哨兵 5 号欧洲业务二氧化硫产品在中国的准确性评估

夏丛紫¹, 刘诚^{2,3,4,5*}, 蔡兆男^{6*}, 段晓男^{7*}, 赵飞², 刘浩然⁸, 季祥光^{3,9}, 刘建国³

1. 中国科学技术大学地球和空间科学学院, 合肥 230026;
2. 中国科学技术大学工程科学学院, 合肥 230026;
3. 中国科学院安徽光学精密机械研究所, 中国科学院环境光学与技术重点实验室, 合肥 230031;
4. 中国科学院区域大气环境研究卓越创新中心, 厦门 361021;
5. 中国科学技术大学极地环境与全球变化安徽省重点实验室, 合肥 230026;
6. 中国科学院大气物理研究所中层大气与全球环境探测重点实验室, 北京 100029;
7. 中国科学院前沿科学与教育局, 北京 100864;
8. 安徽大学物质科学与信息技术研究院, 合肥 230601;
9. 中国科学技术大学环境科学与光电技术学院, 合肥 230026

* 联系人, E-mail: chliu81@ustc.edu.cn; caizhaonan@mail.iap.ac.cn; xnduan@cashq.ac.cn

2019-12-03 收稿, 2020-03-27 修回, 2020-03-30 接受, 2020-05-07 网络版发表

国家重点研发计划(2017YFC0210002, 2018YFC0213104, 2016YFC0203302, 2017YFC0212800)、安徽省科技重大专项(18030801111)、国家自然科学基金(41720501, 91544212, 51778596, 41575021, 41977184, 41875043)、美丽中国生态文明建设科技工程专项(XDA23020301)、国家大气重污染成因与治理攻关项目(DQGG0102, DQGG0205)、国家高分辨率对地观测重大科技专项(05-Y30B01-9001-19/20-3)和中国科学院青年创新促进会资助

摘要 2017 年 11 月欧洲空间局发射的哨兵 5 号搭载了新一代光谱仪(对流层大气监测仪, TROPOMI), 可实现包括二氧化硫(SO₂)在内的对流层大气成分高空间分辨率全球监测. 欧洲空间局提供的 SO₂ 数据(TROPOMI 欧洲业务 SO₂ 产品)对中国大气污染监测有重要支撑作用, 然而数据有效性尚需验证. 通过对比地基多轴差分吸收光谱仪数据(MAX-DOAS)和生态环境部中国环境监测总站(国控站点)数据, 发现该数据明显高估中国北方 SO₂ 浓度. 相对于地基 MAX-DOAS 站点高估 61%~140%, 且相关性小于 0.5, 相对于国控站点平均高估约 54.6%. 进一步研究表明, 反演算法是造成显著性差异的原因. 为了检验 TROPOMI 高光谱数据的适用性, 自主研发的最优化估计方法也用于处理光谱数据, 反演得到的 SO₂ 柱总量(中国科学技术大学(中国科大)SO₂ 产品)与地基 MAX-DOAS 的偏差大幅降低(-4.8%~22%), 相关性显著提高(0.72~0.89). 与国控站点数据的平均偏差更小, 为-25.8%. TROPOMI 欧洲业务 SO₂ 产品相对于中国科大 SO₂ 产品偏高 41.3%, 并且标示了更大范围的重污染区域, 与中国 SO₂ 大幅减排的事实相悖. 而中国科大 SO₂ 产品大大提高 TROPOMI 结果在中国应用的准确性和价值.

