

高分五号大气痕量气体差分吸收光谱仪甲醛反演可行性分析及初步结果

王雅鹏^{1,2,3}, 陶金花¹, 程良晓^{1,2}, 余超¹, 范萌¹, 张莹¹, 陈元琳^{1,2},
朱莉莉¹, 顾坚斌¹, 陈良富^{1,2}

1. 中国科学院空天信息创新研究院 遥感科学国家重点实验室, 北京 100101;

2. 中国科学院大学, 北京 100049;

3. 中国气象局 国家卫星气象中心, 北京 100081

摘要: 大气痕量气体差分吸收光谱仪EMI (Environmental trace gases Monitoring Instrument) 是搭载在“高分五号”(GF-5) 卫星上的覆盖紫外—可见光波段的光谱仪, 用于测量240—710 nm波长范围内的地球后向散射和太阳辐射, 旨在量化全球对流层和平流层痕量气体的分布, 如臭氧、二氧化氮等。本文关注EMI载荷对大气弱痕量气体甲醛(HCHO)的探测能力, 并基于实测数据初步评估EMI HCHO产品的探测能力与精度。研究结果表明EMI的辐照度波长校准精度高, 但在不同行之间存在较大的不均匀性, 其波长校正的精度与仪器的狭缝函数高度依赖行位置的变化。基于EMI的HCHO反演的结果表明, EMI UV2频段的标称信噪比较低, 使得利用差分吸收光谱技术(DOAS)得到的HCHO斜柱浓度SCD (Slant Column Density) 存在较大的随机误差和拟合残差。现阶段, 评估得到的EMI HCHO斜柱浓度的不确定性为 1.2×10^{16} molec./cm²。与国际同类载荷TROPOMI (TROPOspheric Ozone Monitoring Instrument)、OMI (Ozone Monitoring Instrument) 的交叉对比验证结果表明, EMI可以捕捉到中国地区夏季HCHO的空间分布特征。EMI & TROPOMI与EMI & OMI的相关系数均大于0.8。但是在华东地区EMI HCHO普遍高于OMI和TROPOMI, 其原因需要进一步研究。本文的研究证明了EMI对夏季HCHO的探测潜力及不足, 可为后续类似载荷的指标设计和算法研发提供参考。

关键词: 遥感, 高分五号, EMI, HCHO, DOAS, 空气质量

引用格式: 王雅鹏, 陶金花, 程良晓, 余超, 范萌, 张莹, 陈元琳, 朱莉莉, 顾坚斌, 陈良富. 2021. 高分五号大气痕量气体差分吸收光谱仪甲醛反演可行性分析及初步结果. 遥感学报, 25(10): 2040–2052

Wang Y P, Tao J H, Cheng L X, Yu C, Fan M, Zhang Y, Chen Y L, Zhu L L, Gu J B and Chen L F. 2021. Feasibility analysis and preliminary results of formaldehyde retrieval based on Environmental trace gases Monitoring Instrument onboard GF-5 satellite. National Remote Sensing Bulletin, 25 (10) : 2040–2052 [DOI: 10.11834/jrs.20210302]

1 引言

甲醛(HCHO)是大气中含量最丰富的碳氢化合物之一, 由于光化学反应和OH自由基的氧化作用, HCHO在大气中的生命周期很短, 只有1.5 h (Anderson等, 1996)。背景大气中的HCHO主要来自于CH₄的氧化, 在大陆区域, 其来源一方面是生物质燃烧、工业活动的直接排放; 另一方面是

人为源, 生物源排放的非甲烷挥发性有机物NMVOCs (Non-Methane Volatile Organic Compounds) 氧化产生的中间产物 (Parrish等, 2012; De Smedt等, 2008)。已有研究证明, 在缺乏地面VOC (Volatile Organic Compounds) 观测资料的情况下, HCHO可以作为VOCs的示踪剂 (Duncan等, 2010), 指示大气的VOCs的状态。从大气化学的角度, HCHO作为VOCs的指示剂, 是大气臭氧的

