2017;Lin,2012;Beirle等,2011)。氮氧化物是对流层臭氧和PM_{2.5}污染的重要前体物之一,对大气污染和人体健康有着显著的负面影响,同时也会通过复杂的相互作用机制影响局地的天气和气候条件(Gu等,2014,2013;Kong等,2019;Lin和McElroy,2011;Shindell等,2009;Hoek等,

2013;Martin,2008;Walker等,2010;Seinfeld和Pandis,2016)。对氮氧化物长时间、全球化的监测对估计和控制氮氧化物排放、研究对流层大气化学机制、探讨大气污染的长期变化和环境影响都具有重要的意义(Gu等,2013;Lorente等,2017;Kong等,2019)。

卫星遥感技术的发展为NO₂的探测提供了前所未有的新视角。相较于地面和飞机观测,卫星反演能够提供全球化的、时空连续性更好的观测数据,为研究NO₂和其他大气污染物的空间分布特征和时间变化趋势提供了新的机遇(Boersma等,2004,2011,2018)。自第一颗搭载着紫外波段高

收稿日期:2021-06-15;预印本:2021-10-23

基金项目:国家自然科学基金(编号:41775115,42075175);第二次青藏高原综合科学考察研究(编号:2019QZKK0604)

第一作者简介:张宇航,研究方向为卫星遥感与痕量气体反演.E-mail:yuhang_zhang@pku.edu.cn

通信作者简介:林金泰,研究方向为大气化学、卫星遥感和全球化大气污染.E-mail:linjt@pku.edu.cn

关联数据获取:基于POMINO算法以及OMI和TROPOMI探测器的数据产品(Level-2和Level-3数据)可在<http://www.pku-atmos-acm.org/acmProduct.php/>上免费下载

光谱仪 GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) 的卫星成功发射并应用后, 对流层 NO_2 垂直柱浓度的卫星反演技术得到快速发展。后续发射的探测器包括 SCIAMACHY (SCanning Imaging Absorption spectrometer for Atmospheric CHartographY), OMI (Ozone Monitoring Instrument), GOME-2 (A) 以及 TROPOMI (TROPOspheric Monitoring Instrument) 等。中国高分五号卫星 (GF-5) 上搭载的 EMI 探测器也可实现 NO_2 探测, 不过目前该卫星已经停止运行, 并且尚未见公开的产品。这些探测器搭载在不同的太阳同步卫星上, 在一天或几天内观测区域即可几乎覆盖整个地球表面。如附录表 A1 所示 (参见论文电子版), 随着技术的发展, 探测器的寿命越来越长, 探测数据的空间分辨率越来越高, 为基于卫星遥感的对流层 NO_2 的反演与研究提供了可靠的支撑。其中, OMI 是第一个包含紫外和可见光波段的高光谱仪, 可对众多痕量气体提供全球的连续观测, 星下点的分辨率达到 $13 \text{ km} \times 24 \text{ km}$ (Lin 等, 2014; Boersma 等, 2011)。目前, 基于 OMI 探测器、覆盖亚洲地区的 NO_2 公开产品包括 QA4ECV、OMNO2 (最新版本为 v4) 和 POMINO (最新版本为 v2.0.1, 覆盖中国大陆及周边地区), 这些数据产品受到广泛使用, 为认识亚洲地区的 NO_x 污染特征、机制、来源和影响提供了重要数据基础 (Lin 等, 2015; Liu 等, 2019; Boersma 等, 2011; Lamsal 等, 2021; Boersma 等, 2018; Shah 等, 2020; He 等, 2020; Qin 等, 2020)。

基于紫外/可见光波段光谱资料的对流层 NO_2 垂直柱浓度卫星反演算法可分为 3 步: (1) 使用差分光学吸收光谱 DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy) 算法进行光谱拟合, 得到沿光路的 NO_2 总斜柱浓度; (2) 通过一定的分离算法对总斜柱浓度进行平流层—对流层分离, 得到对流层 NO_2 斜柱浓度; (3) 结合大气化学模式和辐射传输模式计算对流层的空气质量因子 AMF (Air Mass Factor), 将对流层 NO_2 斜柱浓度转化为垂直柱浓度 (Boersma 等, 2011)。基于不同卫星探测器反演得到的产品之间会有系统性的偏差, 同时不同的反演算法、先验参数和辐射/化学传输模式等也是反演结果主要的误差来源 (Boersma 等, 2018, 2004, 2011; Lorente 等, 2017)。已有研究表明, 清洁地区对流层 NO_2 垂直柱浓度的反演误差主要来自于光谱资料的拟合和平流层—对流层分

离。在这些地区, 一方面 NO_2 的吸收信号较弱, 光谱拟合的相对误差很大; 另一方面, 平流层的 NO_2 浓度与对流层 NO_2 浓度相当或相对更高, 使用参考扇区法、数据同化等分离方法得到的结果无明显区别 (Dirksen 等, 2011; Bucsele 等, 2013; Geddes 等, 2018; Van Geffen 等, 2015)。相反, 在重污染地区, 算法前两步导致的误差占比很小 (分别约为 5% 和 10%), 而对流层空气质量因子 AMF 的误差贡献能达到 30%—60% (Boersma 等, 2004, 2018; Lin 等, 2014; Lorente 等, 2017)。

在计算 AMF 的过程中, 对地表反射率、气溶胶光学参数、云参数和 NO_2 先验廓线的处理是误差的主要来源, 而不同算法对这些先验参数的不同处理方式也是产品间差异的主要原因 (Boersma 等, 2011; Lin 等, 2015; Liu 等, 2019; Vasilkov 等, 2021; Zhou 等, 2010)。例如, 当前几乎所有公开产品的算法都以“有效”云来简单处理气溶胶的辐射效应, 并进一步用基于此方法反演得到的云参数去计算 NO_2 的 AMF, 从而“隐性”地表表征气溶胶的作用。但是近期的一系列研究表明, 在高气溶胶浓度的条件下, 显性表征气溶胶的光学效应才能更准确地实现云参数反演和对流层 AMF 计算, 并获得更多的有效数据, 减少系统性采样偏差。与地基资料的对比表明, 显性表征气溶胶可以明显降低高污染情况下对流层 NO_2 垂直柱浓度的反演误差, 反演结果也能更好地体现 NO_2 的日际变化特征 (Lin 等, 2015, 2014; Liu 等, 2019, 2020)。然而, 相比于 OMI 卫星产品的应用研究, 目前对于主要 OMI 卫星产品定量对比分析的研究仍然存在不足, 主要集中在较为有限的时间段 (例如特定年份), 缺乏较长时间的数据对比分析 (Lin 等, 2014, 2015; Lorente 等, 2017; Lamsal 等, 2021; Boersma 等, 2018)。考虑到亚洲地区, 尤其是中国的气溶胶在近些年发生了巨大的变化, 对 NO_2 的卫星反演可能存在显著影响, 因此在长时间尺度上对不同产品的对比十分重要。

在本研究中, 首先将 POMINO 产品更新至 v2.1, 特别是将反演区域扩大至覆盖东亚、东南亚和南亚大部分地区, 同时修复了部分错误, 并进一步与 QA4ECV 和 OMNO2 v4 产品在 2015 年—2020 年的结果做了定量对比。在此基础上, 通过敏感性试验、采样方法变化等手段, 探讨了 POMINO 产品更新的影响、3 个卫星产品的异同及

其原因、采样方式可能引起的系统性偏差、气溶胶光学效应的表征方式（显性或隐性）对于NO₂反演误差和采样误差的影响等问题，为进一步认识不同卫星反演算法和产品的差异、更好地使用卫星数据提供依据。

2 方法和数据

2.1 POMINO反演算法

目前公开的POMINO产品覆盖中国及周边地区（20°N—53°N，80°E—130°E），其反演算法建立在DOMINO算法的基础上，重点改进了对流层AMF的计算，并开发了AMFv6并行计算软件（图1）（Lin等，2014，2015；Liu等，2019）。该算法采用LIDORT v3.6辐射传输模式对每一个像元进行辐射传输计算，在反演过程中显性表征了气溶胶光学效应和地表反射率的各向异性的作用，并实现了对云参数和NO₂的协同反演。采用GEOS-Chem

v9-02的区域嵌套化学传输模式（分辨率：0.25° lat.×0.3125° lon.）模拟的逐日气溶胶光学厚度（AOD）、单次散射反照率（SSA）、散射相函数以及垂直廓线来表征气溶胶的光学效应，并进一步利用MODIS的月平均AOD数据以及基于2007年—2015年CALIOP气溶胶廓线构建的气候态月平均气溶胶消光廓线对相应的模式数据进行了约束。在陆地及近岸海域，采用MODIS MCD43C2 C6数据提供的双向反射分布函数（BRDF）3个核（各向同性核，体积核和几何核）的系数并对其进行必要的时空插值，得到5 km分辨率格点化的BRDF核系数，然后再通过空间匹配和时间插值得到每一个卫星像元对应的3个核系数值；对于开放洋面，直接使用OMLER v3的地表反照率数据（Lucht等，2000；Zhou等，2010；Schaepman-Strub等，2006）。另外，还采用了驱动GEOS-Chem模型的GEOS-FP气象同化资料提供的温度和气压廓线等气象参数作为输入进行辐射传输计算。

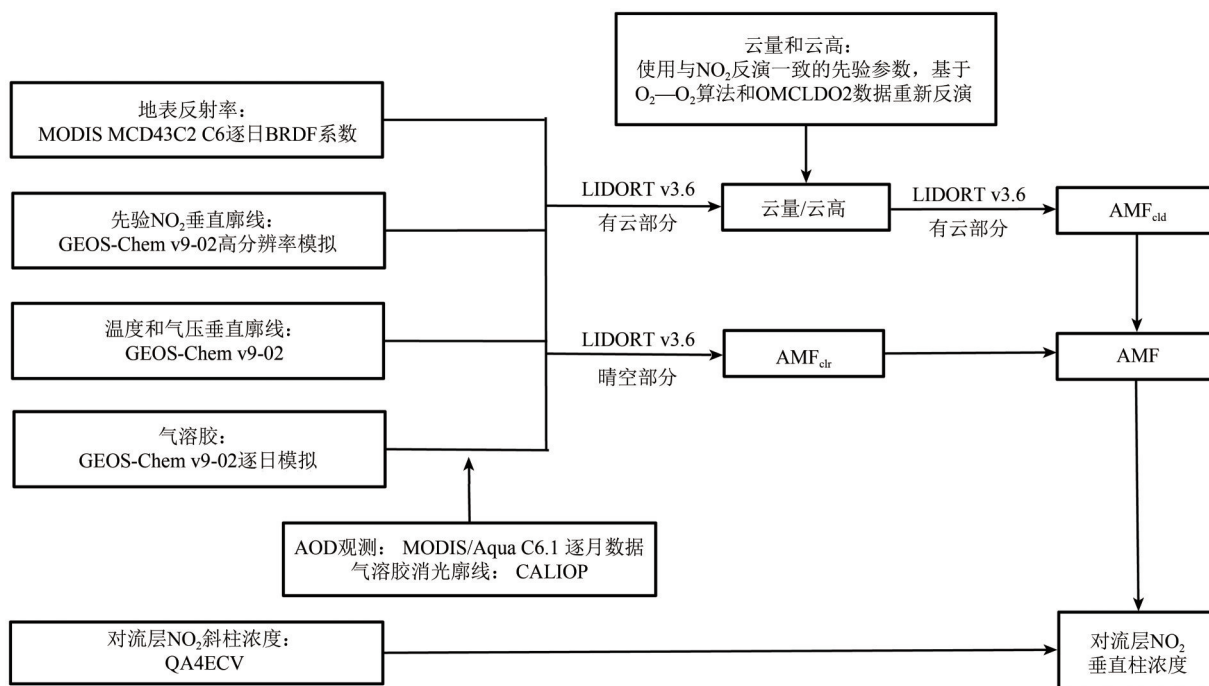


图1 POMINO v2.1反演算法的流程图

Fig. 1 Flow chart of POMINO v2.1 retrieval algorithm

在反演NO₂之前，POMINO算法先基于O₂-O₂云反演算法，采用OMCLDO2数据提供的大气层顶反射率和O₂-O₂斜柱浓度，在显性表征气溶胶光学效应和地表反射率各向异性的条件下，重新反演表征云覆盖率的云分数和表征云顶高度的云气压（Veefkind等，2016）。之后，POMINO算法再使用