关键词 对流层大气监测仪(TROPOMI), SO₂, 多轴差分吸收光谱仪, 中国环境监测总站

二氧化硫(SO₂)是大气中重要的痕量气体. 全球约 70% 的 SO₂ 来自以煤、石油等化石燃料燃烧和金属冶炼为主的人为源的排放, 其余来自火山喷发等自然源的排放^[1]. 高浓度的 SO₂ 被排放到空气中, 促进了酸雨和硫酸

盐气溶胶的生成, 会对周围环境和空气质量产生不利影响^[2]. 作为中国地区三大常规污染物之一, SO₂ 的日均浓度可用于量化大气污染程度^[3]. 卫星遥感作为一种新技术已经被广泛应用于 SO₂ 的监测^[4~7]. 对流层大气监测仪

(TROPOMI)作为新一代大气成分探测仪, 搭载在 2017 年 11 月发射的哨兵 5 号卫星(Sentinel-5 Precursor, S-5P)上. 它与臭氧监测仪(OMI)和臭氧成像探测仪(OMPS)类似, 属于二维成像光栅光谱仪(charge couple device, CCD),

引用格式: 夏丛紫, 刘诚, 蔡兆男, 等. 哨兵 5 号欧洲业务二氧化硫产品在中国的准确性评估. 科学通报, 2020, 65: 2106–2111

Xia C Z, Liu C, Cai Z N, et al. Evaluation of the accuracy of the Sentinel-5 Precursor operational SO₂ products over China (in Chinese). Chin Sci Bull, 2020, 65: 2106–2111, doi: 10.1360/TB-2019-0772

但是它的星下点空间分辨率(7 km×3.5 km)较OMI(13 km×24 km)和OMPS(50 km×50 km)更高^[8,9]。TROPOMI高分辨率数据用以定量分析中国地区SO₂的分布特征和变化趋势,进而评估大气承载力和人为污染对环境、气候的影响,并且更高的空间分辨率可以识别更小的污染源,进而更加准确地定位污染源的位置^[10,11]。

欧洲航天局发布基于差分吸收方法反演得到TROPOMI SO₂柱总量数据(二级产品, TROPOMI欧洲业务SO₂产品, <https://s5pexp.copernicus.eu/>)^[12]。为了评估其对于中国地区的适应性,本研究采用OFFLINE版本的TROPOMI欧洲业务产品提供的SO₂柱总量(vertical column density, VCD)与地基多轴差分吸收光谱仪(MAX-DOAS)反演的柱总量进行直接对比,然后将其转化为地表浓度与生态环境部中国环境监测总站(国控站点)近地面观测数据(<http://www.cnemc.cn/>)进行间接对比。

首先利用MAX-DOAS数据对TROPOMI欧洲业务SO₂产品进行对比验证。为了减少云、冰雪高反照率地表、光谱拟合误差较大和反演失败像元的影响,本研究仅选择了有效云量低于20%、地表反照率低于30%、反演残差小于0.12%和qa_value大于0.5的TROPOMI欧洲业务SO₂产品用于以下对比^[12]。考虑到卫星数据和地面站点观测数据时空分辨率的区别,在卫星数据和地面站点观测对比中:(1)对于卫星数据,

选择以站点为中心、半径20 km范围内的像元,取中位数作为此站点的卫星观测结果。(2)对于地面站点数据,选择在卫星过境时间(当地时间13:30)前后半小时内且光谱拟合残差小于0.03%的数据,取其中位数作为站点地面观测结果^[13,14]。为了减少来自于卫星数据和地基遥感数据的反演误差,将研究时间段内MAX-DOAS数据和对应站点提取的TROPOMI欧洲业务SO₂数据做周平均(表1,图1)。与MAX-DOAS相比,TROPOMI欧洲业务SO₂数据在合肥、中国气象科学研究院(气科院)、中国科学院大学(国科大)和南城4个站点分别高估了0.17 DU(61.8%)、0.38 DU(136.7%)、0.23 DU(63.35%)和0.36 DU(140%),1 DU=2.69×10¹⁶ mol/cm³,相关性分别为0.16、0.48、0.47和0.22。