收稿日期: 2020-07-28; 预印本: 2021-06-09

基金项目: 国家重点研发计划(编号:2017YFB0503901, 2018YFC0213901, 2018YFC0213904); 中国科学院战略性先导科技专项(编号: XDA19010403, XDA19040201); 大气重污染成因与治理攻关项目(编号: DQGG0201)

第一作者简介: 王雅鹏, 1990年生, 女, 工程师, 研究方向为大气成分遥感反演算法。E-mail: wangyp@radi.ac.cn

通信作者简介: 陶金花, 1978年生, 女, 副研究员, 研究方向为大气遥感反演方法研究和应用。E-mail: taojh@aircas.ac.cn

重要前体物之一，影响臭氧的光化学生成（Cheng等，2018；Han等，2018）；此外NMVOCs还可通过转化生成二次有机气溶胶（Kanakidou等，2005），影响空气质量、云微物理特性和辐射平衡。野外观测实验发现，由于有机气溶胶和HCHO同源，两者之间存在高度的相关性，因此可以根据HCHO浓度估算近地面有机气溶胶含量（Liao等，2019）。整体上，对大气中HCHO柱浓度的监测对空气质量和大气化学过程均有具有重要意义。

HCHO在320—360 nm范围内具有弱光学吸收特征，使得通过光学遥感手段获得大气HCHO柱浓度具有可行性（Van Chance等，1991）。卫星观测可提供长达十余年的HCHO全球分布信息，可从空间覆盖、时空动态变化的角度补充地面试验站点的观测，为VOCs的减排效果的定量评估、为VOCs时空分布及变化趋势研究提供科学的数据支撑。

国际上自1996年以来，研究学者便基于GOME（Global Ozone Monitoring Experiment）卫星展开对HCHO产品的算法研究工作（Thomas等，1998；Burrows等，1999）。随后发射的SCIAMACHY（De Smedt等，2008）、OMI（González Abad等，2015；De Smedt等，2015）、GOME2（De Smedt等，2012）、OMPS（González Abad等，2016；Li等，2015）、TROPOMI（De Smedt等，2018）载荷均延续了对大气中HCHO柱浓度的监测能力。国内在HCHO探测方面起步较晚，国内研究学者在基于卫星遥感的HCHO反演算法（朱松岩等，2018）及其空间分布和影响因素方面做了系列研究（咸龙等，2019；朱松岩等，2019）。2018-05-09 GF-5卫星发射成功后，其上搭载的大气痕量气体差分吸收光谱仪EMI（Environmental trace gases Monitoring Instrument）包含了HCHO反演的窗口，可作为HCHO反演新的数据源，但EMI载荷的数据质量（波长校正精度，信噪比等）进行HCHO反演的可行性和局限性尚不清楚。为了进一步挖掘国产卫星载荷在空气质量监测中的潜力，需要结合国际同类载荷（OMI、TROPOMI）的算法经验开发基于EMI载荷的HCHO反演产品，并进行产品精度的验证。

本文围绕EMI载荷讨论HCHO的反演算法。评估EMI HCHO反演的可行性和能力；给出基于EMI的HCHO的初步反演结果，并将EMI与OMI和

TROPOMI的HCHO反演结果进行交叉验证；最后总结讨论本论文的不足和展望。

2 载荷与数据

2.1 EMI

EMI搭载在中国高分五号卫星上，2018-05-09发射成功，用于测量240—710 nm波长范围内的地球后向散射和太阳辐射，光谱分辨率为0.3—0.5 nm（Zhang等，2018；Zhao等，2018）。国内研究学者已经证明了EMI可见光波段在轨观测数据对对流层NO₂柱浓度的探测能力（Cheng等，2019）。本文利用EMI UV2通道进行HCHO反演，其光谱维数为199（行）×1072（光谱维）×1031（扫描线）。在UV2波段，原始光谱的空间分辨率为13 km×8 km。其中13 km代表沿轨方向，其值取决于传感器沿轨方向的积分时间，8 km代表像元对应的穿轨方向的分辨率。在对像元进行合并的时候，一般指的是穿轨方向不同像元的平均。为了提高信噪比，发射前的研究建议对像元进行平均，如对4个像元进行平均，对应13 km×32 km的空间分辨率。实验室发射前校准表明，当合并像元数为6时，UV2通道的信噪比优于200，此外，UV2的辐射校准精度为4.63%，波长校准的最终精度<0.05 nm（Zhao等，2018）。

