

大气 SO₂ 柱总量遥感反演算法比较分析及验证

闫欢欢 李晓静 张兴赢 王维和 陈良富 张美根 徐晋

Comparison and validation of band residual difference algorithm and principal component analysis algorithm for retrievals of atmospheric SO₂ columns from satellite observations

Yan Huan-Huan Li Xiao-Jing Zhang Xing-Ying Wang Wei-He Chen Liang-Fu Zhang Mei-Gen Xu Jin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 084204 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.084204

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.084204>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I8>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

双孔差分闪烁法测量大气湍流的理论与实验研究

Theoretical and experimental study of atmospheric turbulence measurement using two-aperture differential scintillation method

物理学报.2016, 65(7): 074205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.074205>

远海海面大气光学湍流实验测量

Experimental investigation of open sea atmospheric optical turbulence

物理学报.2016, 65(7): 074206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.074206>

近地面大气光学湍流外尺度的实验研究

Experimental investigation of the outer scale in atmospheric optical turbulence near the ground

物理学报.2015, 64(22): 224216 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.224216>

近地面大气光学湍流空间相关特性的实验研究

Spatial correlation experimental analysis of atmospheric optical turbulence in the near ground layer

物理学报.2015, 64(11): 114212 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.114212>

宏-微脉冲激光激发钠信标回波光子数的数值计算与探讨

Numerical calculation and discussion on the return photon number of sodium laser beacon excited by a macro-micro pulse laser

物理学报.2015, 64(9): 094206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.094206>

大气SO₂柱总量遥感反演算法比较分析及验证*闫欢欢¹⁾ 李晓静^{1)†} 张兴赢¹⁾ 王维和¹⁾ 陈良富²⁾ 张美根³⁾ 徐晋⁴⁾

1)(中国气象局国家卫星气象中心, 北京 100081)

2)(中国科学院遥感与数字地球研究所, 遥感科学国家重点实验室, 北京 100101)

3)(中国科学院大气物理研究所, 大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029)

4)(中国科学院安徽光学精密机械研究所, 环境光学与技术重点实验室, 合肥 230031)

(2015年10月20日收到; 2015年12月25日收到修改稿)

卫星遥感技术已成为城市污染气体SO₂监测和全球火山活动监测及预警的重要手段. 目前新的PCA (principal component analysis) 算法有效减小了反演数据噪声, 并替代之前业务算法BRD (band residual difference) 用于边界层SO₂柱总量产品的反演. 然而, 目前对PCA算法反演产品精度的评价和验证研究较少, 缺少与BRD算法产品进行长时间序列的比较以评估算法适用性, 尤其在中国大气污染重点城市区域. 本文利用地基多轴差分吸收光谱仪(MAX-DOAS)观测及多尺度空气质量模式系统(RAMS-CMAQ)大气化学模式模拟等数据, 评估PCA和BRD反演算法的精度及误差. 另外, 选取洁净海洋地区、中国大气污染重点城市区域和高浓度火山喷发三种情况, 比较分析PCA与BRD SO₂总量的时空格局变化差异及对不同SO₂总量下的适用性, 并对两种算法反演不确定性进行分析讨论. 结果表明, 在中国京津冀、珠江三角洲和长江三角洲区域, PCA SO₂总量反演值低于BRD, BRD反演结果更接近于地基的MAX-DOAS观测值, 冬季BRD和PCA SO₂总量值低于RAMS-CMAQ模拟结果, 夏季7月和8月BRD SO₂总量值高于RAMS-CMAQ模拟结果. 在SO₂总量接近于0值的洁净海洋地区, PCA算法产品噪声水平低于BRD算法, 但PCA反演结果整体偏差大于BRD算法. 在高浓度火山喷发情况下, 当SO₂总量大于25 DU时BRD SO₂总量反演值低于PCA, 且随着SO₂总量增大, 两种算法反演值差异亦增大. 该研究对于OMI (Ozone Monitoring Instrument) SO₂产品的应用具有重要的参考价值, 通过分析不同反演算法的差异及对其不确定性追因, 对于算法改进研究也具有科学意义.

关键词: 污染气体SO₂, 卫星遥感反演算法, 比较验证, 不确定性分析

PACS: 42.68.-w, 92.60.Sz, 43.28.We, 91.40.Yt

DOI: 10.7498/aps.65.084204

1 引言

大气中SO₂ (二氧化硫) 的时空变化及气粒转化对全球辐射能量平衡、人体健康及生态系统平衡等产生重大影响^[1-6]. 作为城市空气质量监测和火山喷发事件预警的重要指标, 利用遥感卫星技术实现高精度、连续实时的SO₂含量及其时空分布监

测, 具有非常重要的科学研究意义和应用价值. 卫星遥感技术可弥补传统地面站点观测在空间尺度上的不足, 补充大气污染物监测数据库, 对城市群与区域尺度大气污染进行动态监测和预报^[7,8].

随着GOME (Global Ozone Monitoring Experiment)^[9,10], SCIAMACHY (SCanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHatographY)^[11], OMI (Ozone Monitoring Instru-

* 国家卫星气象中心青年人才基金项目、高分辨率对地观测系统重大专项气象应用示范项目 (批准号: E310/1112)、公益气象行业专项 (批准号: GYHY201106045)、欧盟 FP7 框架国际合作项目 (批准号: 606719) 和国家自然科学基金 (批准号: 41501413) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lixiao@cmaj.gov.cn

ment)^[12], GOME-2 (Global Ozone Monitoring Experiment-2)^[13,14], OMPS (Ozone Mapping and Profiler Suite)等^[15]一系列高光谱紫外卫星传感器的发射,使得卫星探测被广泛应用于量化评估火山SO₂排放总量和城市地区工业SO₂排放.然而SO₂在大气中含量较低,其吸收作用只是卫星探测信号中的弱信号,且受到高浓度O₃在紫外反演波段的强烈吸收干扰,因此高精度的SO₂定量遥感反演比较困难.卫星遥感监测反演算法一直是大气污染监测的重点和热点研究内容,其精度直接决定了卫星反演产品的应用研究范围.

BRD (band residual difference)算法^[16]以其对边界层SO₂的较高探测敏感性,被广泛应用于城市区域SO₂排放监测、区域输送特征、复合污染事件及工业煤电厂点源排放等方面的研究^[17–24].在BRD算法反演技术及改进^[16,22,23,25]、重点城市大气污染和火山喷发事件监测^[17–21,24,26,27]、不同卫星产品交叉比对^[28–30]、地面验证和误差分析等^[22,29,31–33]方面,国内外学者已进行了大量的研究.然而,由于BRD SO₂反演产品中的较高噪声,使得BRD算法不利于进行每日实时的城市污染监测,常需要使用周平均或月平均以获取低噪声的SO₂总量分布图.

PCA(principal component analysis)算法^[34]可弥补BRD算法在数据噪声方面的不足,它利用主成分分析方法,有效降低了反演结果的噪声,可用于边界层SO₂总量的反演.Li等^[34]将PCA算法与BRD算法反演结果进行了比较,表明PCA算法能够更加清晰呈现美国城市火电厂污染排放情况;Fioletov等^[35]利用PCA反演结果进行城市地区SO₂寿命和排放量的估算;Ialongo等^[29]以高纬度火山喷发为研究对象,利用OMI卫星观测和喷发附近地基观测对BRD和PCA SO₂反演结果进行了比较分析.

然而,上述研究只是定性地从空间分布图或者针对高浓度火山喷发进行了PCA和BRD两种算法反演结果的比较,缺少在中国工业排放地区对PCA SO₂反演产品的长时间序列定量比较、地基精度验证和城市污染监测应用评价等方面的研究.因此,考虑到卫星遥感SO₂产品对于中国地区大气污染监测的重要性,很有必要开展OMI BRD与PCA SO₂产品的长时间序列比较,以及与地基观测和模式模拟结果的对比较验证,以评估两种算法

产品精度及在中国地区的适用性.此外,通过进一步对反演过程的不确定性分析,讨论造成反演结果差异的原因,对于算法改进研究也具有重要的科学意义.

2 卫星观测与反演算法

臭氧监测仪OMI搭载在NASA的EOS/Aura卫星上,于2004年7月15日发射升空,其主要目的是研究大气痕量成分及其对气候变化的影响.它采用太阳同步轨道的天底观测方式,是近紫外-可见光波段的高光谱传感器,波长范围为270–500 nm,114°的视场角,扫描幅宽约2600 km,天底象元空间分辨率为13 × 24 km²,赤道过境当地时间约13:30,可实现每天全球覆盖.由于OMI具有较高的光谱分辨率、空间分辨率、信噪比及每日全球覆盖等优势,其大气观测SO₂产品被广泛应用于火山喷发监测及预警、城市污染气体监测、空气质量预报和城市源排放清单估算等方面的研究^[19–22,24,26,28,36].

作为2015年之前OMI SO₂总量反演产品的标准算法,波段差分BRD算法^[16]选择紫外310.8–314.4 nm波段范围内SO₂气体吸收的波峰与波谷^[37],组成三个波长对(P1 = 310.8–311.9, P2 = 311.9–313.2, P3 = 313.2–314.4),将OMTO3^[38] O₃总量和假设波长无关的LER (lambertian effective reflectivity)作为辐射传输模型TOMRAD^[39]的输入,与三个波长对的卫星天顶辐射观测值计算残差实现SO₂柱总量反演,最大化地提取SO₂的有效信息.中国地区实测飞行数据显示,BRD算法能够有效探测较低浓度的人类活动SO₂排放^[22].

目前更新改进的PCA算法^[34]基于主成分分析方法,充分利用OMI仪器的高光谱观测特性,选择310.5–340 nm波段的天顶连续观测光谱,提取与O₃吸收、地表反射率、仪器噪声、Ring效应等因素相关的主成分,结合辐射传输模拟的SO₂雅各比矩阵建立线性反演关系式,直接获得大气中SO₂垂直柱总量.PCA算法有效降低了当前OMI SO₂反演产品的误差,提高了产品质量和数据应用范围,其反演结果目前被用作OMI SO₂边界层总量产品的标准业务算法.

本文使用OMI三级SO₂ PBL (planetary

boundary layer)柱总量数据(数据来源, <http://mirador.gsfc.nasa.gov>), 该数据对OMI二级SO₂ PBL柱总量数据按照观测角度、行异常、海拔高度等条件进行初步的质量筛选, 获得 $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ 全球格网SO₂柱总量. 为保证数据质量, 对产品进行进一步的数据质量控制, 具体为: 1) 自2008年OMI紫外天顶辐射观测受到行异常RA (row anomaly, 参考<http://www.knmi.nl/omi/research/product/rowanomaly-background.php>)的影响, 通过判别RA标示和排除SO₂总量小于10 (火山地区除外)来筛选未受OMI行异常影响的象元; 2) 为筛选尽可能多的有效象元, 选择云量小于30%的象元; 3) 扫描轨道边缘象元的观测角较大、反演误差大, 排除选择该象元; 4) 使用大于0的SO₂总量反演值, 需要注意的是OMI SO₂总量负值可代表低浓度的SO₂排放.