协调的先验参数来计算对流层NO₂的AMF。采用独立像元近似（IPA）的方法，运用LIDORT分别计算每个像元的晴空部分的AMF（ M_{cr} ）和完全被云“覆盖”部分的AMF（ M_{cl} ），最后利用加权平均获得总的AMF（式（1））（Palmer等，2001）。

$$M = wM_{cl} + (1 - w)M_{cr} \quad (1)$$

$$w = \frac{f_{\text{eff}} I_{\text{clid}}}{R} = \frac{f_{\text{eff}} I_{\text{clid}}}{f_{\text{eff}} I_{\text{clid}} + (1 - f_{\text{eff}}) I_{\text{clr}}} \quad (2)$$

式中, w 是云辐射分数, 表示像元中有云部分对 TOA 处反射辐射的贡献比例, 其计算公式如式 (2) 所示, 其中 f_{eff} 表示云分数, I_{clr} 和 I_{clid} 分别表示像元晴空部分和有云部分对 TOA 处反射辐射的贡献, R 表示 TOA 处的总反射辐射。最后, 将 QA4ECV 产品中 L2 对流层 NO_2 斜柱浓度与这里计算得到的 AMF 相除, 得到最终的垂直柱浓度。

研究团队将已发布的 POMINO v2.0.1 更新至 v2.1。首先, 新版本将覆盖区域扩大到 16°N — 54°N , 71°E — 139°E 。其次, 修复了一些错误: (1) POMINO v2.1 直接读取 QA4ECV 产品中的轨道信息等参数进行反演。相比之下, POMINO v2.0.1 首先借助 DOMINO 产品中的 OMI 像元信息计算 AMF, 之后再与 QA4ECV 产品中的像元进行匹配, 并结合 QA4ECV 的对流层斜柱浓度, 反演得到 L2 的 NO_2 垂直柱浓度。相比于 DOMINO, QA4ECV 通过技术修正补充了部分缺失的像元, 增加了有效数据量, 并且对像元的形状做了改进 (Van Geffen 等, 2015; Lorente 等, 2018; Boersma 等, 2018)。 (2) 在 POMINO v2.0.1 中, 相对方位角是其真实值的补角, 这个错误在 POMINO v2.1 中做了修正。 (3) 修正了反演中 AOD 和 BRDF 系数等先验参数的处理错误。

2.2 POMINO、QA4ECV 和 OMNO2 算法对比

表 1 对比了 POMINO v2.1、QA4ECV 和 OMNO2 v4 算法在计算对流层 NO_2 的 AMF 时用到的模式以及先验参数等 (Boersma 等, 2018; Lamsal 等, 2021; Vasilkov 等, 2017; Boersma 等, 2011)。QA4ECV 的反演算法使用了 DAK 辐射传输模式, OMNO2 v4 使用了 TOMRAD。已有研究表明, 在先验参数一致的前提下, 采用不同辐射传输模式的反演结果较为一致 (Boersma 等, 2018; Lorente 等, 2017)。POMINO 算法采用逐像元辐射传输计算, 计算量较大, 但误差更小; QA4ECV 和 OMNO2 v4 的反演算法采用了主流的查算表方法, 计算速度快, 但受到插值的影响, 误差相对更大。另外, 3 个反演算法采用不同的同化气象资料和化学传输模式以获得 NO_2 廓线等先验参数: POMINO 采用 GEOS-FP 和 GEOS-Chem v9-02 (分辨率为 $0.25^\circ \text{ lat.} \times 0.3125^\circ \text{ lon.}$), QA4ECV 采用 ECMWF 和 TM5-MP ($1^\circ \text{ lat.} \times 1^\circ \text{ lon.}$), OMNO2 v4 采用 MERRA-2 和 GMI ($1^\circ \text{ lat.} \times 1.25^\circ \text{ lon.}$)。POMINO 和 QA4ECV 均采用了逐日的模拟结果作为 NO_2 垂直廓线先验数据, 以更好地表征气象条件变化对 NO_2 垂直分布的影响, 而 OMNO2 v4 利用 2004 年—2015 年的 GMI 模拟结果构建了月平均气候态先验 NO_2 垂直廓线。

表 1 基于 OMI 探测器的对流层 NO_2 垂直柱浓度反演算法对比

Table 1 Comparison of retrieval algorithms of tropospheric NO_2 VCDs based on OMI

模式及先验参数	算法		
	POMINO v2.1	QA4ECV	OMNO2 v4
辐射传输模式	LIDORT v3.6	DAK	TOMRAD
对每个像元的计算方式	逐像元辐射传输计算, 不使用查算表	查算表	查算表
地表反射率	陆地和近岸海洋地区使用 MCD43C2 C6 数据库在 440nm 的 BRDF 数据; 在开放海洋使用 OMLER v3 反照率数据	OMLER v3 反照率数据	自行计算的 GLER 数据
地表气压	GEOS-FP 气象同化资料逐日数据 ($0.25^\circ \times 0.3125^\circ$), 且用 GMTE2010 的高度数据进行了调整	ECMWF 气象同化资料逐日数据 ($1^\circ \times 1^\circ$), 且用 DEM_3KM 的高度数据进行了调整	MERRA-2 气象同化资料逐日数据 ($1^\circ \times 1.25^\circ$), 且用 DEM_2KM 的高度数据进行了调整
气溶胶光学参数	GEOS-Chem v9-02 的逐日模拟数据 ($0.25^\circ \times 0.3125^\circ$); 且用 MODIS/Aqua C6.1 的月平均 AOD 进行调整, 并用气候态 (2007—2015) 月平均 CALIOP 气溶胶消光廓线进行调整	隐性表征气溶胶	隐性表征气溶胶
云分数和云气压	基于 $\text{O}_2\text{-O}_2$ 吸收特性 (475 nm), 采用与 NO_2 反演一致的先验参数进行逐像元的辐射传输计算	OMCLD02 云分数和云气压数据	使用 GLER 重新计算的 OMCD02N 数据*
先验 NO_2 廓线	GEOS-Chem v9-02 的逐日模拟数据 ($0.25^\circ \times 0.3125^\circ$)	TM5-MP 的逐日模拟数据 ($1^\circ \times 1^\circ$)	GMI 的气候态 (2004—2015) 月平均数据 ($1^\circ \times 1.25^\circ$)
气压和温度廓线	GEOS-FP 气象同化资料 ($0.25^\circ \times 0.3125^\circ$)	ECMWF 气象同化资料 ($1^\circ \times 1^\circ$)	MERRA-2 气象同化资料 ($1^\circ \times 1.25^\circ$)

在气溶胶光学效应和地表反射率的处理上, 3个算法有着显著的不同。QA4ECV和OMNO2 v4反演算法均“隐性”表征气溶胶的光学效应, 而POMINO算法首次在云参数和NO₂的反演中显性表征了气溶胶光学效应, 具体细节如2.1节所述。QA4ECV的算法没有考虑地表反射率的各向异性, 直接使用了基于OMI观测的5年平均气候态地表反照率数据OMLER v3, 而云参数直接使用了OMCLD02的数据(Veefkind等, 2016; Kleipool等, 2008)。OMNO2 v4算法使用了自行研发的GLER地表反射率数据来反演云参数和NO₂浓度, 其原理是, 在假设地表为等效朗伯反射面的基础上, 结合BRDF的3个核系数, 通过辐射传输模式计算TOA处特定观测角度的辐亮度, 然后反演得到逐像元的与太阳天顶角和观察天顶角有关的“等效”地表反射率(Vasilkov等, 2017, 2018; Lamsal等, 2021)。

2.3 L2有效数据采样和L3月均数据的获得

参照一般做法, 将L2像元数据按照面积加权方法转化为逐日L3格点化数据, 空间分辨率为0.25°×0.25°, 并进一步将逐日L3数据做平均, 得到月均L3数据(Lin等, 2015; Liu等, 2020)。

地表反射率过高、云量过多等因素会对NO₂的反演结果带来巨大误差, 因此需要进行合理的采样, 以保证数据对比的科学性与一致性(Lin等, 2015)。参照一般做法, 我们排除了由冰雪覆盖等因素导致地表反照率超过0.3的像元, 以及受到轨道异常(row anomaly)影响的像元, 并且为了减小云对反演结果的影响, 只选取了云辐射分数小于等于0.5(云分数约小于等于0.2)的像元(Lin等, 2015; Liu等, 2019, 2020)。

QA4ECV和OMNO2 v4将气溶胶看作为“有效”云, 因此这两套产品中的云辐射分数实际上包含了云和气溶胶对辐射的总贡献, 使得云辐射分数偏大。POMINO算法显性表征了气溶胶对辐射传输的独立影响, 计算得到的云辐射分数没有包含气溶胶的贡献。这意味着, 对于同一像元, POMINO的云辐射分数大多数情况下低于QA4ECV和OMNO2 v4的云辐射分数。(对于云分数, 亦有类似效应)。由于有效数据的采样通常采用云的云辐射分数(或者云分数)作为标准之一, 所以对

气溶胶的表征方式将直接影响采样结果。我们详细分析了采样方式对NO₂采样结果的影响以及气溶胶表征方式可能造成的系统性采样误差问题。

3 POMINO产品更新结果

3.1 POMINO v2.0.1和v2.1的异同

以2017-07—2017-12为例, 分析了POMINO产品更新结果。图2展示了POMINO v2.0.1和POMINO v2.1在2017-07—12的空间分布(分辨率为0.25°×0.25°), 以及对应的绝对差异和相对差异。二者均基于v2.1的云辐射分数进行一致采样。

在7月份(图2(a)、(b)), v2.0.1数据的空间分布与v2.1相差不大, 二者在青藏高原地区的平均浓度均为 1×10^{15} molec. cm⁻²左右, 在城市等高排放地区的信号明显。在人为源排放较多的中国东部, v2.0.1的浓度值比v2.1平均高出约 2×10^{15} molec. cm⁻², 在成都、上海等个别城市高出约 5×10^{15} molec. cm⁻²。由图2(d)可知, 在NO₂浓度很低的青藏高原等清洁地区以及黄海和渤海的部分地区, 两个版本的数值相对差异较大, 且分布无明显规律。在中国东部, 除了少数地区外, v2.0.1的浓度值均高于v2.1, 相对差异范围为-10%—40%。而对于整个区域平均而言, v2.0.1比v2.1高5.1%。

在12月份(图2(e)、(f)、(g)), 两个版本的差异主要体现在华北平原(110°E—122°E, 30°N—42°N)以及东部近海地区。在京津冀地区, v2.0.1的浓度值比v2.1低 $0—15 \times 10^{15}$ molec. cm⁻², 在浙江沿海地区, v2.0.1也比v2.1低很多。在山西、山东和安徽等地, 以及从唐山到秦皇岛以及青岛到连云港及其沿海地区, v2.0.1的浓度值显著偏高, 差异最高能达到 37×10^{15} molec. cm⁻²。整个区域平均而言, v2.0.1的NO₂柱浓度比v2.1高6.1%。