需要说明的是EMI载荷发射后因为没有星上定标系统，其实际在轨信噪比难以量化。本文的反演没有对像元进行平均，其单轨HCHO产品的维数为1031×191，代表了EMI载荷能对HCHO探测能力的下限。

2.2 OMI QA4ECV及TROPOMI HCHO产品

HCHO是欧盟第七框架（EU-FP7）项目—基本气候变量质量保证QA4ECV（Quality Assurance for Essential Climate Variables）框架内的基本气候变量（ECVs）之一（<http://www.qa4ecv.eu> [2020-07-28]）。QA4ECV数据集旨在为用户提供详细的反演及精度评价信息，代表了目前HCHO产品最先进的算法。该算法由De Smedt等（2018）基于OMI载荷研发，是对上一代由比利时空间航空研究所BIRA（Belgisch Instituut voor Ruimte-Aëronomie）提供的HCHO产品版本（BIRA-IASB v14）的更新，并应用在了TROPOMI载荷的HCHO产品的业务化

系统中。其中 OMI QA4ECV HCHO 数据集的主要改进为

- (1) 采用一个宽的拟合窗口 (328.5—359 nm);
- (2) 采用固定线型的动态拟合的狭缝函数 (OMI QA4ECV);
- (3) 采用太平洋地区的对地观测光谱为参考光谱;
- (4) 采用更高分辨率的 TM5-MP 模式 (Williams 等, 2017) 提供的垂直廓线 ($1^\circ \times 1^\circ$) 替代之前基于 IMAGESv2 CTM 的 $2^\circ \times 2.5^\circ$ 分辨率的 HCHO 廓线;
- (5) 更高精度的背景校正方案。

TROPOMI 可以提供自 2018-05-14 以来高空间分辨率 (2018-05-14—2019-08-06: $3.5 \text{ km} \times 7 \text{ km}$, 约 25 km^2 , 2019-08-06 之后分辨率调整为 $3.5 \text{ km} \times 5 \text{ km}$, 即约 17 km^2) 业务化的 HCHO 产品, 该数据集将提供有关 NMVOC 排放时空变化的更多详细信息。TROPOMI HCHO 产品采用了 De Smedt 等 (2018) 提出的原型算法, 单个像素的随机误差范围为 $(7-12) \times 10^{15} \text{ molec./cm}^2$ 。

本文利用 De Smedt 提供的 OMI QA4ECV 和 TROPOMI HCHO 月均数据集 ($0.05^\circ \times 0.05^\circ$) 与 EMI 反演得到的 HCHO 产品进行交叉对比验证。

3 EMI HCHO 反演

EMI 对大气污染气体 HCHO 的监测能力有待进一步的探究。本节研究 EMI UV2 波段数据对 HCHO 探测的可行性及现阶段探测的不确定性。并将 EMI 与 OMI 和 TROPOMI 的结果进行交叉验证。其中 HCHO 垂直柱浓度 VCD (Vertical Column Density) 反演采用 DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy) 算法, 包括两个关键步骤, 分别是 (1) 光谱拟合过程, 可得到 HCHO 斜柱浓度 SCD (Slant Column Density); (2) 大气质量因子 AMF (Air Mass Factor) 计算过程, 可得到 HCHO AMF。HCHO SCD 与 AMF 的比值代表 HCHO 的垂直柱浓度。

3.1 EMI HCHO 反演可行性分析

HCHO 在大气中是弱信号, HCHO 反演对噪声敏感且有较大的不确定性。而且, DOAS 算法对波长校正的精度 ($\sim 0.002 \text{ nm}$) 高度敏感 (Marchenko 等, 2015)。因此, 本节主要基于模拟光谱讨论信噪比和波长校准精度对 HCHO 反演的影响。模拟