3 BRD和PCA SO₂总量反演的真实性检验

3.1 与地基多轴差分吸收光谱仪(MAX-DOAS)观测结果的比较

利用放置于国家卫星气象中心楼顶(39.95° N, 116.32° E)的MAX-DOAS观测数据, 对OMI BRD和PCA SO₂柱总量反演结果进行真实性检验. 国家卫星气象中心位于北京城区, 对研究北京城市污染气体SO₂的时序变化及输送特征有一定的代表意义. MAX-DOAS仪器由中国科学院安徽光学精密机械研究所研制^[40,41], 由散射光收集系统、温控系统、数据采集及处理系统等组成, 可实时获得紫外高光谱观测数据并进行SO₂, NO₂, O₃总量的实时连续反演, 扫描角度为5°, 10°, 15°, 20°和90°, 仪器扫描方向为正北, 光谱分辨率为0.6 nm左右. MAX-DOAS仪器对近地面污染气体的探测灵敏度较高, 经过与标准气体的定标测试, SO₂总量测量误差约为5%, 探测限约为 1×10^{16} molec./cm² ($1 \text{ DU} = 2.69 \times 10^{16} \text{ molec./cm}^2$). 该仪器观测数据已被张兴赢等^[42]用于SCIAMACHY SO₂总量反演结果的验证比较.

选择2011年1月至2012年4月期间的地基MAX-DOAS观测数据, 其中2011年11月和12月由于仪器观测故障导致数据缺失. 与卫星反演结果

比较前, 首先对地基MAX-DOAS SO₂总量观测结果进行筛选处理. 具体如下: 1) 选择大于0的观测值; 2) 选择卫星过境时间前后(11:00至15:00)的数据进行平均; 3) 用于月平均的数据量保持在3个及3个以上, 以降低观测数据的随机误差.

对比验证结果显示(图1), BRD, PCA SO₂总量和地基MAX-DOAS观测结果都表现出SO₂在冬季的高值和夏季的低值, 这是由于冬季北京及周边地区燃煤取暖、工业排放、气粒转换(SO₂易被转化为硫酸盐颗粒)受低温低湿抑制^[43], 以及地表逆温和边界层高度降低等因素造成SO₂在近地表积累, 夏季较高的大气湿度和温度、较高的气粒转化率及较频繁的降雨等因素会降低大气中SO₂总量. 在定量反演值上, BRD和PCA SO₂总量反演值都低于地基MAX-DOAS SO₂总量观测值(BRD低估约25.9%, PCA低估约60%). 主要原因有: 1) SO₂总量卫星遥感反演主要利用紫外波段辐射观测数据, 较弱的紫外辐射穿过大气层被削减后, 较难到达近地表(陆地上大气中的SO₂主要分布在边界层以下), 易造成卫星SO₂总量反演值的低估; 2) OMI卫星观测的天底象元空间分辨率为 $13 \times 24 \text{ km}^2$, 每个象元反演结果是大区域范围内的平均, 而地基MAX-DOAS为一个站点附近的浓度平均, 空间尺度不一致易导致两者的差异; 3) 地基MAX-DOAS观测与卫星总量反演在处理方法上有差异, 例如反演波段、吸收截面来源、大气质量因子估算、误差校正等方面. 此外, BRD SO₂反演值高于PCA SO₂, 更接近于地基MAX-DOAS SO₂总量观测值(相关系数 $R = 0.85$). 而PCA SO₂总量与地基MAX-DOAS观测结果之间的相关性低于BRD, 相关系数 $R = 0.77$, 季节变化特征也不如BRD明显. 这与PCA算法利用主成分方法解释卫星观测信号中SO₂, O₃及噪声等分量信息及物理含义较模糊等因素有关. 因此, 虽然PCA算法有效降低了SO₂总量反演结果噪声, 但BRD算法更适合于人类工业地区SO₂排放的监测.

此外, 从图1也可看出, 冬季卫星SO₂总量反演值与地基MAX-DOAS观测值的差异高于夏季, 其原因可能是冬季太阳光强比夏季弱, 且冬季SO₂总量常高于夏季, 较弱的紫外辐射较难到达近地表并探测到积聚于边界层以下的SO₂浓度信息, 从而造成冬季SO₂总量反演值低估程度大于夏季.

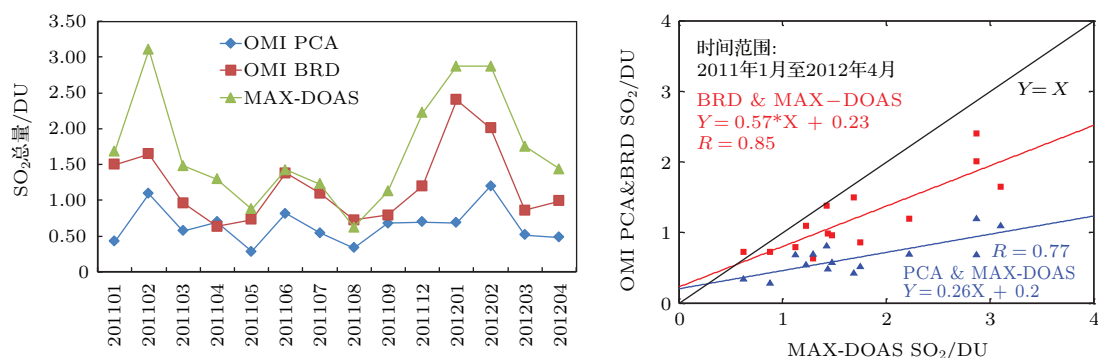


图1 (网刊彩色) 卫星 BRD 和 PCA SO_2 总量与地基 MAX-DOAS SO_2 观测总量比较 (月平均, 数据量为 14)
Fig. 1. (color online) Comparison of monthly averaged BRD, PCA and ground-based MAX-DOAS SO_2 columns (number of samples = 14).

3.2 与多尺度空气质量模式系统 (RAMS-CMAQ) 模式模拟结果的比较

RAMS-CMAQ [44–49] 是由中国科学院大气物理所开发的一个具有嵌套网格功能的空气质量模

式系统, 由区域大气模拟系统 RAMS (regional atmospheric modeling system) [50] 和多尺度空气质量模拟系统 CMAQ (community multi-scale air quality modeling system) [51] 两部分组成, 可用于城市

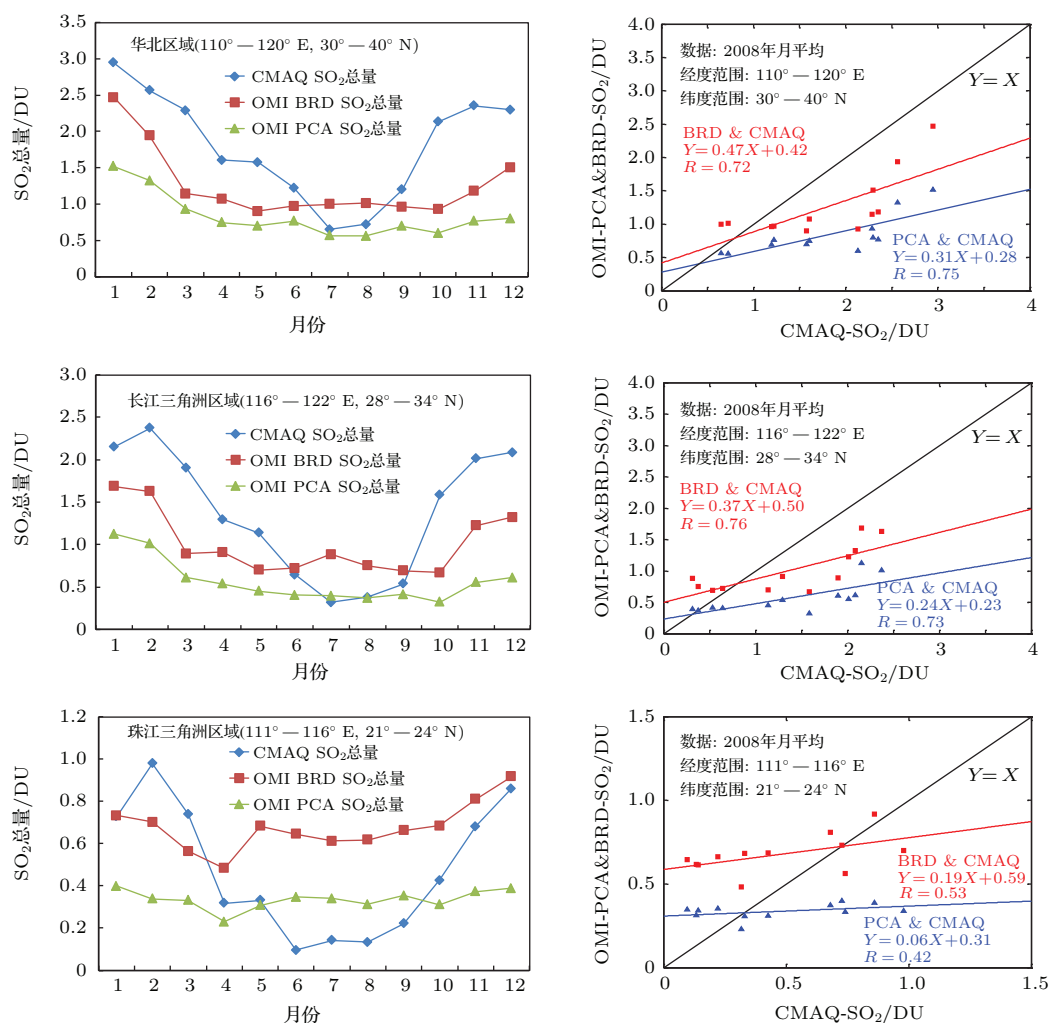


图2 (网刊彩色) RAMS-CMAQ 模拟 SO_2 总量与 OMI BRD 和 PCA SO_2 总量的比较 (2008 年月平均)
Fig. 2. (color online) Comparison of monthly averaged BRD, PCA and RAMS-CMAQ SO_2 columns in 2008.

灰霾污染、区域气候变化等问题的理论与业务预报. 模式垂直方向按高度分为13层(100.0, 220.0, 364.0, 536.8, 744.2, 993.0, 1649.9, 2595.9, 3958.1, 5919.6, 8703.5, 11703.5, 14703.5 m), 着重于描述边界层以及对流层内大气污染物的生成、转化、传输和清除(大气中人为排放SO₂主要集中于对流层以下), 空间分辨率为64 km.