当基于两个版本各自的云辐射分数进行采样时(图3), 得到的有效L2像元不完全一致, 其中最重要的不同在于二者的数量。v2.1在7月和12月的有效像元数据量(244277和175454)分别比v2.0.1(219686和166122)多约11%和6%, 而得到的月平均、区域平均NO₂垂直柱浓度的相对差异分别约为8%和9%, 大于采样一致时NO₂的相对差异。

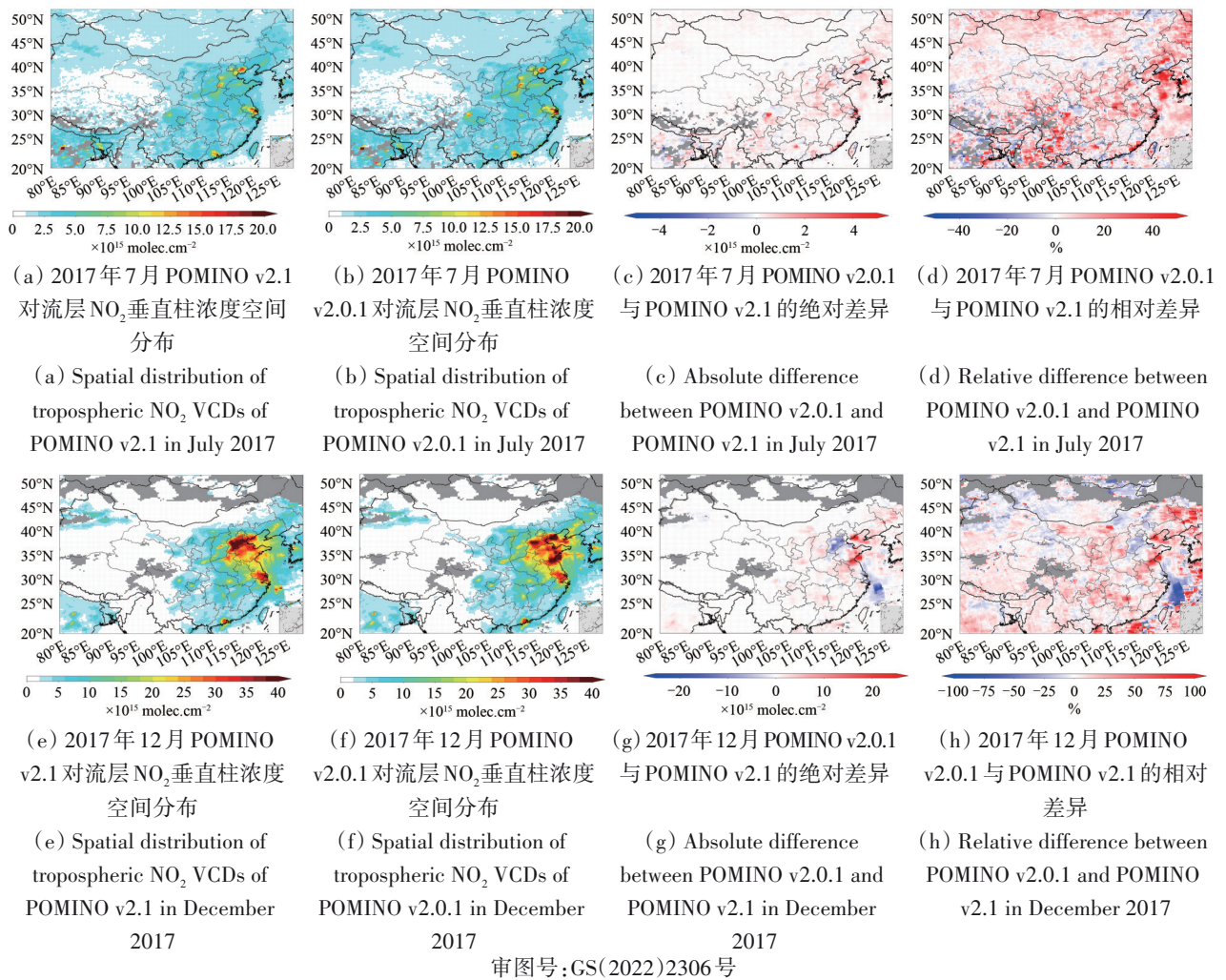


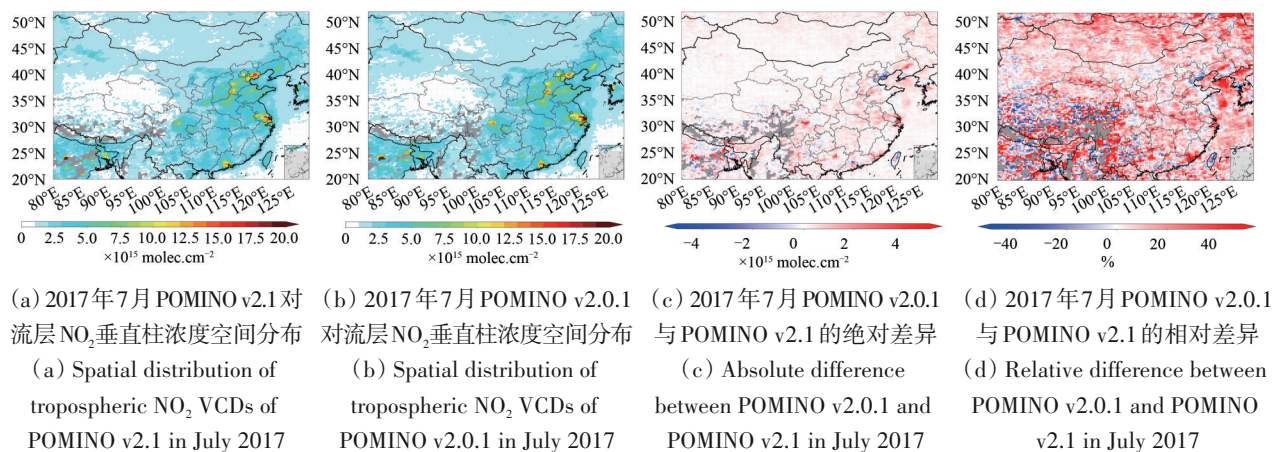
图2 2017年7月和12月 POMINO v2.0.1 与 POMINO v2.1 对流层 NO₂垂直柱浓度空间分布及其差异(基于 POMINO v2.1 有效像元采样)

Fig. 2 Spatial distribution of tropospheric NO₂ VCDs and differences between POMINO v2.0.1 and POMINO v2.1 in July and December 2017 (Sampled based on POMINO v2.1 valid pixels)

3.2 POMINO v2.0.1 和 v2.1 差异的原因

为了进一步分析新旧版本的差异来源,进行了3组敏感性试验,考察了像元(形状和数量)、相对方位角以及二者的协同作用对 NO₂反演的影

响。以 v2.1 的结果作为参考组,各敏感性试验结果均以参考组的云辐射分数进行一致采样,详细结果如附录表 A2 所示(参见电子版)。



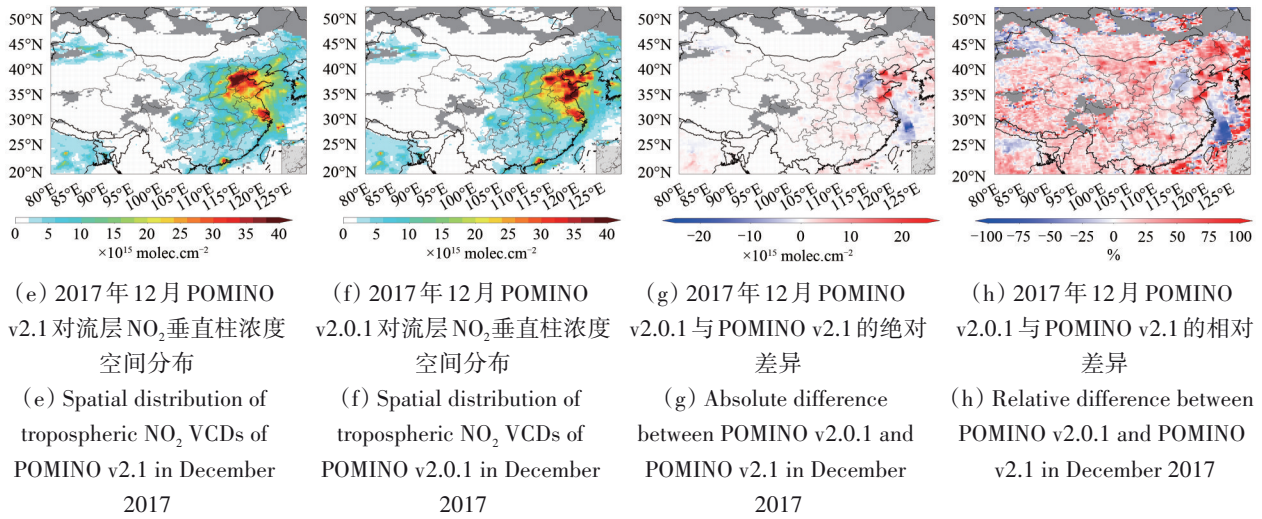


图3 2017年7月和12月 POMINO v2.0.1 与 POMINO v2.1 对流层 NO₂ 垂直柱浓度空间分布及其差异(基于各自产品有效像元采样)

Fig. 3 Spatial distribution of tropospheric NO₂ VCDs and differences between POMINO v2.0.1 and POMINO v2.1 in July and December 2017 (sampled based on each product's valid pixels)

附录图 A1 (参见电子版本) 展示了在采用 v2.1 相对方位角的情况下, 分别读取 QA4ECV 和 DOMINO 产品的像元信息反演得到的对流层 NO₂ 垂直柱浓度的空间分布, 以及它们相对于 v2.1 结果的绝对和相对差异。这个敏感性试验得到的 NO₂ 与 v2.1 结果在 7 月和 12 月的绝对差异都极小, 相对差异较为明显的区域主要分布在卫星轨道的边缘, 主要原因是在轨道视场边缘处的像元形状的变化。

附录图 A2 (参见电子版本) 展示了相对方位角的错误更正对 NO₂ 反演结果的影响。在整个区域内, 基于相对方位角的补角计算得到的 NO₂ 浓度与基于正确值计算得到的浓度的差异在 7 月差异不大 (1.2%), 但在 12 月份的华北平原地区十分显著。由附录图 A2 (g) (参见电子版本) 可知, 在河北部分地区、天津及沿海地区, 基于相对方位角补角计算得到的 NO₂ 浓度存在不同程度的低估, 但在华北的其他地区、长三角和珠三角等地区, 前者又系统地高于后者, 最高能相差 8.9×10^{15} molec. cm⁻²。由相对差异分布图 (附录图 A2 (h)) 可知, 基于相对方位角补角计算得到的 NO₂ 浓度在中国、朝鲜半岛、印度和缅甸等大范围地区均存在系统性高估, 在整个研究区域内平均高估了 3.7%。

附录图 A3 (参见电子版本) 展示了同时采用 DOMINO 像元和相对方位角补角计算得到的对流层 NO₂ 垂直柱浓度分布及其与 v2.1 结果的对比。结合附录图 A2 可知, 相对方位角的变化在这两个因素中起到了主导作用。对于整个区域平均而言,

两个因素协同作用下的 NO₂ 浓度比 v2.1 在 7 月高出了 1.4%, 在 12 月高出了 3.7%。这些差异小于新旧两个版本的相对差异 (5.1% 和 6.1%), 表明 AOD 和 BRDF 系数等先验参数的更新对于 NO₂ 反演结果的整体改善起到了关键作用。