然后利用2018年6~12月的国控站点数据,对TROPOMI欧洲业务SO₂数据进行验证。该数据利用欧洲开发的三维化学传输模型(Tracer Model, TM5)模拟的每日SO₂廓线作为SO₂先验廓线,对垂直柱总量进行校正^[15]。一般假设SO₂的先验廓线代表观测时刻的SO₂的垂直分布情况。Nowlan等人^[16]利用先验廓线,将全球臭氧监测仪(GOME-2)观测的SO₂柱总量转化为地表浓度与美国地面站点观测地表浓度进行对比。本研究参考该方法,利用反演采用的TM5模拟每日SO₂廓线,将TROPOMI欧洲业务SO₂数据转化为地表浓度,和国控站点观测SO₂地表浓

度进行对比。发现在我国北方,卫星数据和国控站点观测的地表浓度相关性均在0.5以上(表S1)。对于相关性高于0.6的所有站点,TROPOMI欧洲业务SO₂数据相对于国控站点观测的SO₂地表浓度平均高估9.75 μg/m³(54.6%)。通过与地面MAX-DOAS观测的SO₂柱总量的直接对比和与地面国控站点观测的近地面SO₂浓度的间接对比,说明TROPOMI欧洲业务SO₂产品明显高估了我国北方的SO₂浓度。

一般情况下,SO₂含量低、吸收弱,反演信噪比低,对波段、定标、反演算法等敏感。为了进一步探讨TROPOMI欧洲业务数据高估的可能原因,本研究利用自主研发的最优估计反演方法(OE)^[16-18]处理TROPOMI高光谱数据,得到TROPOMI SO₂柱总量反演结果(中国科学技术大学(中国科大)SO₂产品)。最优估计算法与差分光谱吸收算法在先验廓线、辐射传输计算、辐射定标和光谱定标等方面存在显著的不同(表2)。为了使TROPOMI中国科大SO₂的有效像元和TROPOMI欧洲业务SO₂产品有效像元相匹配,对于TROPOMI中国科大SO₂产品,选择光谱拟合残差小于0.17%的数据,其余筛选条件和验证方法与上述对欧洲业务SO₂数据相同。相对于欧洲业务SO₂数据,中国科大SO₂柱总量和MAX-DOAS SO₂柱总量在合肥、气科院、国科大和南城4个站点的平均偏差更小,分别为-0.01 DU(-4.84%)、0.07 DU(21.91%)、0.00 DU(0%)和0.05 DU(16.64%),相关性更高,分别为

表1 不同反演设置下 TROPOMI SO₂柱总量和地面 MAX-DOAS SO₂柱总量的对比结果^{a)}

Table 1 Comparison statistics between TROPOMI retrievals and MAX-DOAS measurements in different retrieval settings

TROPOMI 反演结果	TROPOMI反演设置		合肥	气科院	国科大	南城
	波段(nm)	SO ₂ 先验 廓线来源	31.78°N, 117.20°E 2018年6月~2019年2月	39.947°N, 116.321°E 2018年06月~2019年05月	40.408°N, 116.675°E 2018年6月~2019年5月	39.781°N, 116.675°E 2018年6月~2019年5月
欧洲业务产品	312.0~326.0	每日, TM5	22, 0.16, 0.17±0.42	37, 0.48, 0.38±0.39	30, 0.47, 0.23±0.34	24, 0.22, 0.36±0.44
中国科大产品	310.5~326.0	月平均, GEOS-Chem	32, 0.79, -0.01±0.07	35, 0.89, 0.07±0.12	30, 0.84, 0.00±0.15	24, 0.72, 0.05±0.14
OE SO ₂	312.0~326.0	月平均, GEOS-Chem	28, 0.02, 0.10±0.22	39, 0.59, 0.14±0.24	34, 0.62, 0.14±0.23	33, 0.25, 0.21±0.34
OE SO ₂	310.5~326.0	每日, TM5	32, 0.64, -0.04±0.09	36, 0.80, 0.07±0.19	30, 0.74, 0.03±0.18	24, 0.78, 0.07±0.14

a) 表格中的对比结果依次为数量、相关性和柱总量平均偏差。单位: DU, $\bar{x} \pm s$, 其中 $\bar{x}$ 为该站点TROPOMI SO₂柱总量VCD_{TROPOMI,i}与地面MAX-DOAS SO₂柱总量VCD_{MAX-DOAS,i}的差值的均值, $i=1, 2, \dots, i$ 表示第*i*周, s 为柱浓度差值的标准差