将气象数据和排放源清单^[52]输入到RAMS-CMAQ 空气质量模式系统, 模拟计算得到2008年中国地区SO₂垂直分布及其总量. 选择对应于卫星过境时间的每日13:00模拟结果, 将RAMS-CMAQ模拟得到的SO₂总量与OMI BRD和PCA SO₂总量进行比较分析. 华北地区(110°—120° E, 30°—40° N)、长江三角洲区域(116°—122° E, 28°—34° N)、珠江三角洲区域(111°—116° E, 21°—24° N) 的比较结果显示(图2), 2008年RAMS-CMAQ, BRD 和PCA SO₂总量月平均变化较一致, 都表现出夏季低值和冬季高值; 华北地区和长三角地区冬季RAMS-CMAQ SO₂总量值高于BRD和PCA SO₂总量值, 夏季7月和8月RAMS-CMAQ SO₂总量低于BRD反演值; 珠江三角洲区域RAMS-CMAQ模拟结果与卫星BRD和PCA反演结果差异较大. 相关性分析结果显示, 华北区域2008年PCA和BRD SO₂反演总量与RAMS-CMAQ SO₂模拟总量具有较好的相关

性, PCA与RAMS-CMAQ相关系数 $R = 0.75$, 略高于BRD与RAMS-CMAQ相关系数 $R = 0.72$, 但在SO₂总量值上BRD反演结果更接近于RAMS-CMAQ. 长江三角洲区域PCA和BRD与RAMS-CMAQ的相关系数也分别达到了0.73和0.76. 相比较华北区域和长江三角洲区域, 珠江三角洲区域的相关性较差, PCA和BRD与RAMS-CMAQ的相关系数仅为0.42和0.53. RAMS-CMAQ模拟结果与卫星PCA和BRD反演结果的差异可归因于空间分辨率的不一致、模式排放清单更新滞后误差、卫星反演算法误差等因素.

4 不同地区BRD和PCA SO₂总量的时空变化比较

4.1 洁净海洋地区的比较

受卫星观测随机噪声、光谱定标误差、参考光谱误差和反演算法等因素的影响, SO₂柱总量反演结果存在一定的沿轨和穿轨系统误差. 例如, 在无人为源和自然源排放的洁净海洋区域, 紫外波段反演获取的SO₂柱总量在该地区为非零值^[30]. 由于BRD和PCA SO₂总量反演基于相同的OMI一级辐射观测数据, 因此可排除测量误差对两种算法差异的影响, 利用洁净海洋区域的SO₂总量反演值比较检验BRD和PCA反演算法的精度.

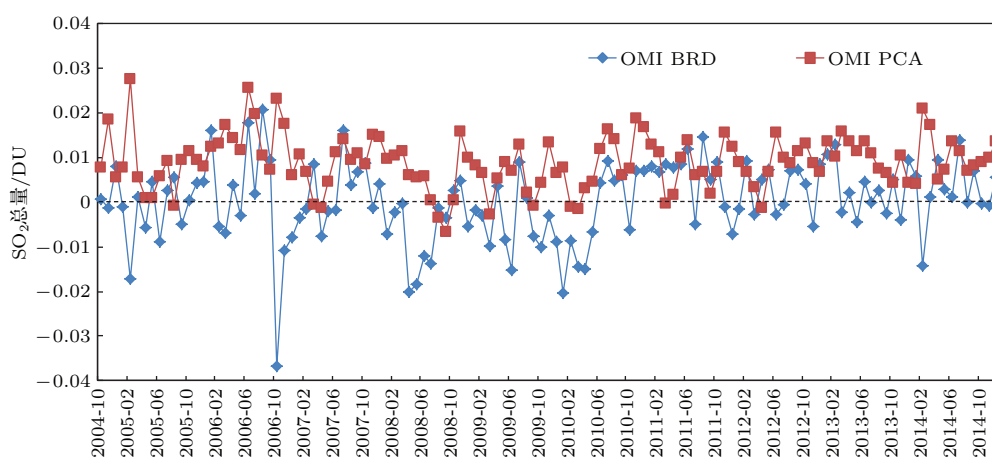


图3 (网刊彩色) BRD和PCA SO₂总量反演值在洁净海洋地区的比较. 数据来自赤道附近海上区域(2.5° S—2.5° N, 150°—165° W), 2004年10月至2014年12月SO₂总量月平均, 数据量为123个; 图中黑色虚线为 $Y = 0$ 线.

Fig. 3. (color online) Comparison of monthly averaged BRD and PCA SO₂ columns over pristine ocean region from October 2004 to December 2014, number of samples = 123. The black dashed line represents the $Y = 0$ line.

选择赤道附近海上区域(2.5°S — 2.5°N , 150° — 165°W)的象元, 筛选大于 -10 (负值可代表低浓度的 SO_2 排放)且小于 10 (排除异常象元)的 SO_2 总量数据进行分析. 该区域具有极低的人类活动 SO_2 排放, 且无火山喷发活动(参考 <http://www.volcano.si.edu> 全球火山活动报告), SO_2 总量应该接近于 0 ^[53]. 然而, 由于受到卫星测量误差和反演误差影响, 该区域的 SO_2 柱总量小于或大于 0 . 如图3所示, 在选择海洋区域内PCA和BRD SO_2 总量反演值较低, 接近于 0 值. 2004年10月至2014年12月期间, PCA SO_2 总量月平均在 -0.007 — 0.028 DU间变化, 总均值为 0.009 DU, 标准差为 0.006 DU; BRD SO_2 总量月平均在 -0.037 DU— 0.021 DU间变化, 总均值为 0.0002 DU, 标准差为 0.009 DU. 由于使用相同的OMI一级辐射观测数据进行反演, 因此在海洋区域PCA算法产品噪声水平低于BRD算法, 但PCA反演结果整体偏差大于BRD算法.

4.2 中国地区的比较

随着中国工业化和城市化的飞速发展, 大气污染物 SO_2 的高强度、集中性排放, 导致城市空气质量恶化, 特别是京津冀地区为近年来中国雾霾污染高发区^[54–57]. 从近十年(2004—2014)卫星监测 SO_2 总量均值空间分布图上可以看出(图4), BRD和PCA算法都反映出京津冀、山东、河南、成都、重庆、珠江三角洲和长江三角洲地区的高值, 低值主要集中在西藏、青海、黑龙江等地. 但BRD SO_2 总量背景值相对较高, 噪声点较多, PCA SO_2 总量

分布图上可以更清晰地看到 SO_2 点源及城市群污染分布状况. 需要注意的是, BRD算法在西藏及周边地区的低值为零值填充值. 图5显示, 由于近年来严格的污染减排控制措施, 与2005—2009年相比, 2010—2014年京津冀及周边地区、珠江三角洲地区、上海及周边地区、重庆及贵州局地等地BRD与PCA SO_2 总量都有所下降, 其中PCA下降幅度和区域范围大于BRD. 京津冀地区前后五年的比较结果显示, BRD SO_2 反演值整体上升约 0.53% , 而PCA整体下降约 12.8% ; 长江三角洲地区, BRD SO_2 反演值整体下降约 5.3% , PCA整体下降约 15.32% ; 珠江三角洲地区, BRD SO_2 反演值整体下降约 1.9% , PCA整体下降约 11.78% .

利用2004年10月—2014年9月的OMI SO_2 总量数据, 选择京津冀、长江三角洲和珠江三角洲这三个中国大气污染重点城市区域, 比较分析BRD与PCA SO_2 总量的长时间序列时空格局变化和两者之间的差异. 从图6可以看出, 京津冀、长江三角洲、珠江三角洲BRD和PCA SO_2 总量均呈现明显的周期性季节变化特征(季节变化原因详见3.1节), 夏季低值, 冬季高值, 两者的相关系数依次为 0.81 , 0.80 , 0.60 . 其中珠江三角洲 SO_2 总量季节变化特征不如京津冀和长江三角洲地区显著, 且 SO_2 总量低于京津冀和长江三角洲, 这与珠江三角洲冬季不供暖、夏季制冷等工业活动和限排污染控制措施有关^[21,42]. 在三个重点城市区域, BRD SO_2 总量反演值均高于PCA, 两种算法的差异在夏季较低, 冬季较高. 以京津冀为例, 夏季BRD较

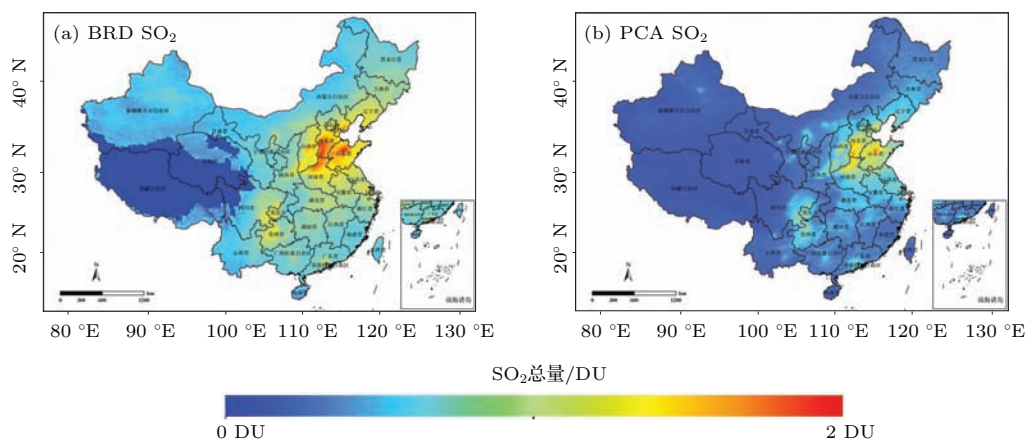


图4 (网刊彩色) 中国 SO_2 总量近十年平均分布图(2004年10月1日—2014年9月30日), 单位: DU, $1\text{ DU} = 2.69 \times 10^{16}\text{ molec./cm}^2$

Fig. 4. (color online) Spatial distribution of averaged OMI SO_2 columns over China from 2004 to 2014, units: DU, $1\text{ DU} = 2.69 \times 10^{16}\text{ molec./cm}^2$.

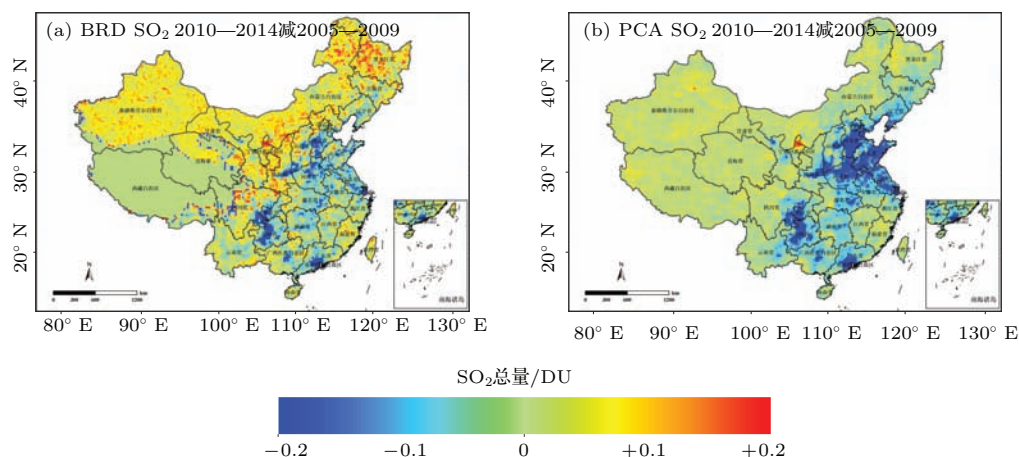


图5 (网刊彩色) 中国 OMI SO₂ 总量 2010—2014 年与 2005—2009 年均值的差值分布图 (单位: DU)

Fig. 5. (color online) Changes of BRD and PCA SO₂ columns from 2005—2009 to 2010—2014 over China.