以上分析中, 各个试验组的采样和有效像元和参考组 (v2.1) 是一样的。附录表 A3 (参见电子版本) 进一步展示了当基于每组试验各自模拟的云辐射分数进行采样时 (即采样不一致), 每组试验与 v2.1 中的 NO₂ 柱浓度的相对差异, 以及各组试验的有效像元数据量。发现当采样不一致时, 基于 DOMINO 像元得到的有效像元数据量少于基于 QA4ECV 得到的有效像元数据量, 而 NO₂ 浓度的相对差异也显著变大。附录表 A2 与 A3 (参见电子版本) 的结果表明, 即使是同样的采样标准, 由于各个产品的云辐射分数 (云分数) 在数值上的差异, 采样结果也会存在重要差异。因此, 在接下来的 POMINO v2.1、QA4ECV、OMNO2 v4 产品对比中, 将分别分析采样一致和不一致情况下 3 个公开产品的异同。

4 POMINO v2.1、QA4ECV、OMNO2 v4 对流层 NO₂ 垂直柱浓度产品的对比

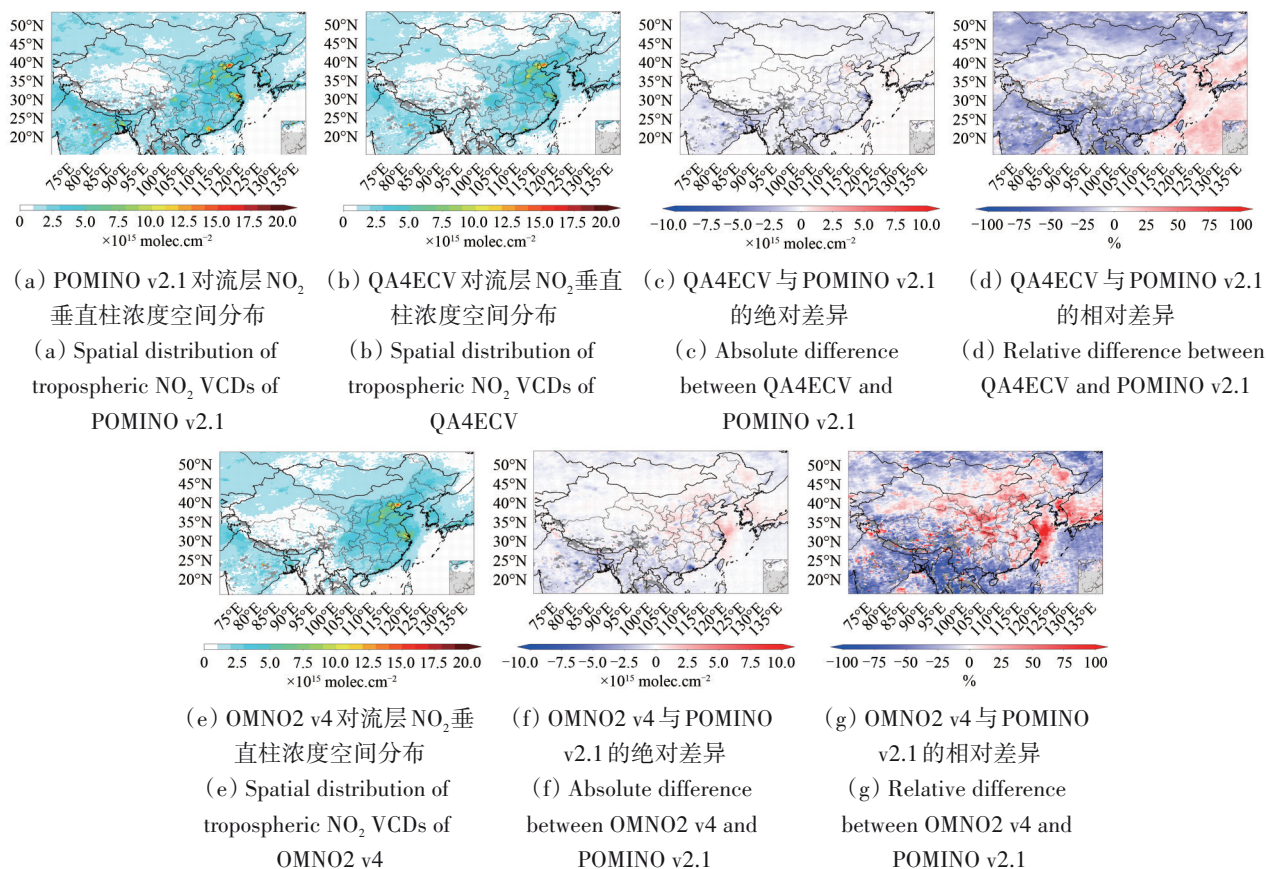
4.1 3 个产品在 2017-07 和 2017-12 的空间分布特征

首先对比了 3 个产品的对流层 NO₂ 垂直柱浓度 L3 数据在 2017-07—12 亚洲地区的空间分布, 空

间分辨率为 $0.25^{\circ}\times 0.25^{\circ}$ 。以POMINO v2.1的有效数据进行采样。

图4(a)展示了7月POMINO v2.1的 NO_2 结果。如3.1节所述,在青藏高原和海洋等相对清洁的地区,对流层 NO_2 垂直柱浓度基本都在 1×10^{15} molec. cm^{-2} 以下,而在中国东部、韩国、日本以及印度等污染地区, NO_2 存在显著的高值,局地可达到 15×10^{15} molec. cm^{-2} 。考虑到 NO_2 的生命时间在夏季只有几个小时,大气传输的作用相对较弱,所以在城市地区可以看到明显的热点信号。

图4(b)展示了同一时间QA4ECV的 NO_2 空间分布。虽然QA4ECV的空间分布与POMINO v2.1整体一致,相关系数在0.9以上($N=367340$),但是在长三角和珠三角等地区,QA4ECV没有展现出明显的高值信号, NO_2 浓度的最大值比POMINO v2.1低 6×10^{15} molec. cm^{-2} 以上(图4(c))。对整个区域而言,QA4ECV比POMINO v2.1低17.1%,其中在华北平原低估8.9%,在印度和东南亚地区低估28%以上(图4(d))。



审图号:GS(2022)2306号

图4 2017年7月POMINO v2.1,QA4ECV和OMNO2 v4对流层 NO_2 垂直柱浓度空间分布及其差异(基于POMINO v2.1有效像元采样)
Fig. 4 Spatial distribution of tropospheric NO_2 VCDs and differences between POMINO v2.1, QA4ECV and OMNO2 v4 in July 2017 (sampled based on POMINO v2.1 valid pixels)

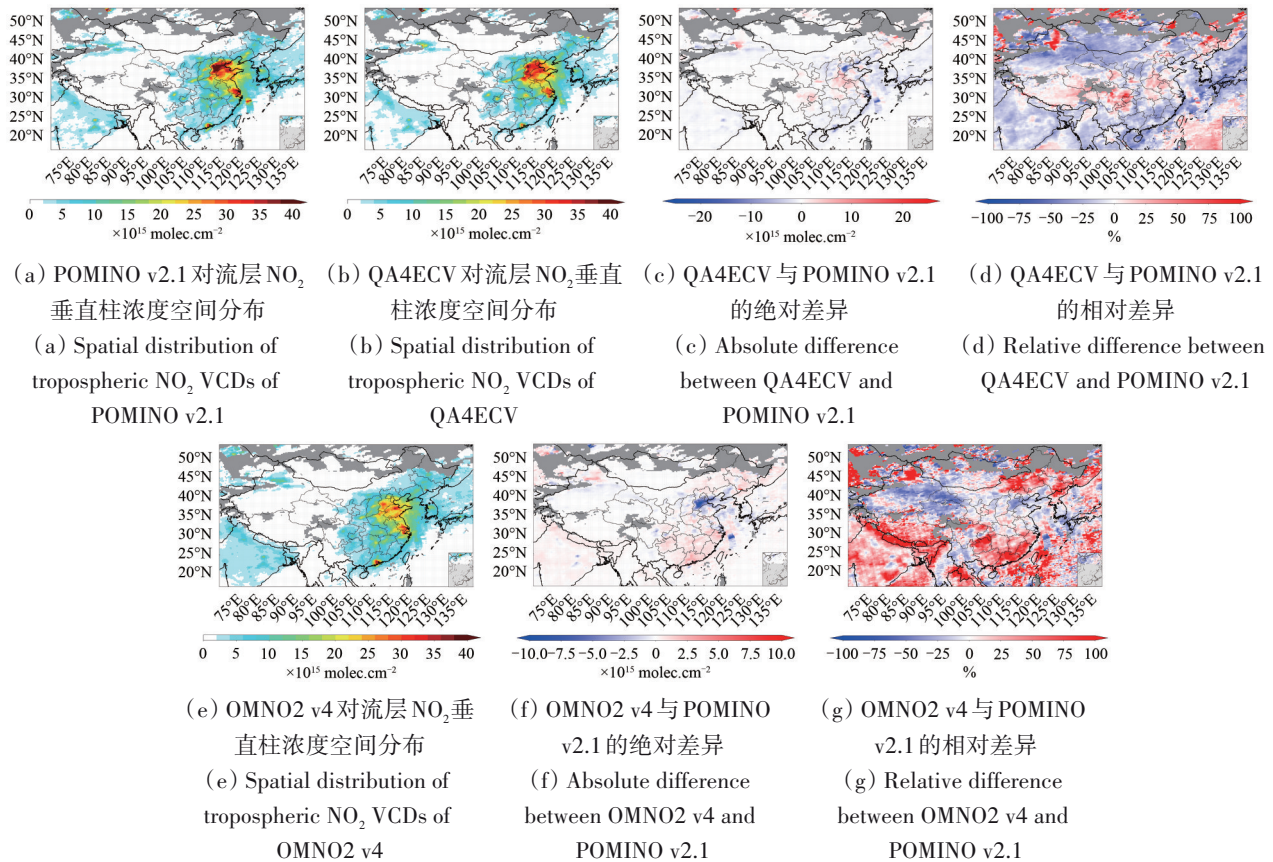
图4(e)展示了同一时间OMNO2 v4的 NO_2 空间分布。在中国中东部、朝鲜半岛、日本以及印度大部分地区,平均的 NO_2 柱浓度均达到了 5×10^{15} molec. cm^{-2} 以上,在京津冀和长三角地区也表现出较为明显的高值信号;在青藏高原等清洁地区, NO_2 浓度值也非常低,与POMINO v2.1和QA4ECV的空间特征基本一致。相比于POMINO v2.1的结果,OMNO2 v4在中国地区呈现出北高

估、南低估的分布特征,其中,在河北南部、长三角、珠三角和川渝等局部的高值地区,以及印度和东南亚地区存在明显的低估,但是在华北平原的其他地区和黄海的近岸海域存在高估(图4(f))。在夏季,气溶胶浓度整体相对较低,产品的云参数、地表反射率和 NO_2 廓线等先验参数之间的不同是上述差异的主要原因。对于整个区域平均而言,OMNO2 v4比POMINO v2.1低13.1%。另外,与

QA4ECV在海洋上相对POMINO v2.1普遍高估的情况不同, OMNO2 v4在东海以及太平洋地区普遍存在低估。

图5 (a) 展示了在2017年12月的POMINO v2.1 NO₂的空间分布。相比7月, 在冬季, NO₂生命周期增长至十几小时甚至更长, 同时集中供暖等因素导致排放量显著增加, 因此NO₂柱浓度在华北平原地区普遍超过了 20×10^{15} molec. cm⁻², 在京津冀等重污染地区甚至超过了 40×10^{15} molec. cm⁻², 并

且热点城市的信号也十分明显, 例如太原、西安、武汉、成都等众多省会城市。QA4ECV的分布特征与POMINO v2.1整体一致, 相关系数依然在0.9以上(图6)。但是, 由于QA4ECV算法没有显性表征气溶胶的光学效应, 其在河北、山西等受气溶胶影响严重地区的NO₂浓度值明显低于POMINO v2.1(图5(c))。平均而言, QA4ECV的NO₂柱浓度在华北平原地区比POMINO v2.1低2.3%, 在整个区域内低估8.5%(图5(d))。