图1 2018年6月~2019年5月, 4个站点的SO₂周平均柱总量随时间的变化. 黑色表示MAX-DOAS SO₂数据, 红色表示TROPOMI中国科大SO₂产品, 蓝色表示TROPOMI欧洲业务SO₂产品. R 和 diff 分别表示TROPOMI和MAX-DOAS观测结果的相关性和平均偏差(单位: DU). 虚线用于区分不同版本的TROPOMI欧洲业务SO₂数据(版本号: 01.01.00~01.01.07)

Figure 1 Comparison of weekly average SO₂ columns at four stations for the period from June 2018 to May 2019 from MAX-DOAS measurements (black symbol), TROPOMI USTC SO₂ products (red symbol) and S-5P operational SO₂ products (blue symbol). R and diff present the correlation coefficient and mean bias of TROPOMI observations and MAX-DOAS measurements. Vertical black dash lines distinguish the S-5P operational SO₂ products from different (version: 01.01.00~01.01.07)

0.79、0.89、0.84和0.72(表1, 图1). 最优化估计反演方法中选择美国开发的三维化学传输模型(GEOS-Chem)模拟的月平均SO₂廓线作为先验廓线^[20]. 本研究也利用此先验廓线, 将中国科大SO₂数据转化为地表浓度. 与国控站点数据相比, 在我国北方, 中国科大SO₂数据地表浓度平均低估了5.84 μg/m³(25.8%), 相关性在0.5以上, 比TROPOMI欧洲业务SO₂数据和国控站点之间的平均偏差小, 相关性区别不大. 最后, 将中国地区2018年6月~2019年2月平均的欧洲业务SO₂产品和中国科大SO₂产品进行对比(图2). 可以发现, TROPOMI欧洲业务SO₂数据较TROPOMI中国科大SO₂数据明显偏高, 在重污染范围内(33°~45°N, 110°~122°E), TROPOMI

欧洲业务SO₂数据比TROPOMI中国科大SO₂数据平均高0.113 DU(41.3%), 相关性为0.73. 其中, 中国科大SO₂产品标识的主要污染区域主要集中在中国北部, 这与中国工业区的分布具有良好的一致性^[11]. 但是欧洲业务SO₂数据标志了更大范围的污染, 与其他卫星数据和我国SO₂大幅减排的事实相悖^[11]. Fioletov等人^[23]在计算SO₂排放时也发现TROPOMI欧洲业务SO₂产品(01.01.05版本)相对于OMPS和OMI产品存在偏高, 并使用局地偏差校正的方法对反演数据再进行后续处理, 与本研究结论相符. 本研究也发现最新版本(01.01.07)的欧洲业务SO₂产品在中国北方仍然存在明显高估. 而基于最优估计算法反演的数据则无需进行局地偏差校正

等后处理.

从对比验证结果可以看出, 欧洲业务SO₂产品显著高估了我国北方的SO₂浓度, 而利用独立反演算法反演的中国科大SO₂产品与地基数据有更好的一致性. 虽然两种产品的算法原理存在差异(表2), 其中差分吸收方法主要拟合差分光学厚度, 而最优化估计算法则拟合光谱, 但是两者的有效性均有验证^[4,16]. 因此为了分析TROPOMI欧洲业务SO₂产品在中国北方偏高的原因, 本研究主要分析反演参数的设置. 其中, 对SO₂反演影响较大的参数包括云、地表反射率、反演波段和SO₂先验廓线等. 将TROPOMI欧洲业务数据算法^[12]与最优化估计算法进行比较(表2). 两种算法的有效云量和