光谱考虑了 HCHO 柱浓度及其垂直分布的季节变化 (HCHO 廓线来自 GEOS-Chem 化学传输模型, 并做月均值处理)、地表反射率 (模拟设置为 0.015)、观测几何 ($\text{SZA}=30^\circ$, $\text{VA}=60^\circ$, $\text{RAA}=45^\circ$)。考虑到本文的研究目标, 模拟参数的地表参数和观测几何设置不变, 仅改变 HCHO 柱浓度的变化。

(1) 信噪比。无噪声条件下, 利用模拟光谱进行 HCHO 反演的结果表明, 本研究的 HCHO 反演算法能捕捉到 HCHO 的月变化趋势, 拟合残差均方根 (RMS) 为 10^{-4} 量级。随着噪声加入模拟光谱, 反演得到的 HCHO SCD 抖动变化, 并伴随着 RMS 的显著增长 (随着 SNR 从 1500 变为 500, RMS 从 10^{-4} 的量级变为 10^{-2} 的量级)。此外, 模拟结果表明辐照度中的噪声会显著影响 HCHO 反演结果, 其影响程度高于仅在辐照度和同时在辐亮度与辐照度中加入噪声的情况。这说明在进行 HCHO 反演时, DOAS 方法中参考光谱的噪声需要慎重对待。该问题在实际反演的过程中, 可通过采用参考区域月均值的辐亮度作为参考光谱的方式进行处理, 以达到平滑参考光谱中噪声的目的。

特别的, EMI UV2 波段的设计信噪比为 200 (Zhao 等, 2018), 相比之下, OMI 实际的 340—360 nm 的单像元的信噪比为 400 (Zara 等, 2018), TROPOMI 的波段 3 的标称信噪比为 1000, 并伴随着更高的空间分辨率 (De Smedt 等, 2018)。根据模拟分析, EMI 按照标称的信噪比, 其 RMS 高于 OMI 20%, 高于 TROPOMI 100%。相应的, OMI 在信噪比为 400 的条件下, 其 RMS 高于 TROPOMI 80%。依据 EMI 实验室测得的信噪比结果, EMI 有望获得与 OMI 相当或稍逊于 OMI 的 HCHO 探测能力。遗憾的是, 因为缺少星上定标系统, 卫星发射后实际的信噪比难以测量。实际在轨运行期间的杂散光和暗电流也无法定量评估, 导致噪声引入的不确定性难以测定。

(2) 波长校正精度对 HCHO 反演结果的影响。通过对模拟光谱的波长加入波长校正误差扰动, 分析波长校正精度对 HCHO 反演结果的影响, 模拟结果表明波长定标精度优于 0.01 nm 能保证由波长漂移引入的 HCHO 反演误差在 $\pm 20\%$ 变化范围内。理论上, EMI 载荷的设计指标为一级光谱波长校正的精度要求优于 0.05 nm , 该指标对 HCHO 反演来说不能满足反演的需求, 因此需要在 HCHO 产品生产之前进行波长精校正。此外, 测试了不

同月份的EMI UV2波段辐亮度数据的波长漂移情况,结果表明,EMI UV2波段波长校正误差在0.04—0.16 nm范围内,且随行和扫描线的位置而变化,纬向上呈从赤道向两极减小的趋势,径向上呈东西对称的分布。即其实际在轨运行期间,波长校正精度在某些观测条件下大于0.05 nm。本文借助夫琅禾费线的位置,采用最小二乘的方法对EMI UV2波段用于HCHO反演的波段进行波长精校正,具体流程参见http://uv-vis.aeronomie.be/software/QDOAS/QDOAS_manual.pdf[2020-07-28],使其精度优于 10^{-3} nm,以便于后续HCHO反演流程。