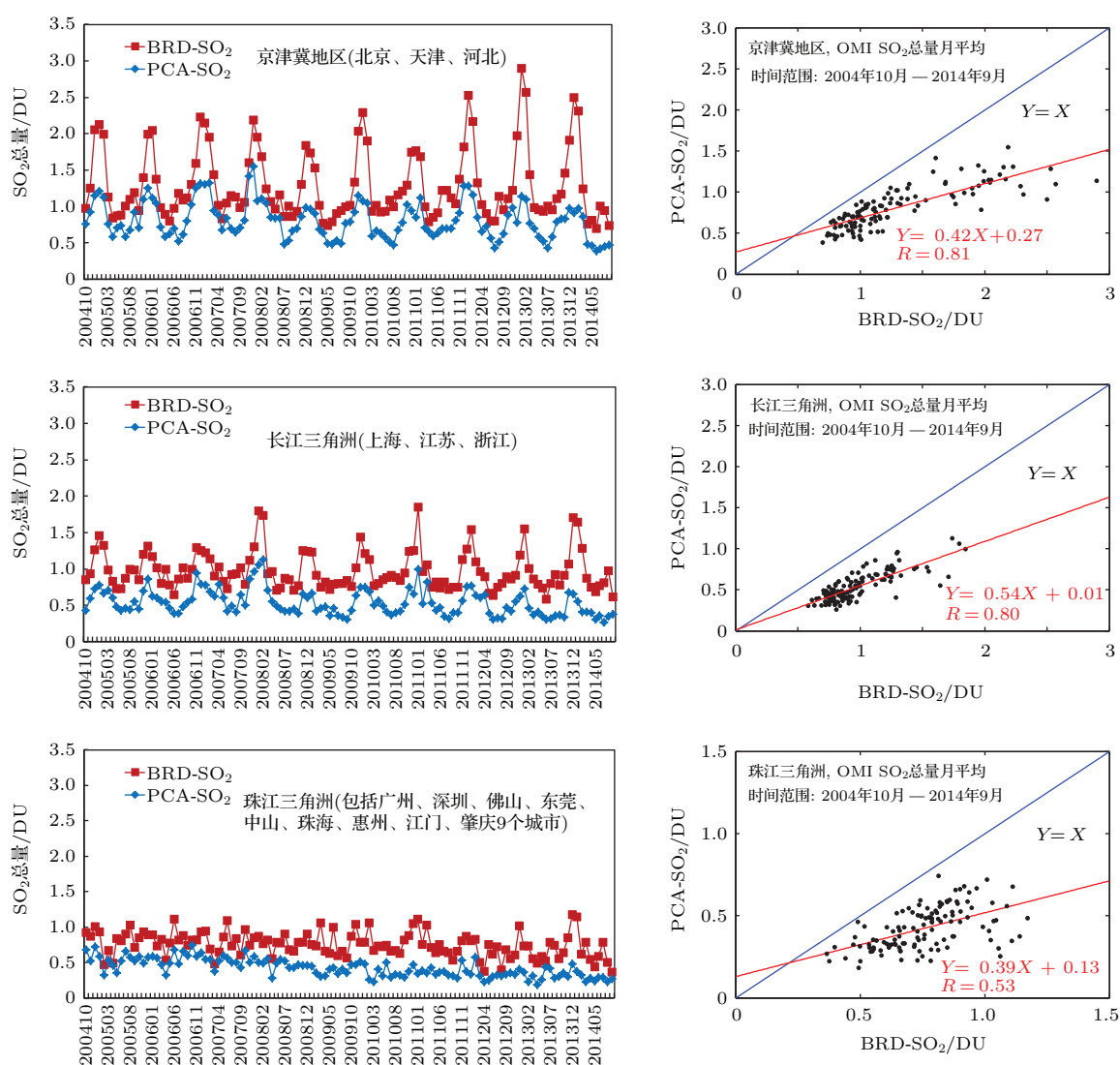


图6 (网刊彩色) 中国大气污染重点监测区域 BRD 和 PCA SO₂ 总量月平均变化比较, 2004 年 10 月至 2014 年 9 月, 左图为长时间序列变化 (数据量为 120 个), 右图为散点图比较

Fig. 6. (color online) Comparison of monthly averaged BRD and PCA SO₂ columns over China's polluted area from October 2004 to September 2014 (left, long-term variations; right, scatter plots).

PCA 高估约 0.42 DU(77%), 冬季约 0.89 DU(83%). PCA 反演结果偏低可能归因于较宽的反演通道 (310.5—340 nm) 及以数据驱动的统计学方法的应用. 此外, BRD 反演结果显示出 2013 年 1 月京津冀区域重度雾霾污染事件中 [54–57] SO_2 总量的明显升高 (高于 2012 年 1 月同期 15%), 而 PCA 算法较往年没有明显的上升 (低于 2012 年 1 月同期 12%).

4.3 高浓度火山喷发地区的比较

留尼汪岛 (Reunion) 位于印度洋西南部 (21.231° S, 55.713° E), 工业化程度低, 四面环海, 其东端的富尔奈斯活火山 (Piton de la Fournaise) 是世界上最活跃的活火山之一 [58,59], 可用于评价不同反演算法对火山 SO_2 排放的监测能力. 2007

年 4 月 2 日起留尼汪岛富尔奈斯活火山开始了一次本世纪以来最大的喷发 [60–62]. 由于该次喷发异常剧烈和对环境造成了巨大影响, 许多文献都对该次留尼汪岛火山喷发进行了科学报道 [58,61–65]. 本文选择 52°–62° E, 15°–25° S 为留尼汪岛火山研究区域, 进行 BRD 和 PCA 算法反演结果的比较.

2007 年 4 月 7 日卫星监测图 (图 7) 显示, BRD 和 PCA 算法对于留尼汪岛火山喷发 SO_2 反演结果空间分布一致, 都能够监测到明显的 SO_2 总量升高及其分布范围和扩散趋势. 然而, 在 SO_2 总量反演定量值上, BRD 和 PCA 算法之间的差异随着 SO_2 总量变化而变化. 当 SO_2 总量小于 30 DU 时, 两种算法差异较小, 接近 $Y = X$ 直线 (图 8). 随着 SO_2

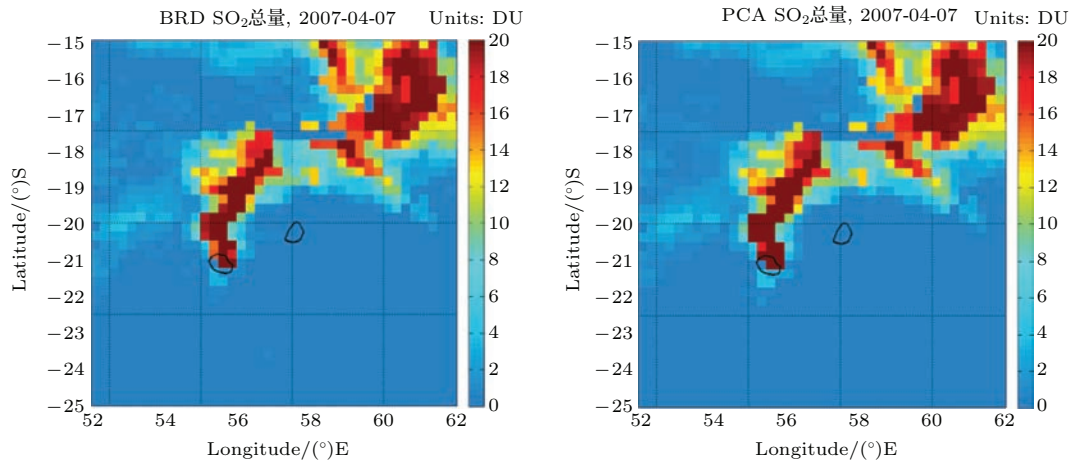


图 7 (网刊彩色) 2007 年 4 月 7 日, 留尼汪岛火山喷发 OMI BRD 和 PCA 反演 SO_2 总量空间分布图

Fig. 7. (color online) SO_2 columns processed with BRD and PCA algorithms over Reunion volcanic eruption on 7 April 2007.

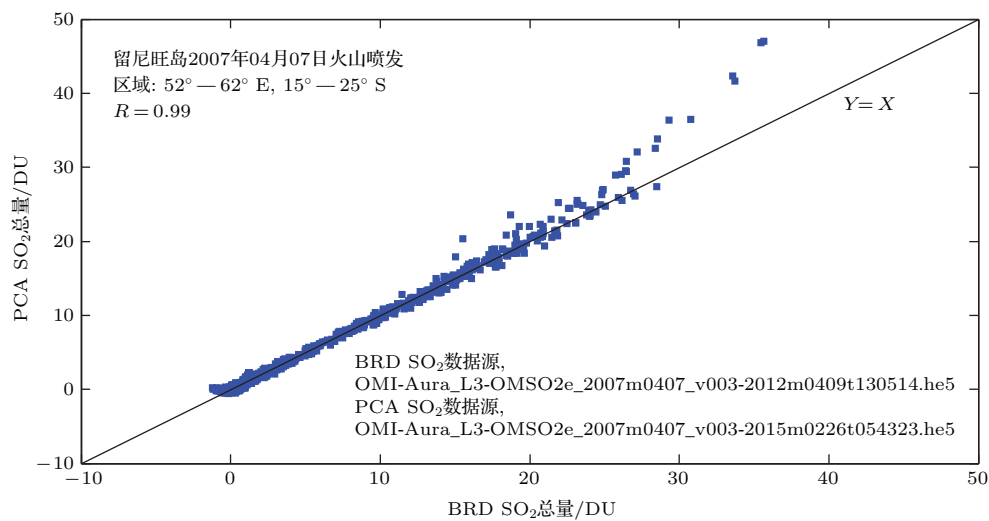


图 8 (网刊彩色) 2007 年 4 月 7 日, 留尼汪岛火山喷发 BRD 与 PCA SO_2 柱总量反演比较, 数据量为 1557 个

Fig. 8. (color online) Scatterplots of SO_2 columns processed with BRD and PCA over Reunion volcanic eruption on 7 April 2007, number of samples = 1557.

总量增大, 两种算法反演值差异亦增大, 当 SO_2 总量达到约 25 DU 时, BRD 反演值开始低于 PCA 反演结果, 当 SO_2 总量达到 30—40 DU 时, 两者的差异达到 18%—32%. 虽然 BRD 算法利用紫外 SO_2 吸收最强和最弱波长对进行反演, 加强了对大气中人类活动低浓度 SO_2 排放的探测能力, 但在火山喷发高浓度 SO_2 排放情况下, 短波紫外强烈的吸收易造成观测饱和, 降低观测路径上其他 SO_2 分子对大气层顶观测辐射的贡献, 加上紫外短波波段散射强烈, 因此易导致火山喷发情况下 BRD 反演结果的低估. PCA 算法使用更宽的紫外 310.5—340 nm 连续光谱进行反演, 充分利用 OMI 高光谱辐射观测特性及对噪声影响进行主成分描述, 紫外长波部分相对较低的散射影响和相对较弱的 SO_2 吸收, 使得 PCA 算法更适用于火山喷发情况下 SO_2 总量的反演、火山喷发传输监测及预警 (参见 5.2 节反演波段选择评估).