图2 2018年6月~2019年2月, 空间分辨率为0.1°×0.1°的平均SO₂柱总量在中国地区的空间分布. 数据来源分别为TROPOMI中国科大SO₂产品(a)和TROPOMI欧洲业务SO₂产品(b)

Figure 2 Average SO₂ columns (from June 2018 to February 2019) over China on a 0.1°×0.1° grid derived from TROPOMI USTC SO₂ products (a) and S-5P operational SO₂ products (b)

表2 TROPOMI 欧洲业务 SO₂ 产品和 TROPOMI 中国科大 SO₂ 产品反演算法对比Table 2 Comparison of the retrieval settings between S-5P operational SO₂ products and TROPOMI USTC SO₂ products

	TROPOMI欧洲业务SO ₂ 产品	TROPOMI中国科大SO ₂ 产品
方法	差分吸收光谱法	最优化估计方法
拟含量	差分光学厚度	光谱
软校正	无	有
仪器函数	TROPOMI仪器响应函数v3.0.0 ^[19]	
地表反射率	OMI月平均气候统计数据 ^[20]	
云	哨兵5号二级云产品数据 ^[10]	
反演波段	312~326 nm	310.5~326 nm
SO ₂ 先验廓线	TM5模拟每日廓线 ^[15]	GEOS-Chem模拟月平均廓线 ^[20]
SO ₂ 吸收截面	203 K ^[21]	203, 223, 243, 273, 293 K ^[21]
O ₃ 吸收截面	228, 243 K ^[22]	218, 228, 243, 295 K ^[22]
低阶多项式	5	无

云压数据均来自哨兵5号二级云产品数据, 地表反射率均来自OMI月平均气候统计数据^[12,24]. 最优化估计算法中还采取了辐射定标(soft calibration)对原始光谱信息进行校正. 该校正使较短波长处(310.5~313.5 nm)的光谱拟合残差从5%降为2%, 并且在太平洋洁净地区的SO₂柱总量均值从2.71 DU 降为-0.11 DU. 除此外主要存在两方面的差异: (1)反演波段: 差分光谱吸收算法在中国选择的反演波段为312.0~326.0 nm. 而最优化估计算法选择的反演波段为310.5~326.0 nm. (2) 反演中的先验SO₂廓线设置. 差分光谱吸收算法采用每日TM5模拟的SO₂廓线, 其空间分辨率为1°×1°(纬度×经度)^[15]. 最优化估计算法采用2017年月平均GEOS-Chem模拟的SO₂廓线, 其空间分辨率为2°×2.5°^[20]. 两种模型模拟

的先验廓线的空间分辨率均低于TROPOMI的空间分辨率, 因此在反演中将原始模拟廓线数据插值到TROPOMI像元中. 本研究将差分光谱吸收算法的设置应用于最优化估计算法中反演SO₂的柱总量, 与MAX-DOAS SO₂柱总量进行对比(表1). 由于不采取辐射定标, 最优化估计算法反演得到的光谱拟合残差和太平洋洁净地区SO₂柱总量过大, 因此在后续测试中, 首先采用辐射定标对原始光谱信息进行校正. 在选择反演波段为312.0~326.0 nm时, 反演得到的TROPOMI OE SO₂柱总量相对于MAX-DOAS SO₂柱总量也会偏高(平均偏差: 0.1~0.21 DU, 相关性: 0.02~0.62). 而仅更改先验廓线为TM5模拟的日均SO₂廓线对反演结果影响较小(平均偏差: -0.04~0.07 DU, 相关性: 0.64~

0.80), 这可能是因为两种SO₂先验廓线的形状接近. GEOS-Chem采用中国生态环境部提供针对中国地区的排放清单^[20], 而TM5采用以1990和1995年亚洲区域的排放为基础计算的排放清单^[25]. 因此, 在中国相对于TM5模拟的每日SO₂廓线, GEOS-Chem模拟的月平均SO₂廓线的形状的适用性更强. 综合以上, 反演波段的选择可能是造成TROPOMI欧洲业务SO₂产品高估中国北方SO₂浓度原因. 对于中国科大SO₂产品而言, 辐射定标、波段选择和先验廓线对SO₂反演作用显著. 基于以上设置反演的中国科大SO₂产品可以更加准确地定量分析中国地区SO₂的排放, 识别和定位更小的污染源, 进而分析各地SO₂的源汇关系, 为国家SO₂减排及污染控制提供理论依据和方法参考^[10,11,23].