3.2 EMI HCHO反演光谱拟合

图1(a)为320—370 nm范围内,HCHO及其干扰成分的光学厚度,其中BrO, HCHO, NO₂, O₄和O₃的斜柱浓度分别为 1×10^{14} molec./cm², 2×10^{16} molec./cm², 2×10^{16} molec./cm², 2×10^{43} molec.²/cm⁵, 1×10^{19} molec./cm²。图1(b)与图1(c)表示与EMI狭缝函数做卷积之后的结果(行位置为100,对应的FWHM=0.5)。从图1可以看出,为了避免臭氧(<328 nm)强吸收和O₄(360 nm)的强干扰,HCHO反演的拟合窗口通常选择为328.5—346 nm和328.5—356 nm,但是由于HCHO吸收截面与BrO的强耦合性,BrO对HCHO的反演也会产生干扰,尤其是在~330 nm附近。为优化BrO对HCHO反演的影响,有学者提出采用两步法进行DOAS算法反演,第1步选择BrO的拟合窗口,确

定BrO斜柱浓度,第2步采用HCHO的拟合窗口,对BrO斜柱浓度中采用第1步确定的值,且第2步拟合过程中不再拟合BrO吸收截面。该方法在基于OMI、TROPOMI载荷的反演中都得到了成功的应用(De Smedt等,2018)。此外,在基于光谱强度的HCHO斜柱浓度拟合反演算法中,直接将BrO的吸收截面考虑在拟合过程中(González Abad等,2015),该方法不适用于BrO高值区域(极地春季)。对于EMI载荷,为避免BrO反演的不确定性传递到HCHO的反演中,影响HCHO反演的稳定性,且本文有效的反演时段主要集中在HCHO信号强的夏季,因此直接将BrO的吸收截面考虑在HCHO光谱拟合的过程中。基于对EMI UV2波段的测试,EMI HCHO拟合参数设置如表1所示。与De Smedt等(2015)的参数设置相似,本文选择的HCHO反演的拟合窗口为328.5—346 nm,拟合阶数为5,考虑了HCHO、O₃(228 K和295 K)、NO₂、BrO、O₄和Ring吸收截面。吸收截面与相应行的FWHM做卷积,使其光谱分辨率与仪器光谱分辨率相一致。此外,本文的光谱拟合考虑了线性强度偏移。参考光谱选择过太平洋区域(纬度20°N—50°N,经度160°E—140°W)对地观测的月均值。相较于采用2018-06-12 EMI观测的辐照度为参考光谱,采用过太平洋区域的对地观测光谱的月均值做为参考光谱可回避EMI辐照度仅观测两次的局限,同时还可以有效降低HCHO SCD拟合结果中的条带噪声。