5 SO_2 反演精度的不确定性因素分析

卫星遥感监测反演算法一直是大气污染监测的重点和热点研究内容, 其精度直接决定了卫星反演产品的应用范围. 然而, 由于影响大气辐射传输的参数复杂多变, 使得大气成分 SO_2 的遥感定量反演十分困难. 目前卫星 SO_2 反演算法仅能够获取 SO_2 相对分布和变化, 且单日反演结果误差较大. 本节主要从卫星观测辐射误差、反演波段选择、输入参数误差等方面进行 SO_2 总量遥感反演精度的不确定性因素分析.

5.1 卫星观测辐射误差影响

OMI 采用太阳同步轨道的天底观测方式获取每日太阳辐射和地球天顶辐射数据, 每日可获得一轨一级太阳辐射数据和大约 14 轨一级地球辐射数据 (每日的一轨太阳辐射数据被用于处理每日获取的约 14 轨地球辐射数据). BRD 和 PCA 反演算法利用定标后的一级太阳辐射和地球天顶辐射数据进行 SO_2 总量反演, 因此由仪器衰减及定标偏差引起的一级数据误差将会传递给最后反演的 SO_2 总量 [25,66].

Khokhar 等 [67] 应用参考区域方法进行 SO_2 反演背景误差校正, 该方法选择太平洋海上区域 (假定的 SO_2 排放零值区) 的反演值作为背景偏差值,

然后其他地区的反演值减同纬度的海上反演值. 虽然该方法可以部分消除沿轨误差, 但影响 SO_2 柱总量反演值的前向模型误差或卫星测量误差并不是固定的, 而是随着季节、地点、观测几何条件、 O_3 柱总量及地表反射率等变化. 因此, 利用参考区域方法进行 SO_2 柱总量反演背景误差的校正可能会引入新的误差. Yang 等 [30] 针对背景误差提出一种滑动中值残差校正方法, 被应用于 OMI 二级 SO_2 产品, 该方法对中心象元 30 纬度范围的象元区域进行中值采样 (挑选小于 2 DU 的象元), 然后中心象元值减去滑动区域中值. 该方法虽然一定程度上降低了沿轨和穿轨背景误差, 但在不考虑先验知识的情况下, 将所有小于 2 DU 的象元假设为无 SO_2 排放象元 (且没有考虑高值噪声), 可能会导致中国区域出现大量的负值偏差. 因此, 在进行背景误差校正时, 应充分考虑本地 SO_2 排放源清单, 利用 SO_2 洁净地区的背景误差, 建立随时间和空间变化的背景误差校正方法.

需要注意的是, 虽然误差校正对于大气 SO_2 总量卫星遥感反演尤为重要, 但真实背景误差很难准确估算和校正. 当前校正方法虽然能够一定程度上降低反演误差, 但同时也会影响 SO_2 总量反演定量值的精度, 导致仅能够获取 SO_2 总量的相对时空分布和变化.

5.2 反演波段选择的影响

反演通道的选择对于痕量气体 SO_2 定量遥感反演至关重要, 需要综合考虑反演气体吸收强度、其他吸收干扰、散射影响和通道信噪比等因素. 不同的反演通道因散射影响、气体吸收强度、信噪比等差异, 导致对 SO_2 探测敏感性的差异. 如上述 4.2 和 4.3 节所示, 在人类工业地区 BRD (使用紫外 310.8—314.4 nm 波段) SO_2 总量反演值均高于 PCA (使用紫外 310.5—340 nm 连续光谱反演), 在高浓度火山喷发地区 BRD SO_2 总量反演值低于 PCA.

BRD 算法使用紫外 310.8—314.4 nm 范围内的四个波长 (SO_2 气体吸收的波峰与波谷, 分别是 310.8, 311.9, 313.2 和 314.4 nm) (图 9) 进行 SO_2 的反演, 该波段范围内 SO_2 吸收强度高于干扰气体 O_3 , 有效降低 O_3 紫外吸收对 SO_2 反演的影响, 对近地面低浓度 SO_2 总量变化有较高的探测能力. 然而, BRD 算法所使用的紫外短波通道辐射能量较

低,使得算法精度依赖于紫外高光谱卫星辐射观测数据精度,需要较高的仪器信噪比.此外,BRD使用 SO_2 紫外吸收最强的反演波段(图9),在火山喷发高浓度情况下,易造成吸收信号饱和,从而易导致 SO_2 总量反演值被低估(详见4.3节火山喷发情况下的比较).

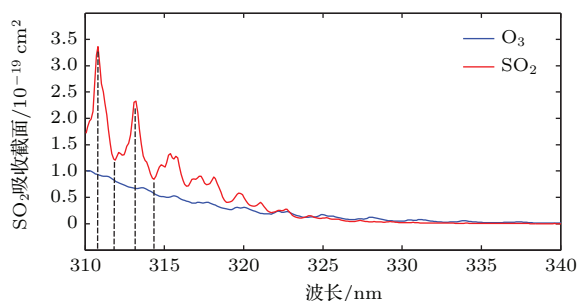


图9 (网刊彩色) SO_2 和 O_3 在紫外波段的吸收截面 [37], 黑色虚线标注了 BRD 算法所使用的四个波长 (310.8, 311.9, 313.2, 和 314.4 nm).

Fig. 9. (color online) SO_2 and O_3 absorption spectrum in UV band [37]. The black dashed lines label the four wavelengths (310.8, 311.9, 313.2, and 314.4 nm) used in the BRD algorithm.

PCA 算法使用紫外 310.5—340 nm 连续光谱进行 SO_2 垂直柱总量反演,有效利用 OMI 的高光谱观测特性,借助主成分分析方法更好地描述噪声影响,有效减小反演数据噪声. 310.5—340 nm 连续反演通道,即可利用 SO_2 在紫外短波 310—314 nm 区间的强吸收,又可利用紫外长波部分的优势(更高的光强和信噪比,更小的大气分子瑞利散射影响),进行人类工业排放和火山喷发等情况下的 SO_2 总量反演(详见 4.2 和 4.3 节).然而,310.5—340 nm 宽波段连续光谱的反演,可能会降低对城市工业低浓度 SO_2 排放的监测敏感性,从而导致 PCA SO_2 总量反演结果低于 BRD(详见 3.1 节和 4.2 节).同时,由于紫外长波处散射影响较小、 SO_2 吸收强度相对较弱和信噪比较高,使得 PCA 算法更适合于高浓度的火山喷发监测.

反演波长的选择,不仅考虑气体吸收强度、其他干扰吸收、散射影响、通道信噪比等因素,还需要考虑反演算法的理论机理.当前的 SO_2 总量反演算法,例如 PCA, BRD, DOAS (differential optical absorption spectroscopy) 等 [14,68], WFDOS (weighted function differential optical absorption spectroscopy) [69], LF (linear fit) 等 [30], 一般假设

观测辐射 (I) 和反演总量 (SO_2) 之间存在简单的线性关系,利用该关系建立反演模型获得大气中 SO_2 总量.然而大气辐射传输过程较复杂,很难使用简单的线性数学模型进行痕量气体反演,即大气辐射传输过程非线性.利用高光谱分辨率大气辐射传输模型 SCIATRAN [70,71],模拟不同浓度情况下 SO_2 权重函数(一阶偏导, $\Delta I/\Delta \text{SO}_2$) 随波长的变化.结果如图 10 所示, $\Delta I/\Delta \text{SO}_2$ 随着 SO_2 总量的增大而降低, 300—330 nm 区间内 $\Delta I/\Delta \text{SO}_2$ 变化剧烈,出现明显的波峰和波谷,而 330—340 nm 区间内 $\Delta I/\Delta \text{SO}_2$ 接近于线性变化,利用该波段进行反演,可在一定程度上降低线性模型带来的反演误差.

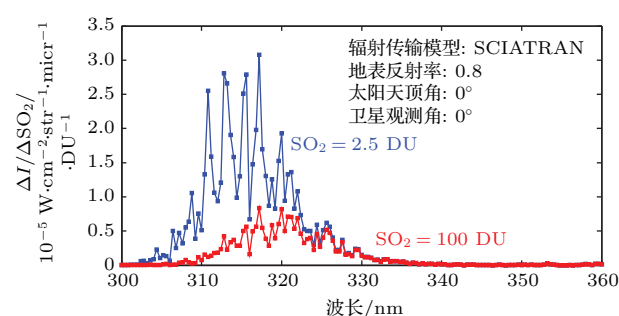


图10 (网刊彩色) 不同浓度情况下 SO_2 权重函数 $\Delta I/\Delta \text{SO}_2$ 随波长的变化, $\Delta I/\Delta \text{SO}_2$ 表示单位 SO_2 增量引起的天顶辐射亮度变化

Fig. 10. (color online) Dependence of SO_2 weighting function $\Delta I/\Delta \text{SO}_2$ on SO_2 column and wavelength.

5.3 反演输入参数误差影响

卫星遥感天底观测一般获取的是整层大气 SO_2 斜柱总量信息,经过大气质量因子 AMF (air mass factor, $\text{AMF} = \text{SCD}/\text{VCD}$) [72] 订正后得到整层 SO_2 垂直柱总量. AMF 依赖于大气的辐射传输特性,与波长、观测几何角度(太阳天顶角、卫星观测角和方位角)、 O_3 柱总量、 SO_2 廓线、温湿廓线、云高及云量、地表压强、地表反射率等因素相关.这些输入参数的误差会影响 SO_2 垂直总量反演结果的精度.

基于高光谱分辨率大气辐射传输模型 SCIATRAN [70,71],在 SO_2 总量为 2.5 DU 情况下,定量分析不同的太阳天顶角、卫星观测角、波长、 O_3 、地表反射率等情况下 AMF 因子的变化(图 11).结果表明: 1) AMF 一般随着太阳天顶角的增大而减小(非单调递减),当太阳天顶角大于 50° 时,减小速率增大,在波长 311.9 nm, O_3 375 DU、卫星观测

天顶角 0° 情况下, 1% 太阳天顶角的增加会引起平均0.42% SO_2 AMF的降低; 2) AMF一般随着卫星天顶观测角的增大而减小, 大于 50° 时, 减速增大, 在波长311.9 nm, O_3 375 DU, 太阳天顶角 0° 情况下, 1% 卫星天顶角的增加会引起平均1.22% SO_2 AMF的降低; 3) AMF一般随着 O_3 柱总量的增大而减小, 在地表反射率0.05、太阳天顶角和卫星观测天顶角 0° 情况下, 1% O_3 柱总量的增加会引起平均0.16% SO_2 AMF的降低; 4) 随着地表反射率的增加, AMF呈现近似直线上升趋势, 在 O_3 375 DU、太阳天顶角和卫星观测天顶角 0° 情况下, 1% 地表反射率的增加会引起平均0.66% SO_2 AMF的增加.