审图号:GS(2022)2306号

图5 2017年12月POMINO v2.1,QA4ECV和OMNO2 v4对流层NO₂垂直柱浓度空间分布及其差异(基于POMINO v2.1有效像元采样)
Fig.5 Spatial distribution of tropospheric NO₂ VCDs and differences between POMINO v2.1, QA4ECV and OMNO2 v4 in December 2017 (sampled based on POMINO v2.1 valid pixels)

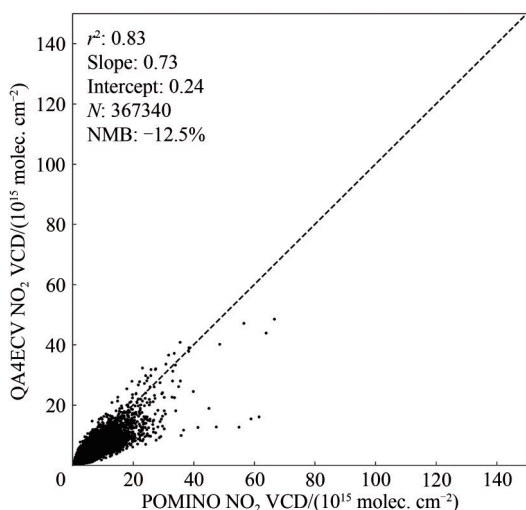
在12月份, OMNO2 v4与POMINO v2.1的NO₂柱浓度差异在中国东部呈现出北低估、南高估的空间特征, 这与7月份相对差异的空间分布相反。在京津冀及其周边省份, OMNO2 v4存在明显的低估。在中国东南部、印度和东南亚地区, OMNO2 v4存在明显的高估, 相对差异达到了32.1%; 这些地区受气溶胶的影响相对较小, 因此OMNO2 v4采用的地表反射率以及先验NO₂垂直廓线与POMINO

v2.1的区别可能是影响NO₂反演结果的主要原因。

进一步分析了3种产品在(基于像元的)L2数据层面在京津冀(38°N—42°N, 115°E—119°E)、长三角(29°N—32°N, 119°E—122°E)、珠三角(21°N—24°N, 112°E—115°E)和四川盆地(28°N—32°N, 103°E—108°E)4个地区的反演结果。这里, 所有像元均基于POMINO v2.1的云辐射分数进行一致采样。由附录图A4(参见电子版)可知,

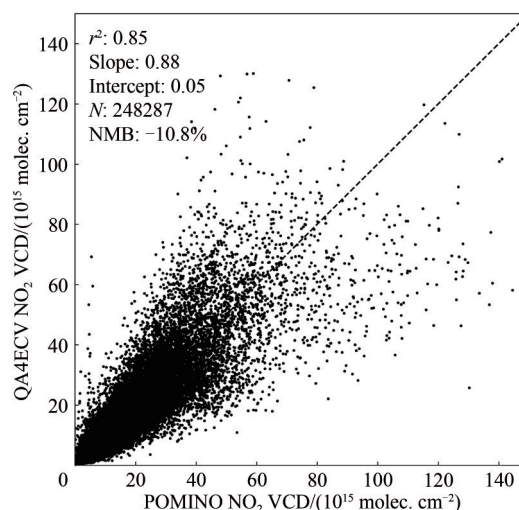
在2017年7月, QA4ECV与POMINO v2.1的拟合斜率均小于1, 前者在长三角、珠三角和四川盆地均有10%—20%的低估。京津冀地区的归一化平均偏差(NMB)大于0, 主要是因为大多数像元的NO₂浓度低于 20×10^{15} molec. cm⁻², 且在该区间QA4ECV浓度值高于POMINO v2.1的像元数量更多。在2017年12月, QA4ECV的NO₂浓度整体上略低于POMINO v2.1, 其中在 $0-20 \times 10^{15}$ molec. cm⁻²的区

间内QA4ECV存在明显的低估, 而在高值区间内的反演结果与POMINO v2.1相差不大。在四川盆地的反演结果与POMINO v2.1相差不大。在四川盆地, QA4ECV浓度高于POMINO v2.1的像元占到总数的约70%, 因此该地区的NMB能达到20.3%, 这与图7(c)的结果保持一致, 但是二者在该地区的拟合斜率依然小于1, 表明POMINO v2.1能更好地捕捉到高浓度NO₂ ($>60 \times 10^{15}$ molec. cm⁻²)的信号。



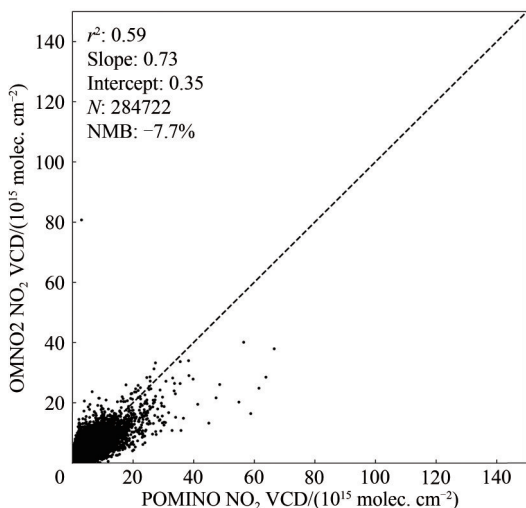
(a) 2017年7月QA4ECV与POMINO v2.1对流层NO₂垂直柱浓度L2数据散点分布

(a) Scatterplots for level-2 tropospheric NO₂ VCDs between QA4ECV and POMINO v2.1 in July 2017



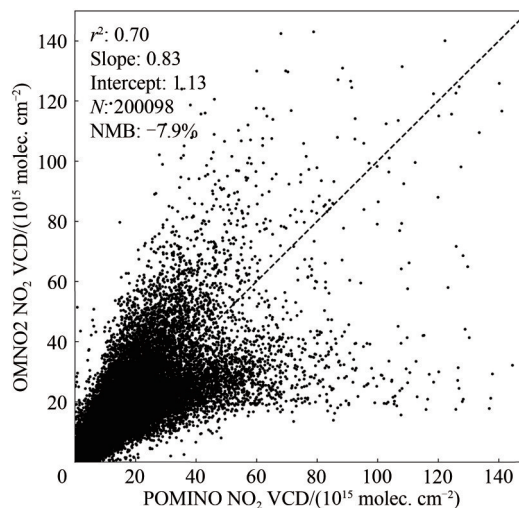
(b) 2017年12月QA4ECV与POMINO v2.1对流层NO₂垂直柱浓度L2数据散点分布

(b) Scatterplots for level-2 tropospheric NO₂ VCDs between QA4ECV and POMINO v2.1 in December 2017



(c) 2017年7月OMNO2 v4与POMINO v2.1对流层NO₂垂直柱浓度L2数据散点分布

(c) Scatterplots for level-2 tropospheric NO₂ VCDs between OMNO2 v4 and POMINO v2.1 in July 2017



(d) 2017年12月OMNO2 v4与POMINO v2.1对流层NO₂垂直柱浓度L2数据散点分布

(d) Scatterplots for level-2 tropospheric NO₂ VCDs between OMNO2 v4 and POMINO v2.1 in December 2017

图6 整个研究区域内QA4ECV和OMNO2 v4与POMINO v2.1对流层NO₂垂直柱浓度L2数据的散点图(基于POMINO v2.1有效像元采样)

Fig. 6 Scatterplots for level-2 tropospheric NO₂ VCDs between QA4ECV/OMNO2 v4 and POMINO v2.1 (sampled based on POMINO v2.1 valid pixels)

附录图 A5 (参见电子版本) 展示了 OMNO2 v4 与 POMINO v2.1 在这 4 个地区的散点图。在 7 月份, 两个产品的相关系数相对较低, 但散点的整体分布呈现出与 QA4ECV 类似的特征。在 12 月份, 4 个地区的拟合斜率均小于 1, 说明在高值区间内 OMNO2 v4 依然存在低估。然而在京津冀、长三角和珠三角地区, 大量 OMNO2 v4 浓度超过 $60 \times 10^{15} \text{ molec. cm}^{-2}$ 且高于 POMINO v2.1 的像元同样存在, 相对差异可达到 100% 以上。在 $0-40 \times 10^{15} \text{ molec. cm}^{-2}$ 区间内, OMNO2 v4 的 NO₂ 浓度在 4 个地区都不同程度地高于 POMINO v2.1, 因此除了京津冀地区外, OMNO2 v4 的平均 NO₂ 浓度要更高, 两个产品的 NMB 在 6%—40%。

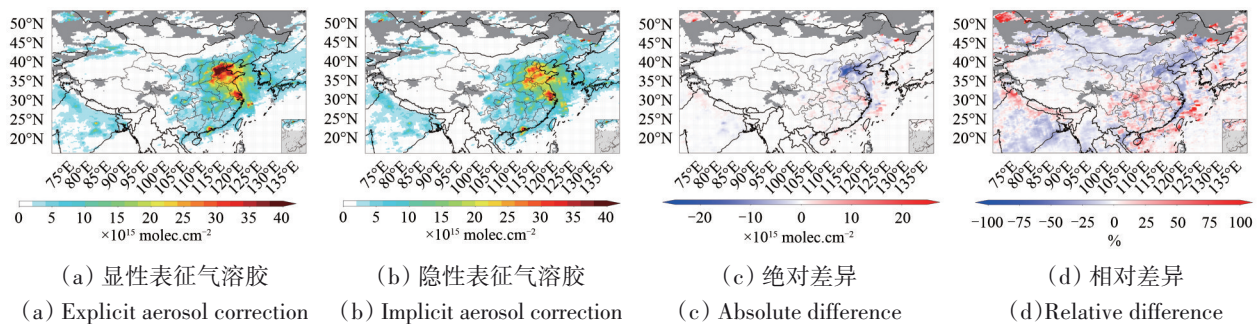
如 2.3 节所述, 基于 POMINO v2.1 的云辐射分数对 3 个产品进行一致采样会包含很多 QA4ECV 以及 OMNO2 v4 中自身云辐射分数大于 0.5 的像元。当 3 个产品根据自己的云辐射分数进行采样时, 他们的有效数据将会不同, 这也是用户在使用不同产品时会碰到的一般情况。本文分析了在这种有效数据量不同的情况下, 3 个产品的月均 L3 数据 (分辨率为 $0.25^\circ \times 0.25^\circ$) 的差异。

附录图 A6 (参见电子版本) 以 2017 年 12 月为例, 对比了在采样一致与采样不一致的情况下, QA4ECV 与 POMINO v2.1 在上述 4 个地区格点化的对流层 NO₂ 垂直柱浓度。可以看到, 当采样不一致时, 在京津冀、长三角和珠三角地区的 NMB 的绝对值均有不同程度的增大, 表明采样不一致时 QA4ECV 对浓度的低估更加明显。在四川盆地, 即

使 QA4ECV 的平均 NO₂ 浓度高于 POMINO v2.1, NMB 也由采样一致时的 27.4% 降低到了采样不一致时的 7.3%。类似的, 附录图 A7 (参见电子版本) 展示了采样方法对 OMNO2 v4 与 POMINO v2.1 对比结果的影响。以变化最大的珠三角地区为例, 当采样不一致时, POMINO v2.1 的 NO₂ 柱浓度高于 OMNO2 v4 的格点数量显著增多, 拟合的 r^2 从 0.93 变为 0.08, 斜率为 1.04 变为 0.3, 表明采样不一致时, OMNO2 v4 产品中很多云辐射分数大于 0.5 且对流层 NO₂ 垂直柱浓度很高的像元被排除在外。同理, 在长三角地区, 当采样不一致时, 两套产品的 NMB 从 0.5% 变为 -14.4%, 二者平均值的相对大小甚至出现了反向的变化。这充分说明, 采样的标准与方法对结果有着重要影响。