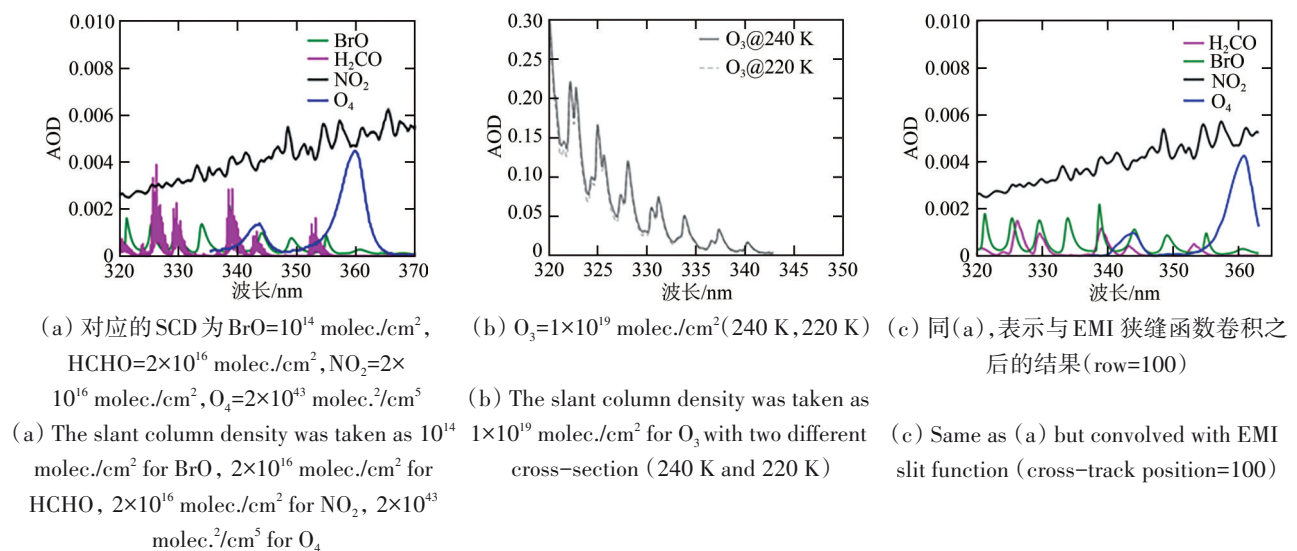


图1 BrO, HCHO, NO₂, O₄与O₃光学厚度
Fig. 1 Optical depth of BrO, HCHO, NO₂, O₄ and O₃

表1 EMI HCHO 拟合参数

Table 1 HCHO fitting parameter setting based on EMI

参数	参量设置
拟合窗口/nm	328.5—346
参考光谱 I_0	太平洋区域月均值(20°N—50°N, 160°E—140°W)
拟合阶数	5阶
考虑的 吸收界面	H ₂ CO (Chance 和 Orphal, 2011), 300 K O ₃ (Malicet 等, 1995), 228, 295 K NO ₂ (Vandaele 等, 1998), 220 K BrO (Wilmouth 等, 1999), 228 K O ₄ (Thalman 和 Volkamer, 2013), 293 K
Ring 效应 强度偏移	QDOAS Ring 计算工具 线性

3.3 EMI HCHO AMF 计算

EMI HCHO AMF 的计算利用 SCIATRAN (Rozanov 等, 2014, 2017) 正向辐射传输模型构建基于观测几何、地表反射率和地表高程在 340 nm 波长处的查找表, 查找表的节点设置如表 2 所示。单像元的 AMF 通过多次样条插值的方法得到。

表2 EMI HCHO AMF LUT 340 nm 参数设置

Table 2 Parameters that define the HCHO AMF look-up table at 340 nm

参数	节点数	值
SZA/(°)	16	0, 10, 20, 30, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 72, 74, 76, 78, 80
VZA/(°)	9	0, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 65, 70
RAA/(°)	5	0, 45, 90, 135, 175
地表反射率	14	0, 0.01, 0.025, 0.05, 0.75, 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0
地表高程/m	14	0, 100, 300, 500, 800, 1000, 1200, 1500, 1800, 2000, 2500, 3000, 4000, 5000

理论上 AMF 还受云与气溶胶的影响。在 EMI HCHO 的计算过程中, 为了简化, 仅考虑晴朗天气条件下的 AMF 计算, 不考虑云与气溶胶对 AMF 的影响。图 2 (a) 展示了基于 GEOS-Chem CMT 模型得到的 HCHO 廓线的 5 种分类结果 (Wang 等, 2019), 及其对应的 340 nm 处的 AMF 对太阳天顶角 (图 2 (b)) 和地表反射率 (图 2 (c)) 的响应。结果表明, HCHO AMF 高度依赖其 HCHO 廓线的形状因子。不同 HCHO 廓线之间的差异可达 40%, 且不同形状因子之间的差异在 SZA < 70° 的条件下, 随天顶角的增大而增加。当 SZA > 70° 时, AMF 随 SZA 增大且近乎线性增加的趋势被改变, 该观测条件下, 因为光路的增加, 会给反演带来大的不确定性, 因此, 本文仅讨论 SZA < 70° 条件下的 EMI