BRD算法最开始使用AMF常数0.36进行斜柱浓度的转换, 该常数计算对应的大气状态为无云和气溶胶, 太阳天顶角 30° , 卫星天底观测, 地表反射率0.05, 地表压强1013.3 hPa, 325 DU的中纬度 O_3 廓线, 美国东部夏季 SO_2 垂直廓线. 然而对

于地表不均一、大气状况和排放源复杂多变的中国地区而言, 利用常数AMF 0.36进行斜柱浓度的转换会影响 SO_2 垂直柱总量反演的精度. Krotkov等^[22]利用辐射传输模型和初始大气参数分析了AMF与 O_3 总量、观测几何之间的相关性, 提出了 SO_2 AMF经验计算模型. 在 O_3 低浓度情况下, 该经验模型能够获取高精度的AMF, 但在 O_3 高浓度情况下, 利用该经验模型获取的AMF值偏低, 从而导致 SO_2 反演误差增大. 并且, 由于大气瑞利散射和米散射的存在, 利用简单的线性几何关系进行AMF的计算精度不够^[23,72]. Lee等^[23]利用全球大气化学模型GEOS-Chem和辐射传输模型LIDORT, 实现了实时本地 SO_2 AMF因子的获取, 但计算精度仍会受到大气状态参数、局地排放清单误差、OMTO3 O_3 反演误差等输入参数误差的影响.

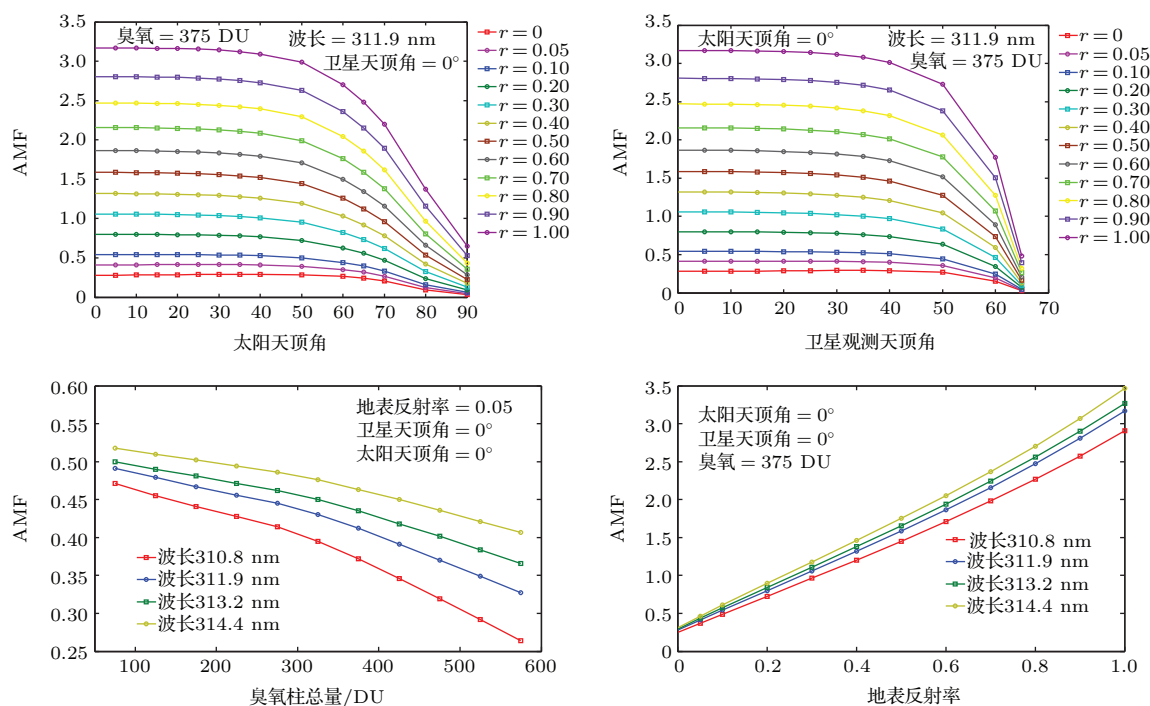


图11 (网刊彩色) 影响 SO_2 AMF因子的各因素敏感性分析(无云条件下), 图中 r 为地表反射率

Fig. 11. (color online) Dependence of SO_2 AMF on solar zenith angle (SZA), view zenith angle (VZA), O_3 column and surface albedo (r) under cloud free condition.

PCA算法反演过程中不需要借助AMF进行斜柱总量向垂直柱总量的转换^[34]. 它是一种数据驱动的统计方法, 反演过程中利用辐射传输模型计算 SO_2 雅各比(一阶偏导矩阵, $\Delta I/\Delta \text{SO}_2$), 与主成分建立线性关系式, 直接获得大气中 SO_2 垂直柱总量. 虽然PCA算法不需要AMF转换, 但 SO_2

雅各比矩阵的计算过程仍需要大气状态参数(SO_2 廓线、 O_3 总量、温湿廓线)、地表参数(地表反射率、地表压强)和观测几何角度(太阳天顶角、卫星观测角和方位角)的输入. 利用辐射传输模型SCIATRAN, 定量分析 SO_2 雅各比与波长、太阳天顶角、卫星观测角、 O_3 总量、 SO_2 总量和地表反射

率等参数之间的相关性. 结果如图 10 和图 12 所示: 1) 在波长 305—330 nm 区间内 $\Delta I/\Delta\text{SO}_2$ 反应最敏感; 2) $\Delta I/\Delta\text{SO}_2$ 一般随着 SO_2 总量的增大而减小, 与 $\text{SO}_2 = 2.5$ DU 情况时相比, $\text{SO}_2 = 100$ DU 时的 $\Delta I/\Delta\text{SO}_2$ 在 305—330 nm 区间呈现明显的降低; 3) 305—330 nm 区间内, $\Delta I/\Delta\text{SO}_2$ 一般随着太阳天顶角的增大而减小, 随着卫星观测角的增大而减小, 随着 O_3 的增大而减小, 随着地表反射率的增大而增大. 在地表反射率 0.8, O_3 总量 375 DU、卫星观测角 0° 情况下, 当太阳天顶角从 0° 增加到 30° 时, 305—330 nm 区间内 $\Delta I/\Delta\text{SO}_2$ 降低了平均约 21.73%, 从 30° 到 60° 时降低了平均约 64.03%, 从

60° 到 80° 时降低了平均约 88.72%. 在地表反射率 0.8, O_3 总量 375 DU、太阳天顶角 0° 情况下, 当卫星观测角从 0° 增加到 30° 时, 305—330 nm 区间内 $\Delta I/\Delta\text{SO}_2$ 降低了平均约 11.64%, 从 30° 到 60° 时降低了平均约 65.50%. 在地表反射率 0.8、太阳天顶角 0° 、卫星观测角 0° 情况下, 当 O_3 总量从 100 DU 增加到 250 DU 时, 305—330 nm 区间内 $\Delta I/\Delta\text{SO}_2$ 降低了平均约 30.87%, O_3 总量从 250 DU 增加到 375 DU 时降低了平均约 27.76%. 在 O_3 总量 375 DU、太阳天顶角 0° 、卫星观测角 0° 情况下, 当地表反射率从 0.05 到 0.8 时, 305—330 nm 区间内 $\Delta I/\Delta\text{SO}_2$ 增大了平均约 12.08%.

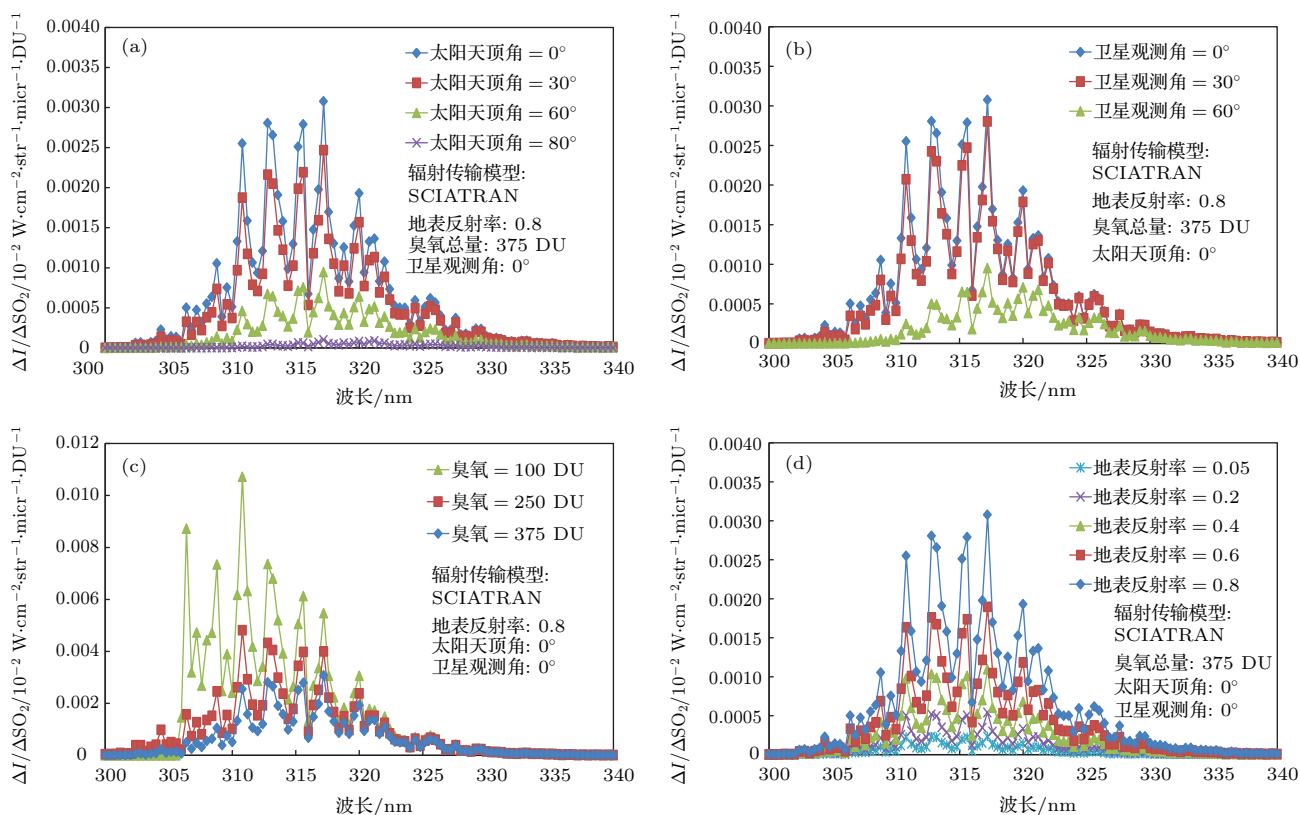


图 12 (网刊彩色) SO_2 雅各比随 (a) 太阳天顶角, (b) 卫星观测角, (c) O_3 , (d) 地表反射率和波长等因素的变化, 随 SO_2 总量的变化参见图 10

Fig. 12. (color online) Dependence of SO_2 Jacobians on (a) solar zenith angle (SZA), (b) view zenith angle (VZA), (c) O_3 column and (d) surface albedo.

6 结 论

针对当前 SO_2 总量产品的两种反演算法 BRD 和 PCA, 本文利用地基 MAX-DOAS 观测数据和 RAMS-CMAQ 模式模拟结果, 对两种算法产品的精度进行验证评价. 此外, 选取洁净海洋地区、中国大气污染重点城市区域和高浓度火山喷发地区, 比

较分析 BRD 与 PCA SO_2 总量的长时间序列时空格局变化和两者之间的差异, 检验两种算法在不同时间、空间和浓度情况下的适用性. 最后, 从观测辐射误差、波段选择、输入参数误差三个方面入手, 对反演算法的不确定性及两种算法差异原因进行分析讨论.