致谢

感谢欧洲联盟(European Union, EU)和欧洲空间局(European Space Agency, ESA)提供资金资助, 德国航空航天中心(Deutsches Zentrum für Luft-und Raumfahrt, DLR)科学团队提供对流层大气监测仪(TROPOMI)观测的一级光谱数据和哨兵5号二级SO₂数据产品. 感谢欧洲开发的三维化学传输模型(Tracer Model, TM5)团队和美国开发的三维化学传输模型(GEOS-Chem)团队提供的SO₂廓线. 图2涉及的中国地图经自然资源部地图技术审查中心审查, 审图号为GS(2020)1370号.

参考文献

- Faloona I. Sulfur processing in the marine atmospheric boundary layer: A review and critical assessment of modeling uncertainties. *Atmos Environ*, 2009, 43: 2841–2854
- Chin M, Jacob D J. Anthropogenic and natural contributions to tropospheric sulfate: A global model analysis. *J Geophys Res*, 1996, 101:

- 18691–18699
- 3 Yan P Z, Wang X Q, Wang Z F, et al. Analysis of decreases in NO₂ concentrations during Beijing Olympic Games in 2008 (in Chinese). *Clim Environ Res*, 2010, 15: 609–615 [晏平仲, 王喜全, 王自发, 等. 北京奥运会期间 NO₂ 浓度降低原因分析. 气候与环境研究, 2010, 15: 609–615]
- 4 Theys N, Smedt I D, Gent J V, et al. Sulfur dioxide vertical column DOAS retrievals from the Ozone Monitoring Instrument: Global observations and comparison to ground-based and satellite data. *J Geophys Res-Atmos*, 2015, 120: 2470–2491
- 5 Su J. Portable and sensitive air pollution monitoring. *Light-Sci Appl*, 2018, 7: 10–11
- 6 Liu W Q, Chen Z Y, Liu J G, et al. Stereoscopic monitoring technology and applications for the atmospheric environment in China (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2016, 61: 3196–3207 [刘文清, 陈臻懿, 刘建国, 等. 我国大气环境立体监测技术及应用. 科学通报, 2016, 61: 3196–3207]
- 7 Li R, Li J W, Liu Z J, et al. Satellite observational study on correlations among aerosol optical depth, NO₂ and SO₂ over China (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2016, 61: 2524–2535 [李锐, 李俊伟, 刘之杰, 等. 卫星遥感研究中国气溶胶光学厚度、NO₂ 和 SO₂ 的相关性. 科学通报, 2016, 61: 2524–2535]
- 8 Veefkind J P, Aben I, McMullan K, et al. TROPOMI on the ESA Sentinel-5 Precursor: A GMES mission for global observations of the atmospheric composition for climate, air quality and ozone layer applications. *Remote Sens Environ*, 2012, 120: 70–83
- 9 Zhang Y, Li C, Krotkov N A, et al. Continuation of long-term global SO₂ pollution monitoring from OMI to OMPS. *Atmos Meas Tech*, 2017, 10: 1495–1509
- 10 Zhang C X, Liu C, Hu Q H, et al. Satellite UV-Vis spectroscopy: Implications for air quality trends and their driving forces in China during 2005–2017. *Light-Sci Appl*, 2019, 8: 1–12
- 11 Wang T, Wang P, Theys N, et al. Spatial and temporal changes in SO₂ regimes over China in the recent decade and the driving mechanism. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18: 18063–18078
- 12 Theys N, Smedt I D, Lerot C, et al. S5P/TROPOMI SO₂ ATBD Version 1.0.0, 2018
- 13 Hong Q Q, Liu C, Hu Q H, et al. Evolution of the vertical structure of air pollutants during winter heavy pollution episodes: The role of regional transport and potential sources. *Atmos Res*, 2019, 228: 206–222
- 14 Tan W, Liu C, Wang S S, et al. Tropospheric NO₂, SO₂, and HCHO over the East China Sea, using ship-based MAX-DOAS observations and comparison with OMI and OMPS satellite data. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18: 15387–15402
- 15 Huijnen V, Williams J, Weele M V, et al. The global chemistry transport model TM5: Description and evaluation of the tropospheric chemistry version 3.0. *Geosci Model Dev*, 2010, 3: 445–473