4.2 气溶胶表征方式对反演结果的影响

在高气溶胶情况下, 研究表明气溶胶的表征方式 (显性或隐性) 对 NO₂ 的反演具有显著影响 (Lin 等, 2014, 2015; Liu 等, 2019, 2020; Vasilkov 等, 2021)。基于 POMINO v2.1 算法, 以 2017 年 12 月为例, 测试了隐性表征气溶胶对反演结果的影响, 试验结果基于 POMINO v2.1 的云辐射分数进行一致采样。由图 7 (c) (d) 可知, 气溶胶表征方式的影响在中国东北和华北地区、印度以及东南亚部分地区最为明显。如果对气溶胶光学效应进行隐性表征, 在京津冀地区的工业和城市等热点地区的 NO₂ 浓度显著低于显性表征时的结果: 在京津冀地区平均下降了 26.4%, 在整个华北平原平均下降了 11.8%。



审图号:GS(2022)2306号

图7 2017年12月基于POMINO v2.1算法的显性/隐性表征气溶胶敏感性试验得到的对流层NO₂垂直柱浓度空间分布及其差异(基于POMINO v2.1有效像元采样)

Fig. 7 Spatial distribution of tropospheric NO₂ VCDs and differences between sensitivity tests with explicit and implicit aerosol correction based on POMINO v2.1 algorithm in December 2017 (sampled based on POMINO v2.1 valid pixels)

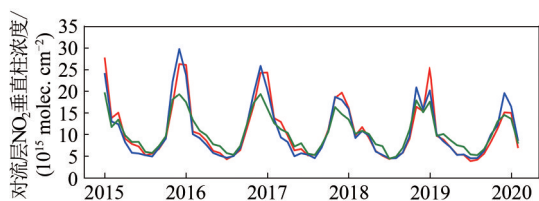
下面以京津冀地区为例, 根据独立像元近似, 进一步分析了气溶胶表征方式对于反演得到的云参数和 NO_2 AMF的影响。附录图A8(参见电子版)表明, 对于被云覆盖的部分, 当隐性表征气溶胶时, 气溶胶的辐射效应由“有效”云来补偿, 有效云分数与云辐射分数相对于显性表征气溶胶的结果均有不同程度的升高。云顶气压在该地区变化不大, 因此被云覆盖部分的 NO_2 AMF (M_{cl})整体变化不大(附录图A9(b)(参见电子版))。对于晴空部分, 污染地区气溶胶的垂直分布在冬季平均而言高于 NO_2 (Liu等, 2019), 因此会削弱 NO_2 分子对太阳辐射的吸收, 起到了“遮蔽”的作用。如果隐性表征气溶胶, 忽略其“遮蔽”作用, 晴空部分的 NO_2 AMF (M_{clr})就会相应增大(附录图A9(a)(参见电子版))。综合两方面影响, 在京津冀地区, 隐性表征气溶胶使得 NO_2 AMF增大了26.3%, 垂直柱浓度下降了26.4%。该结果表明, 在高浓度气溶胶的条件下, 将气溶胶处理为“有效”云的隐性表征方法会显著低估对流层 NO_2 垂直柱浓度, 但是该结论也与云量、云高、以及气溶胶和 NO_2 的垂直分布密切相关。

另外, 隐性表征气溶胶的敏感性试验结果仍然与QA4ECV和OMNO2 v4存在明显的偏差(图7(b)和图5(b)、(e)), 这体现了不同反演算法在 NO_2 垂直廓线、 NO_2 先验数据的水平分辨率、地表反射

率、云参数等方面的差异。例如, 本次敏感性试验仍然对云参数进行了重新反演, 确保了反演云参数和 NO_2 时采用的先验数据的一致性, 而QA4ECV所使用的云参数资料在反演过程中采用的大气温度等先验数据可能与反演 NO_2 时采用的先验数据有所不同(Lin等, 2014)。

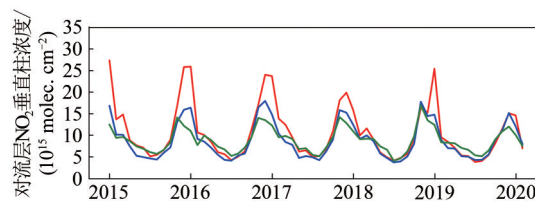
4.3 2015年—2020年对流层 NO_2 垂直柱浓度的变化

本文进一步对比了POMINO v2.1、QA4ECV和OMNO2 v4在京津冀、长三角、珠三角地区和四川盆地4个地区在2015-01—2020-02的L3数据月均值的变化特征(图8)。图8中左列的结果基于POMINO v2.1的云辐射分数进行一致采样, 右列的结果基于各自的云辐射分数进行采样(因此有效数据不一样)。在采样一致的情况下, POMINO v2.1在京津冀和长三角地区的 NO_2 浓度高于其他地区, 同时表现出非常明显的季节性, 冬季(12月和次年1—2月)和夏季(6—8月) NO_2 柱浓度的比值最高可达4.2; 四川盆地的季节性变化最弱, 冬季和夏季 NO_2 柱浓度的比值最高不超过1.5。QA4ECV和OMNO2 v4的结果与POMINO v2.1在京津冀、长三角和珠三角地区整体相差不大, 但是二者在四川盆地表现出了比POMINO v2.1更为显著的季节变化。



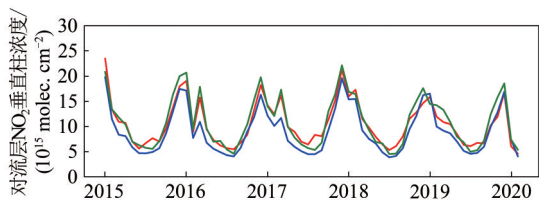
(a) 京津冀地区(基于POMINO v2.1有效像元采样)

(a) Beijing-Tianjin-Hebei (sampled based on POMINO v2.1 valid pixels)



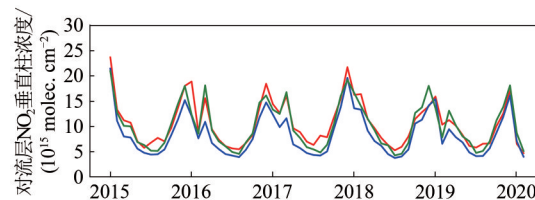
(b) 京津冀地区(基于各自产品有效像元采样)

(b) Beijing-Tianjin-Hebei (sampled based on each product's valid pixels)



(c) 长三角地区(基于POMINO v2.1有效像元采样)

(c) Yangtze River Delta (sampled based on POMINO v2.1 valid pixels)



(d) 长三角地区(基于各自产品有效像元采样)

(d) Yangtze River Delta (sampled based on each product's valid pixels)

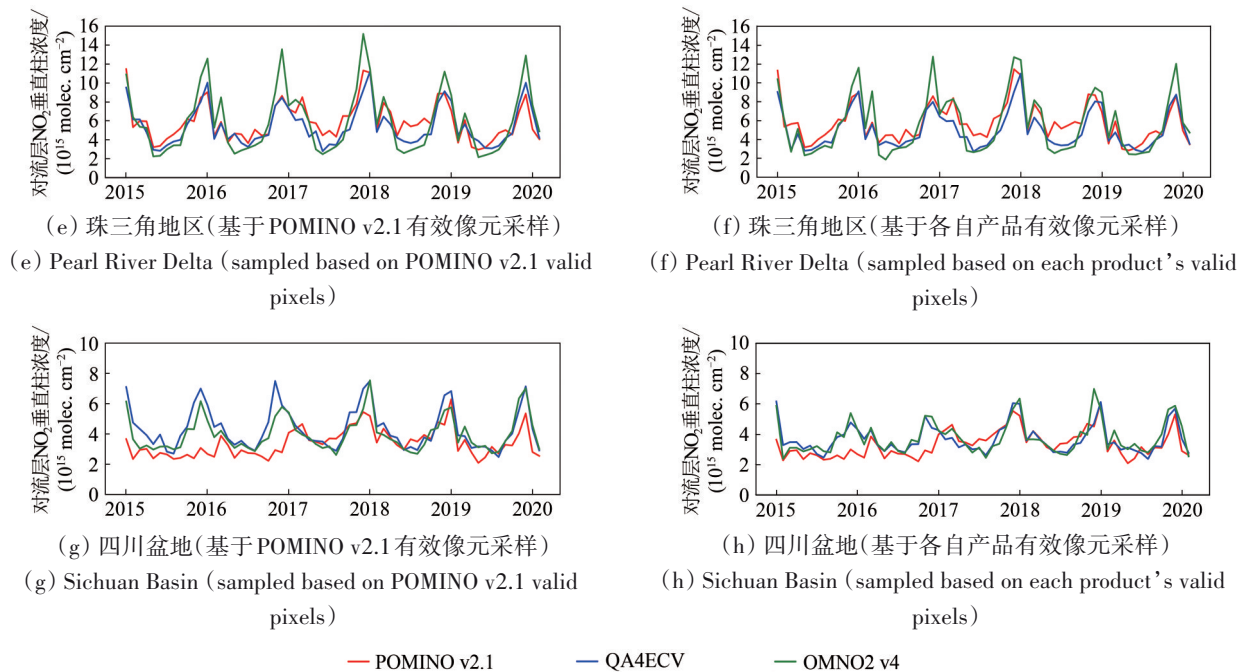


图8 基于POMINO v2.1或者各自产品有效像元采样的情况下,2015-01—2020-02京津冀、长三角、珠三角和四川盆地地区逐月对流层NO₂垂直柱浓度的时间序列(单位: $\times 10^{15}$ molec. cm^{-2})

Fig. 8 Time series of monthly averages of tropospheric NO₂ VCDs in Beijing-Tianjin-Hebei, Yangtze River Delta, Pearl River Delta and Sichuan Basin 2015—2020 sampled based on POMINO v2.1 or each product's valid pixels (unit: $\times 10^{15}$ molec. cm^{-2})

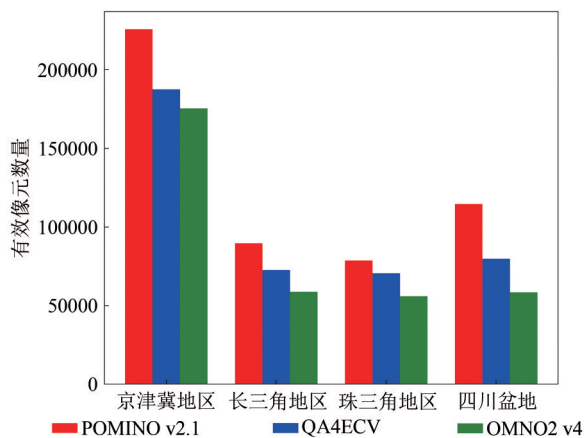


图9 基于各自产品有效像元采样的情况下,2015年至2020年POMINO v2.1,QA4ECV和OMNO2 v4在京津冀、长三角、珠三角和四川盆地的总有效像元数据量

Fig. 9 Number of total valid pixels in Beijing-Tianjin-Hebei, Yangtze River Delta, Pearl River Delta and Sichuan Basin 2015-2020 of POMINO v2.1, QA4ECV and OMNO2 v4 sampled based on each product's valid pixels

附录图 A10 (参见电子版本) 的采样一致结果展示了 12 个月滑动平均得到的 NO₂ 柱浓度的变化。在京津冀地区, POMINO v2.1 呈现出下降趋势, 5 年间下降了约 30%, 但是时间序列存在波动, 主要体现了冬季高值的显著年际变化。QA4ECV 和