1) 在北京城市工业区, BRD 和 PCA SO_2 总量反演值都低于地基 MAX-DOAS SO_2 总量观测值

(BRD 低估约 25.9%, PCA 低估约 60%), 其中 BRD SO_2 反演值更接近于地基 MAX-DOAS SO_2 总量观测值, 相关系数 $R = 0.85$. BRD 算法更适合于人类工业地区 SO_2 排放的监测.

2) 在华北区域和长江三角洲区域, BRD 和 PCA SO_2 总量反演结果与 RAMS-CMAQ 模式模拟结果的月平均变化较一致, 冬季 RAMS-CMAQ SO_2 总量值高于 BRD 和 PCA SO_2 总量值, 夏季 7 月和 8 月 RAMS-CMAQ SO_2 总量低于 BRD 反演值. 较 PCA, BRD 反演值更接近于 RAMS-CMAQ. 在珠江三角洲区域, 卫星反演结果与 RAMS-CMAQ 模式模拟结果差异较大.

3) 在 SO_2 接近于 0 值的洁净海洋地区, PCA 算法 (0.006 DU) 产品噪声水平低于 BRD 算法 (0.009 DU), 证明了 PCA 算法在噪声处理上的有效性. 但 PCA 反演结果整体偏差大于 BRD 算法.

4) 通过长时间序列比较可知, BRD 和 PCA 算法都能够反映出京津冀、山东、河南、成都、重庆、珠江三角洲和长江三角洲地区的 SO_2 高值. 但 BRD SO_2 总量背景值相对较高噪声点较多, PCA SO_2 总量分布图上可以更清晰地看到 SO_2 点源及城市群污染分布状况. 通过 2004—2014 年前后五年的比较可知, 由于近年来严格的污染减排控制措施, BRD 和 PCA 算法都反映出中国主要城市群 SO_2 总量的降低, 其中 PCA 下降幅度和区域范围大于 BRD. 在京津冀、长江三角洲和珠江三角洲三个重点城市区域, BRD SO_2 总量反演值均高于 PCA, 两种算法的差异在夏季较低, 冬季较高.

5) 在高浓度火山喷发情况下, PCA 和 BRD 算法反演 SO_2 总量空间分布一致, 都能够监测到明显的 SO_2 总量升高及其分布范围和扩散趋势. 然而, 在 SO_2 总量反演定量值上, 当 SO_2 总量大于 25 DU 时 BRD 反演值低于 PCA 反演结果, 且随着 SO_2 总量增大, 两种算法反演值差异亦增大. 当 SO_2 总量达到 30 DU 至 40 DU 时, 两者的差异达到 18% 至 32%. PCA 算法更适用于火山喷发情况下 SO_2 总量的反演、火山喷发传输监测及预警.

6) 卫星观测辐射误差会造成 SO_2 总量反演值在沿轨和穿轨方向上的偏差. 在进行背景误差校正时, 应充分考虑本地 SO_2 排放源清单, 利用 SO_2 洁净地区的背景误差, 建立随时间和空间变化的背景误差校正方法.

7) 反演波段的选择, 应充分考虑反演气体吸收

强度、其他吸收干扰、散射影响、通道信噪比和反演算法等因素, 综合比较进而选择合适的反演通道. 310.8—314.4 nm 波段的强吸收和较弱的 O_3 影响, 使得 BRD 算法更适合于人类工业地区 SO_2 排放的监测. 310.5—340 nm 波段虽然 SO_2 吸收较弱, 但具有更高的信噪比和更小的瑞利散射影响, 更适合于火山喷发情况下的 SO_2 总量监测.

8) BRD 反演过程中 AMF 的计算和 PCA 反演过程中 SO_2 雅各比矩阵的计算, 都需要大气状态参数 (SO_2 廓线、 O_3 总量、温湿廓线)、地表参数 (地表反射率、地表压强) 和观测几何角度 (太阳天顶角、卫星观测角和方位角) 的输入. 这些输入参数的误差会影响 SO_2 总量反演结果的精度, 因此反演过程中需要选择合适的输入参数, 以减小输入参数误差对反演结果精度的影响.

感谢 OMI 研究团队在 OMI 一级辐射数据和二、三级产品数据等方面的支持 (<http://mirador.gsfc.nasa.gov/>); 感谢 Kai Yang 博士、Nickolay A. Krotkov 博士和 Li Can 博士在 SO_2 遥感反演算法方面的支持.

参考文献

- [1] Myhre G, Stordal F, Berglen T F, Sundet J K, Isaksen I S A 2004 *J. Atmos. Sci.* **61** 485
- [2] Benkovitz C M, Schwartz S E, Jensen M P, Miller M A 2006 *Atmos. Chem. Phys.* **6** 4723
- [3] Jernelov A 1983 *Ambio* **12** 362
- [4] Larssen T, Lydersen E, Tang D G, He Y, Gao J X, Liu H Y, Duan L, Seip H M, Vogt R D, Mulder J, Shao M, Wang Y H, Shang H, Zhang X S, Solberg S, Aas W, Okland T, Eilertsen O, Angell V, Liu Q R, Zhao D W, Xiang R J, Xiao J S, Luo J H 2006 *Environ. Sci. Technol.* **40** 418
- [5] Zhao D, Sun B 1986 *Ambio* **15** 2
- [6] Haines A 2003 *Int. J. Epidemiol.* **32** 321
- [7] Fishman J, Bowman K W, Burrows J P, Richter A, Chance K V, Edwards D P, Martin R V, Morris G A, Pierce R B, Ziemke J R, Al-Saadi J A, Creilson J K, Schaack T K, Thompson A M 2008 *B. Am. Meteorol. Soc.* **89** 805
- [8] Martin R V 2008 *Atmos. Environ.* **42** 7823
- [9] Burrows J P, Weber M, Buchwitz M, Rozanov V, Ladstätter-Weissenmayer A, Richter A, DeBeek R, Hoogen R, Bramstedt K, Eichmann K U, Eisinger M 1999 *J. Atmos. Sci.* **56** 151
- [10] Eisinger M, Burrows J P 1998 *Geophys. Res. Lett.* **25** 4177
- [11] Gottwald M, Bovensmann H, Lichtenberg G, Noel S, von Barga A, Slijkhuis S, PETERS A, Hoogeveen R, von

- Savigny C, Buchwitz M 2006 *Sciamachy, Monitoring the Changing Earth's Atmosphere* (Germany: DLR) pp31–42
- [12] Levelt P F, van den Oord G H J, Dobber M R, Malkki A, Visser H, de Vries J, Stammes P, Lundell J O V, Saari H 2006 *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* **44** 1093
- [13] Munro R, Eisinger M, Anderson C, Callies J, Corpaccioli E, Lang R, Lefebvre A, Livschitz Y, Albiñana A P 2006 *Proc. of The 2006 EUMETSAT Meteorological Satellite Conference* Helsinki, Finland, 12–16 June, 2006 p12
- [14] Richter A <http://savaa.nilu.no/PublicArchive.aspx> [2015-12-20]
- [15] Yang K, Dickerson R R, Carn S A, Ge C, Wang J 2013 *Geophys. Res. Lett.* **40** 4957
- [16] Krotkov N A, Carn S A, Krueger A J, Bhartia P K, Yang K 2006 *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* **44** 1259
- [17] Li C, Krotkov N A, Dickerson R R, Li Z Q, Yang K, Chin M 2010 *J. Geophys. Res. Atmos.* **115**
- [18] Li C, Zhang Q, Krotkov N A, Streets D G, He K, Tsay S C, Gleason J F 2010 *Geophys. Res. Lett.* **37** 292
- [19] Carn S A, Krueger A J, Krotkov N A, Yang K, Levelt P F 2007 *Geophys. Res. Lett.* **34** 1093
- [20] McLinden C A, Fioletov V, Boersma K F, Krotkov N, Sioris C E, Veefkind J P, Yang K 2012 *Geophys. Res. Lett.* **39** 81
- [21] Yan H H, Chen L F, Tao J H, Han D, Su L, Yu C 2012 *J. Remote Sens.* **16** 390
- [22] Krotkov N A, McClure B, Dickerson R R, Carn S A, Li C, Bhartia P K, Yang K, Krueger A J, Li Z Q, Levelt P F, Chen H B, Wang P C, Lu D R 2008 *J. Geophys. Res. Atmos.* **113** 259
- [23] Lee C, Martin R V, van Donkelaar A, O'Byrne G, Krotkov N, Richter A, Huey L G, Holloway J S 2009 *J. Geophys. Res.* **114**
- [24] Lee C, Martin R V, van Donkelaar A, Lee H, Dickerson R R, Hains J C, Krotkov N, Richter A, Vinnikov K, Schwab J J 2011 *J. Geophys. Res. Atmos.* **116** 161
- [25] Yan H, Chen L, Tao J, Su L, Huang J, Han D, Yu C 2012 *Atmos. Meas. Tech.* **5** 2635
- [26] Witte J C, Schoeberl M R, Douglass A R, Gleason J F, Krotkov N A, Gille J C, Pickering K E, Livesey N 2009 *Geophys. Res. Lett.* **36** 37
- [27] Carn S A, Krueger A J, Arellano S, Krotkov N A, Yang K 2008 *J. Volcanol. Geoth. Res.* **176** 141
- [28] Fioletov V, McLinden C, Krotkov N, Yang K, Loyola D, Valks P, Theys N, van Roozendael M, Nowlan C, Chance K 2013 *J. Geophys. Res. Atmos.* **118** 11
- [29] Ialongo I, Hakkarainen J, Kivi R, Anttila P, Krotkov N, Yang K, Li C, Tukiainen S, Hassinen S, Tamminen J 2015 *Atmos. Meas. Tech.* **8** 2279
- [30] Yang K, Krotkov N A, Krueger A J, Carn S A, Bhartia P K, Levelt P F 2007 *J. Geophys. Res.* **112** D24S43
- [31] He H, Li C, Loughner C P, Li Z Q, Krotkov N A, Yang K, Wang L, Zheng Y F, Bao X D, Zhao G Q, Dickerson R R 2012 *J. Geophys. Res. Atmos.* **117**
- [32] Cai Z, Liu Y, Wang P, Meng X, Xia J 2008 *Asia-Pacific Remote Sensing* Noumea, New Caledonia, November 18, 2008 p715200
- [33] Wang T, Wang P C, Yu H, et al. 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 054206 (in Chinese) [王婷, 王普才, 余环 等 2013 物理学报 **62** 054206]
- [34] Li C, Joiner J, Krotkov N A, Bhartia P K 2013 *Geophys. Res. Lett.* **40** 6314
- [35] Fioletov V, McLinden C, Krotkov N, Li C 2015 *Geophys. Res. Lett.* **42** 1969
- [36] Li C, Zhang Q, Krotkov N A, Streets D G, He K, Tsay S C, Gleason J F 2010 *Geophys. Res. Lett.* **37** 292
- [37] Bogumil K, Orphal J, Homann T, Voigt S, Spietz P, Fleischmann O C, Vogel A, Hartmann M, Kromminga H, Bovensmann H, Frerick J, Burrows J P 2003 *J. Phototech. Photobio. A* **157** 167
- [38] Bhartia P K, Wellemeyer C W <http://eosps.gsfc.nasa.gov/sites/default/files/atbd/ATBD-OMI-02.pdf> [2015-12-20]
- [39] Dave J V 1964 *Astrophys. J.* **140** 1292
- [40] Xu J, Xie P H, Si F Q, Li A, Dou K, Liu Y, Qin M, Wang M H, Zhang Y, Shi P 2009 *J. Atmos. Environ. Opt.* **4** 347 (in Chinese) [徐晋, 谢品华, 司福祺, 李昂, 窦科, 刘宇, 秦敏, 王曼华, 章勇, 石鹏 2009 大气与环境光学学报 **4** 347]
- [41] Xu J, Xie P H, Si F Q, Li A, Dou K, Liu W Q 2012 *Spectrosc. Spect. Anal.* **32** 558 (in Chinese) [徐晋, 谢品华, 司福祺, 李昂, 窦科, 刘文清 2012 光谱学与光谱分析 **32** 558]
- [42] Zhang X Y, van Geffen J, Liao H, Zhang P, Lou S J 2012 *Atmos. Environ.* **60** 238
- [43] Khoder M I 2002 *Chemosphere* **49** 675
- [44] Zhang M G, Uno I, Yoshida Y, Xu Y F, Wang Z F, Aki-moto H, Bates T, Quinn T, Bandy A, Blomquist B 2004 *Atmos. Environ.* **38** 6947
- [45] Zhang M G, Uno I, Sugata S, Wang Z F, Byun D, Aki-moto H 2002 *Geophys. Res. Lett.* **29**
- [46] Zhang M G, Pu Y F, Zhang R J, Han Z W 2006 *Environ. Modell. Softw.* **21** 812
- [47] Zhang M, Han Z, Zhu L 2007 *China Particuology* **5** 321
- [48] Zhang M, Gao L, Ge C, Xu Y 2007 *Tellus B* **59** 372
- [49] Zhang M G 2005 *Chinese J. Atmos. Sci.* **29** 805 (in Chinese) [张美根 2005 大气科学 **29** 805]
- [50] Pielke R A, Cotton W R, Walko R L, Tremback C J, Lyons W A, Grasso L D, Nicholls M E, Moran M D, Wesley D A, Lee T J, Copeland J H 1992 *Meteorol. Atmos. Phys.* **49** 69
- [51] Byun D W, Ching J K S 1999 *Science Algorithms of the EPA Models 3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System* (Washington: US Environmental Protection Agency) pp1–15
- [52] Lu Z, Zhang Q, Streets D G 2011 *Atmos. Chem. Phys.* **11** 9839
- [53] Chin M, Savoie D L, Huebert B J, Bandy A R, Thornton D C, Bates T S, Quinn P K, Saltzman E S, De Bruyn W J 2000 *J. Geophys. Res. Atmos.* **105** 24689
- [54] Wang Y S, Yao L, Wang L L, Liu Z R, Ji D S, Tang G Q, Zhang J K, Sun Y, Hu B, Xin J Y 2014 *Sci. China: Earth Sci.* **44** 15 (in Chinese) [王跃思, 姚利, 王莉莉, 刘子锐, 吉东生, 唐贵谦, 张军科, 孙扬, 胡波, 辛金元 2014 中国科学: 地球科学 **44** 15]