HCHO 反演。图 2 (c) 表明, 随着地表反射率的增加, 不同廓线之间的差异被弥合, 但是在地表反射率较小的条件下, 廓线形状的差异依然存在, 如在 342 nm 地表反射率为 0.025 的条件下, 不同廓线形状造成的差异可达到 34%。在 HCHO 反演算法中, 冰雪覆盖的亮表面和强烈的反照率时空变异性是需要谨慎处理的。

4 EMI HCHO 结果与验证

4.1 EMI HCHO 结果

由于本研究采用了太平洋区域月均值辐亮度数据为参考光谱, SCD 中的 ‘条带效应’ 得到了有效的缓解。得到的 HCHO 斜柱浓度结果为相对于参考区域的差分斜柱浓度。基于 EMI 载荷 HCHO 反演的拟合残差的均方根为 10^{-3} 量级, 除云污染区域造成的显著高值外, 基本上 RMS 分布在 $1.5-3 \times 10^{-3}$ 范围内。对于 HCHO 反演来说, 云量 > 20% 就会给反演引入较大的误差 (Wang 等, 2019)。鉴于 EMI 缺少与之相匹配的云参数, 这里采用波段阈值法及 RMS 相结合的方法去除反演结果中的异常值。因为 EMI 较细的空间分辨率及较低的信噪比 EMI HCHO SCD 拟合的 RMS 实际上比 OMI 高 100%。

对单个像元而言, 斜柱浓度的随机误差是其总误差的主要来源。在 HCHO 浓度变化不大的区域, 斜柱浓度的标准差可以作为其随机误差。对 EMI 传感器, 统计 2018-08-19, 在过赤道的太平洋地区 (30°S—30°N, 150°E—180°E) 范围内对应不同网格范围内的标准差。0.15°, 0.25°, 0.5°, 1°, 1.5°, 2°, 2.5° 和 3° 网格对应的标准差分别为 11.18×10^{15} molec./cm², 10.58×10^{15} molec./cm², 8.30×10^{15} molec./cm², 8.32×10^{15} molec./cm², 5.60×10^{15} molec./cm², 7.69×10^{15} molec./cm², 4.28×10^{15} molec./cm², 4.37×10^{15} molec./cm² 和 4.34×10^{15} molec./cm², 如图 3 所示。EMI HCHO 在背景参考区域的 SCD 的不确定性与 SCIAMACHY (1×10^{16} molec./cm²) 相当, 大于 GOME2 (8×10^{15} molec./cm²) (De Smedt 等, 2012)。随着统计网格大小的增加, 当网格为 0.25° × 0.25° 时, EMI 的随机误差基本达到与 GOME2 和 OMI 相当的水平, 但是有更大的拟合残差, 这也说明了 EMI 的观测光谱中的噪声信号制约了 HCHO 反演的精度, 通过空间平均可以平滑随机噪声对单像元斜柱浓度拟合的影响。