OMNO2 v4 的结果与 POMINO v2.1 类似。在四川盆地, POMINO v2.1 的 NO₂ 柱浓度从 2015-07 上升到 2017-08 的峰值, 增幅超过 50%, 而之后又出现了约 20% 的下降, 而且在珠三角地区也有先升后降的明显特征。QA4ECV 和 OMNO2 v4 的 NO₂ 浓度在珠三角地区的时间变化特征与 POMINO v2.1 类似, 但是幅度相对较小, 而在四川盆地无明显的趋势。

由图 8 和附录图 A10 (参见电子版本) 可知, 当采样不一致时, 3 套产品的时间变化规律接近于采样一致时的结果, 但是 QA4ECV 和 OMNO2 v4 在冬季的 NO₂ 浓度值相比于采样一致时的结果分别出现了不同程度的降低, 其中在京津冀地区的下降幅度最大 (5 a 平均下降幅度分别为 24.1% 和 23.9%)。长时间的对比分析表明, 采样不一致下, POMINO v2.1 能更好地表征中国污染地区冬季 NO₂ 柱浓度的时间变化特征, 这对进一步的分析和归因都有着重要的意义。

图 9 进一步展示了每一个产品在 4 个地区的有效像元数据量之和。由于 POMINO v2.1 算法区分了气溶胶与云的辐射贡献, 因此在相同的云辐射分数采样标准下, 包含了更多的 (高污染情形下的) 有效像元。在这 4 个地区, POMINO v2.1 的总有效

像元数据量比 QA4ECV 高了 11%—44%，比 OMNO2 v4 高了 29%—96%。

对于不同采样方式得到的 NO₂ 结果的分析表明，从用户的角度，POMINO v2.1 的有效数据量更多，更能体现重污染情形下 NO₂ 的高值信号，也更能反映出气溶胶对于卫星反演对流层 NO₂ 垂直柱浓度的重要影响。

5 结 论

本文介绍了最新的 POMINO v2.1 对流层 NO₂ 垂直柱浓度产品，并进一步比较了其 QA4ECV 和 OMNO2 v4 产品的差异。POMINO 算法的特色体现在显性表征了气溶胶的光学效应、地表反射率各向异性、NO₂ 廓线的水平分辨率、云参数与 NO₂ 的反演在先验参数上的协调等方面。我们在 POMINO v2.0.1 的基础上进行了改进，包括反演范围的扩大、像元形状和有效像元数据量的更新、相对方位角错误的修复以及气溶胶和地表反射率先验参数的错误修正。结果表明，POMINO v2.1 的对流层 NO₂ 垂直柱浓度与 v2.0.1 整体差异不大 (<10%)。两个版本均表明，在青藏高原和海洋等以自然源排放为主的地区，NO₂ 的浓度普遍低于 10¹⁵ molec. cm⁻²；而在人为源排放显著的中国东部，NO₂ 的平均浓度在 5—25×10¹⁵ molec. cm⁻²，具有显著的空间特征和季节性变化。

在采样一致的情况下，相比于 POMINO v2.1，在高 NO₂ 浓度的京津冀、长三角和珠三角地区，QA4ECV 和 OMNO2 v4 均存在 10%—30% 的低估。基于 POMINO 算法的敏感性试验表明，气溶胶表征方式的不同对于冬季气溶胶含量很高的华北地区 NO₂ 柱浓度的反演有着显著影响，特别是，隐性表征气溶胶使得京津冀地区的 NO₂ 柱浓度被低估 26%，这很大程度上解释了 QA4ECV 和 OMNO2 v4 与 POMINO v2.1 在该地区和季节的差异。在气溶胶浓度相对较低的南方地区，敏感性试验的结果不能与产品间的差异很好地对应，这体现出不同的地表反射率、气溶胶和 NO₂ 的垂直分布特征以及先验 NO₂ 垂直廓线的水平分辨率等因素对于 NO₂ 反演结果有着重要影响。3 套产品在 4 个地区 2015 年—2020 年逐月对流层 NO₂ 垂直柱浓度的变化表明，京津冀地区的 NO₂ 柱浓度在这 5 年内下降超过 30%，而长三角地区的浓度基本保持不变。POMINO v2.1

在珠三角和四川盆地的 NO₂ 柱浓度在这段时间内先升后降，变化幅度达 30%—50%，而 QA4ECV 和 OMNO2 v4 季节性特征更强，年际变化幅度相对较小。

考虑到隐性表征气溶胶会显著增大云辐射分数，当基于各自产品的云辐射分数进行独立采样时，3 个产品的有效数据具有明显不同，特别是，QA4ECV 和 OMNO2 v4 会排除很多高气溶胶和 NO₂ 浓度的像元（有效数据量仅为 POMINO v2.1 的 71%—90%），这不仅使得有效像元数据量大幅减小，并且造成了对 NO₂ 污染的系统性低估。相比而言，POMINO v2.1 的有效数据量更多，能够更好地体现出高气溶胶浓度情形下的 NO₂ 污染。

由于地基 MAX-DOAS 观测数据较少，并且数据较难以获得，本文未利用该数据进行卫星产品的验证。但是，前人研究已多次将 POMINO 及其他卫星反演产品与 MAX-DOAS 观测数据进行了对比和讨论。Lin 等（2014）针对 2012 年结果的分析指出，POMINO 的对流层 NO₂ 垂直柱浓度相比于 DOMINO v2 能够更好地抓住 MAX-DOAS 数据的日际变化特征 ($R^2=0.96$ 和 0.72)；Liu 等（2019）针对 2012 年的研究结果也表明，在重污染情形下，POMINO v1.1 的 R^2 显著高于 DOMINO v2 和 QA4ECV（分别为 0.76、0.38 和 0.34），且归一化平均偏差也相对更小（分别为 4.4%、-5% 和 -26.1%）。这些结果表明，POMINO 产品对重污染情形下 NO₂ 浓度的反演更加准确。在未来，我们计划与 MAX-DOAS 观测团队深入合作，利用具有较好时空代表性的地基数据对比验证不同卫星产品。

目前，POMINO 算法已经成功地应用在了太阳同步极轨卫星探测器 OMI 和 TROPOMI 上，相关的 L2 和 L3 数据均可在 [http://www.pku-atmos-acm.org/acmProduct.php/\[2021-06-15\]](http://www.pku-atmos-acm.org/acmProduct.php/[2021-06-15]) 上免费下载。在今后，拟将 POMINO 算法应用到世界首个痕量污染气体地球同步静止卫星探测器 GEMS 上，为亚洲地区氮氧化物的观测和研究提供更高时间分辨率的 NO₂ 卫星反演数据。

参考文献 (References)

- Beirle S, Boersma K F, Platt U, Lawrence M G and Wagner T. 2011. Megacity emissions and lifetimes of nitrogen oxides probed from

- space. *Science*, 333(6050): 1737-1739 [DOI: 10.1126/science.1207824]
- Boersma K F, Eskes H J and Brinksma E J. 2004. Error analysis for tropospheric NO₂ retrieval from space. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109(D4): D04311 [DOI: 10.1029/2003jd003962]
- Boersma K F, Eskes H J, Dirksen R J, van der A R J, Veeckind J P, Stammes P, Huijnen V, Kleipool Q L, Sneep M, Claas J, Leitão J, Richter A, Zhou Y and Brunner D. 2011. An improved tropospheric NO₂ column retrieval algorithm for the Ozone Monitoring Instrument. *Atmospheric Measurement Techniques*, 4(9): 1905-1928 [DOI: 10.5194/amt-4-1905-2011]
- Boersma K F, Eskes H J, Richter A, De Smedt I, Lorente A, Beirle S, van Geffen J H G M, Zara M, Peters E, Van Roozendaal M, Wagner T, Maasakkers J D, van der A R J, Nightingale J, De Rudder A, Irie H, Pinardi G, Lambert J C and Compernelle S C. 2018. Improving algorithms and uncertainty estimates for satellite NO₂ retrievals: results from the quality assurance for the essential climate variables (QA4ECV) project. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(12): 6651-6678 [DOI: 10.5194/amt-11-6651-2018]
- Bucsela E J, Krotkov N A, Celarier E A, Lamsal L N, Swartz W H, Bhartia P K, Boersma K F, Veeckind J P, Gleason J F and Pickering K E. 2013. A new stratospheric and tropospheric NO₂ retrieval algorithm for nadir-viewing satellite instruments: applications to OMI. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(10): 2607-2626 [DOI: 10.5194/amt-6-2607-2013]
- Dirksen R J, Boersma K F, Eskes H J, Ionov D V, Bucsela E J, Levelt P F and Kelder H M. 2011. Evaluation of stratospheric NO₂ retrieved from the Ozone Monitoring Instrument: intercomparison, diurnal cycle, and trending. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 116(D8): D08305 [DOI: 10.1029/2010jd014943]
- Geddes J A, Martin R V, Bucsela E J, McLinden C A and Cunningham D J M. 2018. Stratosphere - troposphere separation of nitrogen dioxide columns from the TEMPO geostationary satellite instrument. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(11): 6271-6287 [DOI: 10.5194/amt-11-6271-2018]
- Gu D S, Wang Y H, Smeltzer C and Boersma K F. 2014. Anthropogenic emissions of NO_x over China: reconciling the difference of inverse modeling results using GOME-2 and OMI measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119(12): 7732-7740 [DOI: 10.1002/2014jd021644]
- Gu D S, Wang Y H, Smeltzer C and Liu Z. 2013. Reduction in NO_x emission trends over China: regional and seasonal variations. *Environmental Science and Technology*, 47(22): 12912-12919 [DOI: 10.1021/es401727e]
- He Q, Qin K, Cohen J B, Loyola D, Li D, Shi J C and Xue Y. 2020. Spatially and temporally coherent reconstruction of tropospheric NO₂ over China combining OMI and GOME-2B measurements. *Environmental Research Letters*, 15(12): 125011 [DOI: 10.1088/1748-9326/abc7df]
- Hoek G, Krishnan R M, Beelen R, Peters A, Ostro B, Brunekreef B and Kaufman J D. 2013. Long-term air pollution exposure and cardio- respiratory mortality: a review. *Environmental Health*, 12(1): 43 [DOI: 10.1186/1476-069X-12-43]
- Kleipool Q L, Dobber M R, de Haan J F and Levelt P F. 2008. Earth surface reflectance climatology from 3 years of OMI data. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 113(D18): D18308 [DOI: 10.1029/2008JD010290]
- Kong H, Lin J T, Zhang R X, Liu M Y, Weng H J, Ni R J, Chen L L, Wang J X, Yan Y Y and Zhang Q. 2019. High-resolution (0.05°×0.05°) NO_x emissions in the Yangtze River Delta inferred from OMI. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(20): 12835-12856 [DOI: 10.5194/acp-19-12835-2019]
- Krotkov N A, McLinden C A, Li C, Lamsal L N, Celarier E A, Marchenko S V, Swartz W H, Bucsela E J, Joiner J, Duncan B N, Boersma K F, Veeckind J P, Levelt P F, Fioletov V E, Dickerson R R, He H, Lu Z F and Streets D G. 2016. Aura OMI observations of regional SO₂ and NO₂ pollution changes from 2005 to 2015. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(7): 4605-4629 [DOI: 10.5194/acp-16-4605-2016]
- Lamsal L N, Krotkov N A, Vasilkov A, Marchenko S, Qin W H, Yang E S, Fasnacht Z, Joiner J, Choi S, Haffner D, Swartz W H, Fisher B and Bucsela E. 2021. Ozone Monitoring Instrument (OMI) Aura nitrogen dioxide standard product version 4.0 with improved surface and cloud treatments. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(1): 455-479 [DOI: 10.5194/amt-14-455-2021]
- Lin J T. 2012. Satellite constraint for emissions of nitrogen oxides from anthropogenic, lightning and soil sources over East China on a high-resolution grid. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(6): 2881-2898 [DOI: 10.5194/acp-12-2881-2012]
- Lin J T, Liu M Y, Xin J Y, Boersma K F, Spurr R, Martin R and Zhang Q. 2015. Influence of aerosols and surface reflectance on satellite NO₂ retrieval: seasonal and spatial characteristics and implications for NO_x emission constraints. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(19): 11217-11241 [DOI: 10.5194/acp-15-11217-2015]
- Lin J T, Martin R V, Boersma K F, Sneep M, Stammes P, Spurr R, Wang P, Van Roozendaal M, Clémer K and Irie H. 2014. Retrieving tropospheric nitrogen dioxide from the Ozone Monitoring Instrument: effects of aerosols, surface reflectance anisotropy, and vertical profile of nitrogen dioxide. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(3): 1441-1461 [DOI: 10.5194/acp-14-1441-2014]
- Lin J T and McElroy M B. 2011. Detection from space of a reduction in anthropogenic emissions of nitrogen oxides during the Chinese economic downturn. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(15): 8171-8188 [DOI: 10.5194/acp-11-8171-2011]
- Liu M Y, Lin J T, Boersma K F, Pinardi G, Wang Y, Chimot J, Wagner T, Xie P H, Eskes H, Van Roozendaal M, Hendrick F, Wang P C, Wang T, Yan Y Y, Chen L L and Ni R J. 2019. Improved aerosol correction for OMI tropospheric NO₂ retrieval over East Asia: constraint from CALIOP aerosol vertical profile. *Atmospheric*