- [55] Wang Z F, Li J, Wang Z, Yang W Y, Tang X, Ge B Z, Yan P Z, Zhu L L, Chen X S, Chen H S, Wang W, Li J J, Liu B, Wang X Y, Wang W, Zhao Y L, Lu N, Su D B 2014 *Science China: Earth Sciences* **44** 3 (in Chinese) [王自发, 李杰, 王哲, 杨文夷, 唐晓, 葛宝珠, 晏平仲, 朱莉莉, 陈学舜, 陈焕盛, 王威, 李健军, 刘冰, 王晓彦, 汪巍, 赵熠琳, 鲁宁, 苏德斌 2014 中国科学: 地球科学 **44** 3]
- [56] Zhang R H, Li Q, Zhang R N 2014 *Sci. China: Earth Sciences* **44** 27 (in Chinese) [张人禾, 李强, 张若楠 2014 中国科学: 地球科学 **44** 27]
- [57] Ding Y H, Liu J Y 2014 *Sci. China: Earth Sci.* **44** 37 (in Chinese) [丁一汇, 柳艳菊 2014 中国科学: 地球科学 **44** 37]
- [58] Bhugwant C, Sieja B, Bessafi M, Staudacher T, Ecormier J 2009 *J. Volcanol. Geoth. Res.* **184** 208
- [59] Gillot P Y, Nativel P 1989 *J. Volcanol. Geoth. Res.* **36** 53
- [60] Deroussi S, Diamant M, Feret J B, Nebut T, Staudacher T 2009 *J. Volcanol. Geoth. Res.* **184** 193
- [61] Michon L, Staudacher T, Ferrazzini V, Bachelery P, Marti J 2007 *Geophys. Res. Lett.* **34**
- [62] Staudacher T, Ferrazzini V, Peltier A, Kowalski P, Boissier P, Catherine P, Lauret F, Massin F 2009 *J. Volcanol. Geoth. Res.* **184** 126
- [63] Coppola D, Piscopo D, Staudacher T, Cigolini C 2009 *J. Volcanol. Geoth. Res.* **184** 174
- [64] Peltier A, Staudacher T, Bachelery P, Cayol V 2009 *J. Volcanol. Geoth. Res.* **184** 152
- [65] Tulet P, Villeneuve N 2011 *Atmos. Chem. Phys.* **11** 4533
- [66] Veihelmann B, Kleipool Q http://disc.sci.gsfc.nasa.gov/Aura/data-holdings/OMI/documents/v003/RD08_TN785_i1_Reducing_AloneTrack_Stripes.pdf [2015-12-20]
- [67] Khokhar M F, Frankenberg C, van Roozenlad M, Beirle S, Kühl S, Richter A, Platt U, Wagner T 2005 *Adv. Space Res.* **36** 879
- [68] Platt U, Stutz J 2008 *Differential Optical Absorption Spectroscopy: Principles and Applications* (Verlag Berlin Heidelberg: Springer) pp135–158
- [69] Lee C, Richter A, Weber M, Burrows J P 2008 *Atmos. Chem. Phys.* **8** 6137
- [70] Rozanov V V, Buchwitz M, Eichmann K U, de Beek R, Burrows J P 2002 *Remote Sensing of Trace Constituents in the Lower Stratosphere, Troposphere and the Earth's Surface: Global Observations, Air Pollution and the Atmospheric Correction* **29** 1831
- [71] Rozanov A, Rozanov V, Buchwitz M, Kokhanovsky A, Burrows J P 2005 *Adv. Space Res.* **36** 1015
- [72] Palmer P I, Jacob D J, Chance K, Martin R V, Spurr R J D, Kurosu T P, Bey I, Yantosca R, Fiore A, Li Q B 2001 *J. Geophys. Res. Atmos.* **106** 14539

Comparison and validation of band residual difference algorithm and principal component analysis algorithm for retrievals of atmospheric SO₂ columns from satellite observations*

Yan Huan-Huan¹⁾ Li Xiao-Jing^{1)†} Zhang Xing-Ying¹⁾ Wang Wei-He¹⁾ Chen Liang-Fu²⁾
Zhang Mei-Gen³⁾ Xu Jin⁴⁾

1) (National Satellite Meteorological Center, China Meteorological Administration, Beijing 100081, China)

2) (State Key Laboratory of the Science of Remote Sensing, Institute of Remote Sensing and Digital Earth, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China)

3) (State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China)

4) (Key Laboratory of Environmental Optical and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei 230031, China)

(Received 20 October 2015; revised manuscript received 25 December 2015)

Abstract

Remote sensing technology provides an unprecedented tool for the continuous and real-time monitoring of atmospheric SO₂ from volcanic eruption and anthropogenic emission. The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME), SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartographY (SCIAMACHY), and Ozone Monitoring Instrument (OMI) have high SO₂ monitoring capability. The OMI, which was launched on the EOS/Aura platform in July 2004, has the same hyperspectral measurements as the GOME and SCIAMACHY, but offers the improved spatial resolution at nadir ($13 \times 24 \text{ km}^2$) and daily global coverage for short-lifetime SO₂. For OMI operational SO₂ planetary boundary layer (PBL) retrieval, the previous band residual difference (BRD) algorithm has been replaced by principal component analysis (PCA) algorithm, which effectively reduces the systematic biases in SO₂ column retrievals. However, there are few studies on the evaluations and validations of PCA SO₂ retrievals over China, and the long-term comparisons with BRD SO₂ retrievals also need to be conducted. In this study, the accuracies of PCA and BRD SO₂ retrievals are validated by using ground-based multi axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) located in Beijing, and regional atmospheric modeling system, community multi-scale air quality (RAMS-CMAQ) modeling system model which can simulate the vertical distribution of atmospheric SO₂. Moreover, BRD and PCA SO₂ retrievals from oceanic area, eastern China and Reunion volcanic eruption are compared to find the long-term trend and spatiotemporal differences between SO₂ columns. Finally, the uncertainty of SO₂ retrieval, caused by measurement errors, band selection and input parameter errors in radiative transfer model, are analysed to understand the limitations of BRD and PCA algorithms.

Results show that both PCA and BRD SO₂ retrievals over Beijing are lower than ground-based MAX-DOAS measurements of SO₂. PCA and BRD SO₂ retrievals over eastern China are lower than the simulated SO₂ columns from

* Project supported by the Young Science Fund from National Satellite Meteorological Center, High-resolution Earth Observation System, China (Grant No. E310/1112), the Special Scientific Research Fund of Meteorological Public Welfare Profession of China (Grant No. GYHY201106045), Partnership with China on Space Data (PANDA) (Grant No. 606719), National Natural Science Foundation of China (Grant No. 41501413).

† Corresponding author. E-mail: lixiaoj@cma.gov.cn

RAMS-CMAQ in winter 2008, but in July and August BRD SO₂ columns are higher than RAMS-CMAQ simulations. The values of SO₂ columns from BRD over China are more consistent with those from ground-based MAX-DOAS and RAMS-CMAQ model than from PCA. Although PCA algorithm effectively reduces the noise in SO₂ column retrieval, SO₂ columns from PCA over China are lower than those from BRD. For oceanic area where SO₂ amount is nearly zero, the standard deviation of PCA results is lower than that of BRD, but the absolute value of averaged PCA SO₂ column is larger than that of BRD. In the case of Reunion volcanic eruption with SO₂ columns larger than 25 DU, the BRD SO₂ columns are lower than PCA retrievals. Meanwhile, with the increase of SO₂ column, the difference between BRD and PCA SO₂ retrievals increases. Detailed uncertainty analysis shows the influences of measurement errors, band selection and inputs of radiative transfer model on the retrieval results.

This study is important for developing the retrieval algorithm, and can also improve the application of OMI SO₂ products.

Keywords: trace gas SO₂, satellite remote sensing, comparison and validation, uncertainty analysis

PACS: 42.68.-w, 92.60.Sz, 43.28.We, 91.40.Yt

DOI: [10.7498/aps.65.084204](https://doi.org/10.7498/aps.65.084204)