- 16 Nowlan C R, Liu X, Chance K, et al. Retrievals of sulfur dioxide from the Global Ozone Monitoring Experiment 2 (GOME-2) using an optimal estimation approach: Algorithm and initial validation. *J Geophys Res-Atmos*, 2011, 116: 1–20
- 17 Cai Z N, Liu Y, Liu X, et al. Characterization and correction of Global Ozone Monitoring Experiment 2 ultraviolet measurements and application to ozone profile retrievals. *J Geophys Res-Atmos*, 2012, 117: 1–16
- 18 Liu X, Bhartia P K, Chance K, et al. Ozone profile retrievals from the ozone monitoring instrument. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10: 2521–2537
- 19 Smeets J, Kleipool Q, Hees R V, et al. Readme for TROPOMI Instrument Spectral Response Functions Version 3.0.0, 2018
- 20 Wang S W, Streets D G, Zhang Q, et al. Satellite detection and model verification of NO_x emissions from power plants in Northern China. *Environ Res Lett*, 2010, 5: 044007
- 21 Bogumil K, Orphal J, Homann T, et al. Measurements of molecular absorption spectra with the SCIAMACHY pre-flight model: Instrument characterization and reference data for atmospheric remote-sensing in the 230–2380 nm region. *J Photochem Photobiol A-Chem*, 2003, 157: 167–184
- 22 Brion J, Chakir A, Daumont D, et al. High-resolution laboratory absorption cross section of O₃. Temperature effect. *Chem Phys Lett*, 1993, 213: 610–612
- 23 Fioletov V, McLinden C A, Griffin D, et al. Anthropogenic and volcanic point source SO₂ emissions derived from TROPOMI onboard Sentinel 5 Precursor: First results. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2020, doi: 10.5194/acp-2019-1095
- 24 Kleipool Q L, Dobber M R, de Haan J F, et al. Earth surface reflectance climatology from 3 years of OMI data. *J Geophys Res-Atmos*, 2008, 113: 1–22
- 25 Ohara T, Akimoto H, Kurokawa J, et al. An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020. *Atmos Chem Phys*, 2007, 7: 4419–4444

Summary for “哨兵5号欧洲业务二氧化硫产品在中国的准确性评估”

Evaluation of the accuracy of the Sentinel-5 Precursor operational SO₂ products over China

Congzi Xia¹, Cheng Liu^{2,3,4,5*}, Zhaonan Cai^{6*}, Xiaonan Duan^{7*}, Fei Zhao², Haoran Liu⁸, Xiangguang Ji^{3,9} & Jianguo Liu³

¹ School of Earth and Space Sciences, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China;

² School of Engineering Science, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China;

³ Key Lab of Environmental Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;

⁴ Center for Excellence in Regional Atmospheric Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China;

⁵ Anhui Province Key Laboratory of Polar Environment and Global Change, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China;

⁶ Key Laboratory of Middle Atmosphere and Global Environment Observation, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China;

⁷ Bureau of Frontier Sciences and Education, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100864, China;

⁸ Institute of Physical Science and Information Technology, Anhui University, Hefei 230601, China;

⁹ School of Environmental Science and Optoelectronic Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