- Measurement Techniques, 12(1): 1-21 [DOI: 10.5194/amt-12-1-2019]
- Liu M Y, Lin J T, Kong H, Boersma K F, Eskes H, Kanaya Y, He Q, Tian X, Qin K, Xie P H, Spurr R, Ni R J, Yan Y Y, Weng H J and Wang J X. 2020. A new TROPOMI product for tropospheric NO₂ columns over East Asia with explicit aerosol corrections. Atmospheric Measurement Techniques, 13(8): 4247-4259 [DOI: 10.5194/amt-13-4247-2020]
- Lorente A, Boersma K F, Stammes P, Tilstra L G, Richter A, Yu H, Kharbouche S and Muller J P. 2018. The importance of surface reflectance anisotropy for cloud and NO₂ retrievals from GOME-2 and OMI. Atmospheric Measurement Techniques, 11(7): 4509-4529 [DOI: 10.5194/amt-11-4509-2018]
- Lorente A, Boersma K F, Yu H, Dörner S, Hilboll A, Richter A, Liu M Y, Lamsal L N, Barkley M, De Smedt I, Van Roozendael M, Wang Y, Wagner T, Beirle S, Lin J T, Krotkov N, Stammes P, Wang P, Eskes H J and Krol M. 2017. Structural uncertainty in air mass factor calculation for NO₂ and HCHO satellite retrievals. Atmospheric Measurement Techniques, 10(3): 759-782 [DOI: 10.5194/amt-10-759-2017]
- Lucht W, Schaaf C B and Strahler A H. 2000. An algorithm for the retrieval of albedo from space using semiempirical BRDF models. IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, 38(2): 977-998 [DOI: 10.1109/36.841980]
- Martin R V. 2008. Satellite remote sensing of surface air quality. Atmospheric Environment, 42(34): 7823-7843 [DOI: 10.1016/j.atmosenv.2008.07.018]
- Palmer P I, Jacob D J, Chance K, Martin R V, Spurr R J D, Kurosu T P, Bey I, Yantosca R, Fiore A and Li Q B. 2001. Air mass factor formulation for spectroscopic measurements from satellites: application to formaldehyde retrievals from the global ozone monitoring experiment. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 106(D13): 14539-14550 [DOI: 10.1029/2000JD900772]
- Qin K, Han X, Li D H, Xu J, Loyola D, Xue Y, Zhou X R, Li D, Zhang K F and Yuan L M. 2020. Satellite-based estimation of surface NO₂ concentrations over east-central China: a comparison of POMINO and OMNO2d data. Atmospheric Environment, 224: 117322 [DOI: 10.1016/j.atmosenv.2020.117322]
- Schaepman-Strub G, Schaepman M E, Painter T H, Dangel S and Martonchik J V. 2006. Reflectance quantities in optical remote sensing—definitions and case studies. Remote Sensing of Environment, 103(1): 27-42 [DOI: 10.1016/j.rse.2006.03.002]
- Seinfeld J H and Pandis S N. 2016. Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change. Hoboken: John Wiley & Sons: 235-331
- Shah V, Jacob D J, Li K, Silvern R F, Zhai S X, Liu M Y, Lin J T and Zhang Q. 2020. Effect of changing NO_x lifetime on the seasonality and long-term trends of satellite-observed tropospheric NO₂ columns over China. Atmospheric Chemistry and Physics, 20(3): 1483-1495 [DOI: 10.5194/acp-20-1483-2020]
- Shindell D T, Faluvegi G, Koch D M, Schmidt G A, Unger N and Bauer S E. 2009. Improved attribution of climate forcing to emissions. Science, 326(5953): 716-718 [DOI: 10.1126/science.1174760]
- van der A R J, Mijling B, Ding J Y, Koukouli M E, Liu F, Li Q, Mao H Q and Theys N. 2017. Cleaning up the air: effectiveness of air quality policy for SO₂ and NO_x emissions in China. Atmospheric Chemistry and Physics, 17(3): 1775-1789 [DOI: 10.5194/acp-17-1775-2017]
- Van Geffen J H G M, Boersma K F, Van Roozendael M, Hendrick F, Mahieu E, De Smedt I, Sneepe M and Veefkind J P. 2015. Improved spectral fitting of nitrogen dioxide from OMI in the 405-465 nm window. Atmospheric Measurement Techniques, 8(4): 1685-1699 [DOI: 10.5194/amt-8-1685-2015]
- Vasilkov A, Krotkov N, Yang E S, Lamsal L, Joiner J, Castellanos P, Fasnacht Z and Spurr R. 2021. Explicit and consistent aerosol correction for visible wavelength satellite cloud and nitrogen dioxide retrievals based on optical properties from a global aerosol analysis. Atmospheric Measurement Techniques, 14(4): 2857-2871 [DOI: 10.5194/amt-14-2857-2021]
- Vasilkov A P, Qin W H, Krotkov N, Lamsal L, Spurr R, Haffner D, Joiner J, Yang E S and Marchenko S. 2017. Accounting for the effects of surface BRDF on satellite cloud and trace-gas retrievals: a new approach based on geometry-dependent Lambertian equivalent reflectivity applied to OMI algorithms. Atmospheric Measurement Techniques, 10(1): 333-349 [DOI: 10.5194/amt-10-333-2017]
- Vasilkov A, Yang E S, Marchenko S, Qin W H, Lamsal L, Joiner J, Krotkov N, Haffner D, Bhartia P K and Spurr R. 2018. A cloud algorithm based on the O₂-O₂ 477 nm absorption band featuring an advanced spectral fitting method and the use of surface geometry-dependent Lambertian-equivalent reflectivity. Atmospheric Measurement Techniques, 11(7): 4093-4107 [DOI: 10.5194/amt-11-4093-2018]
- Veefkind J P, de Haan J F, Sneepe M and Levelt P F. 2016. Improvements to the OMI O₂-O₂ operational cloud algorithm and comparisons with ground-based radar-lidar observations. Atmospheric Measurement Techniques, 9(12): 6035-6049 [DOI: 10.5194/amt-9-6035-2016]
- Walker T W, Martin R V, van Donkelaar A, Leaitch W R, MacDonald A M, Anlauf K G, Cohen R C, Bertram T H, Huey L G, Avery M A, Weinheimer A J, Flocke F M, Tarasick D W, Thompson A M, Streets D G and Liu X. 2010. Trans-Pacific transport of reactive nitrogen and ozone to Canada during spring. Atmospheric Chemistry and Physics, 10(17): 8353-8372 [DOI: 10.5194/acp-10-8353-2010]
- Zhou Y, Brunner D, Spurr R J D, Boersma K F, Sneepe M, Popp C and Buchmann B. 2010. Accounting for surface reflectance anisotropy in satellite retrievals of tropospheric NO₂. Atmospheric Measurement Techniques, 3(5): 1185-1203 [DOI: 10.5194/amt-3-1185-2010]

High-resolution Tropospheric NO₂ Retrieval over Asia based on OMI POMINO v2.1 and quantitative comparison with other products

Zhang Yuhang¹, Lin Jintai¹, Liu Mengyao², Kong Hao¹, Chen Lulu¹, Weng Hongjian¹, Li Chunjin¹

1. Laboratory for Climate and Ocean-Atmosphere Studies, Department of Atmospheric and Oceanic Sciences, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China;

2. Royal Netherlands Meteorological Institute, De Bilt, the Netherlands 3731GA

Abstract: Nitrogen dioxide (NO₂) is both an important primary trace gaseous pollutant and a precursor to ozone and fine particulate matter production. There exist three widely used and publically available tropospheric NO₂ Vertical Column Density (VCD) products based on OMI over East Asia, including QA4ECV from KNMI, OMNO2 from NASA and POMINO from Peking University. The spatiotemporal characteristics of tropospheric NO₂ VCDs in each product have been extensively studied. However, quantitative knowledge of the differences between the three products is still inadequate.

This research firstly updates the POMINO product developed by our group to version 2.1, including bug fixes and algorithm improvement, and expanding the spatial domain to East Asia, much of Southeast Asia and most of South Asia. Compared with QA4ECV and OMNO2 v4, POMINO v2.1 takes into account the anisotropy of surface reflectance and complex radiative effects of aerosols in the process of tropospheric NO₂ AMF calculation. Then we quantitatively compare the NO₂ data of QA4ECV, OMNO2 v4 and POMINO v2.1 in 2015—2020 based on either POMINO v2.1 or each product's valid pixels.

Results show that updates of POMINO do not significantly affect the retrieved NO₂ VCDs (within 10% averaged over the spatial domain, dependent on seasons). When valid satellite pixels of three products are sampled consistently based on cloud radiation fraction of POMINO v2.1, the relative differences between the three products are about 10% averaged over Asia, although the maximum difference can reach 40% or more in severely polluted areas like Beijing-Tianjin-Hebei. A sensitivity test based on POMINO algorithm shows that tropospheric NO₂ VCDs with implicit aerosol correction (as QA4ECV and OMNO2 v4) in December 2017 are lower than those with explicit correction by about 26.4% over Beijing-Tianjin-Hebei, and more than 11% over the whole North China Plain. As far as the long-term trend is concerned, all the three products show a nearly 30% decrease of annual mean tropospheric NO₂ VCDs in Beijing-Tianjin-Hebei in 2015—2020, in contrast to relatively small VCD changes over the Yangtze River Delta. When valid satellite pixels are sampled based on each product's own cloud screening, POMINO v2.1 provides much more valid pixels in polluted situations by 11%—44% and reduces the sampling bias, as a result of its explicit representation of aerosol optical effects in the NO₂ and prerequisite cloud retrieval process.

This research provides a basis for using and interpreting the three products, including their differences, effects of sampling and impacts of aerosol representation. Our results offer insight for better understanding of the pollution of nitrogen oxides and influences of current emission reductions.

Key words: satellite remote sensing, nitrogen oxides, OMI, tropospheric NO₂ VCDs, aerosol, data sampling, air pollution

Supported by National Natural Science Foundation of China (No. 41775115; 42075175); The second Tibetan Plateau Scientific Expedition and Research Program (No. 2019QZKK0604)