* Corresponding authors, E-mail: chliu81@ustc.edu.cn; caizhaonan@mail.iap.ac.cn; xnduan@cashq.ac.cn

The Sentinel-5 Precursor (S-5P) was launched into low earth orbit with a single payload TROPospheric Monitoring Instrument (TROPOMI) on 13 October, 2017. TROPOMI is able to provide atmospheric composition observations including sulfur dioxide (SO₂) daily and globally. It has a higher spatial resolution, specifically with a ground resolution of 7 km×3.5 km in the nadir, than previous satellite instruments such as Ozone Monitoring Instrument (OMI, 13 km×24 km) and Ozone Mapping and Profiler Suite (OMPS, 50 km×50 km). The three types of S-5P operational SO₂ products (offline (OFFL), Reprocessing (RPRO) and Near Real Time (NRTI)) are on basis of the differential optical absorption spectroscopy (DOAS) algorithm, and available from the S-5P Pre-Operations Data Hub. To evaluate these data, the results of OFFL are compared to the measurements obtained by ground-based Multi-Axis DOAS (MAX-DOAS) and China National Environmental Monitoring Center (CNEMC). We find that the S-5P operational SO₂ products significantly overestimate SO₂ concentrations over Northern China. Compared with four ground-based MAX-DOAS measurements in terms of the weekly average SO₂ vertical column densities (VCDs), the S-5P operational SO₂ products exhibit an overestimation of 61%–140%, with the correlation coefficient less than 0.5. The a priori SO₂ profiles in S-5P operational products are from daily Tracer Model (TM5) simulations. SO₂ surface concentrations are converted by the S-5P operational SO₂ products and a priori SO₂ profiles used in the retrievals. The correlation coefficient between the SO₂ surface concentrations measured by CNEMC over Northern China and those from the S-5P operational products is higher than 0.5, and the S-5P operational products at these CNEMC sites show an overestimation of about 54.6% on average. In this study, the SO₂ products (TROPOMI USTC SO₂ products) are retrieved by the University of Science and Technology of China (USTC) with the optimal estimation algorithm (OE) from TROPOMI measurements, with the a priori SO₂ profiles from monthly average GEOS-Chem simulations. The mean biases between the TROPOMI USTC SO₂ products and the ground-based MAX-DOAS measurements are reduced significantly (–4.8%–22%), together with an improvement in the correlation coefficients (0.72–0.89). TROPOMI USTC SO₂ surface concentrations are transformed by the TROPOMI USTC SO₂ products and a priori SO₂ profiles in the retrievals. Based on the evaluation statistics of the S-5P operational SO₂ products, a smaller mean bias of –25.8% is found between the TROPOMI USTC SO₂ surface concentrations and CNEMC measurements over Northern China. Compared to the TROPOMI USTC SO₂ products in the heavily polluted area (33°–45°N, 110°–122°E), the S-5P operational SO₂ products have an overestimation of around 41.3%, with a correlation coefficient of 0.73. In addition, S-5P operational SO₂ products show a larger area of heavy pollution than TROPOMI USTC SO₂ products. Additionally, the sensitivity analysis indicates many influential factors of the SO₂ retrievals using OE algorithm, such as radiative calibration, fitting window and a priori SO₂ profiles. In the fitting window of 310.5–326.0 nm, the SO₂ columns retrieved by the a priori profiles from monthly GEOS-Chem simulations show better agreement with the MAX-DOAS measurements than those from daily TM5 simulations. A possible reason is that the emission inventory used in GEOS-Chem is based on a Chinese power sector database for 31 provinces supported by CMEP (Chinese Ministry of Environmental Protection), resulting in a better performance of GEOS-Chem than that of TM5 over China in simulations. And the overestimation of the S-5P operational SO₂ products over Northern China may be attributed to the fitting window used.

TROPospheric Monitoring Instrument, sulfur dioxide, multi-axis differential optical absorption spectroscopy, China National Environmental Monitoring Center

doi: 10.1360/TB-2019-0772