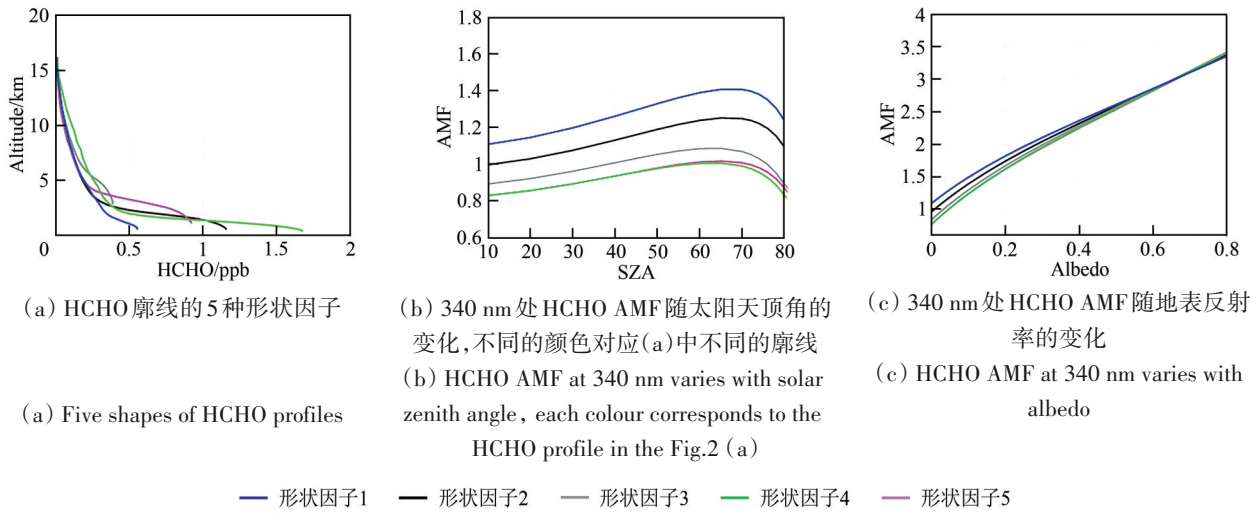


图2 EMI HCHO AMF

Fig. 2 HCHO AMF calculated by SCIATRAN

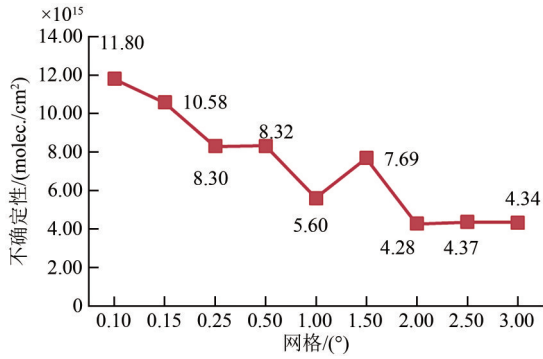


图3 远太平洋地区EMI HCHO SCD 标准差随网格大小的变化

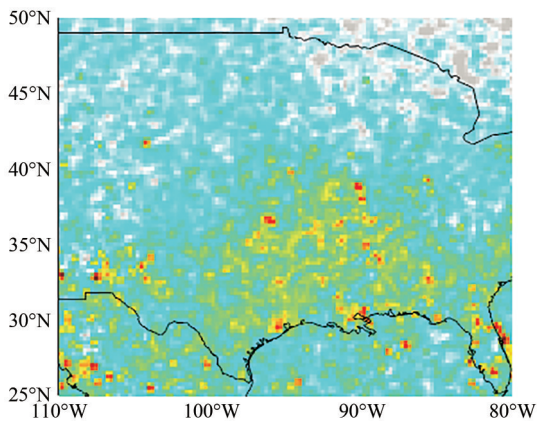
Fig. 3 The standard deviations of EMI HCHO SCD over pacific region with different grid size

尽管EMI载荷反演结果的随机噪声较大，影响了单日HCHO结果的精度。但是通过空间平均和时

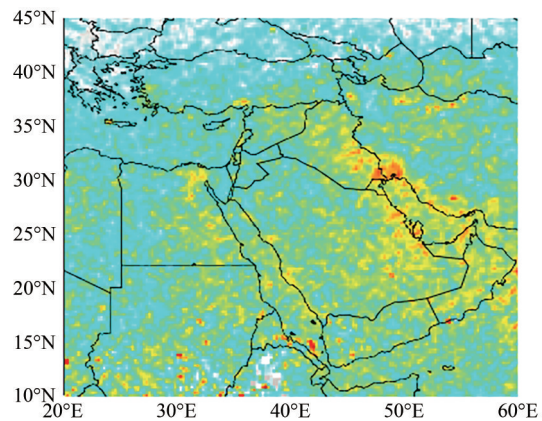
间平均可缓解该影响。图4展示了2018-08基于EMI HCHO产品的月均值结果，对应的空间分辨率为0.25°×0.25°。整体上，EMI能抓住HCHO在全球的热点分布，如美国东南部、中东地区、中国华北平原、日本等典型HCHO高值区。

4.2 中国东部地区EMI与OMI、TROPOMI HCHO验证

中国东部地区是全球典型的HCHO高值区域，基于EMI、OMI与TROPOMI的2018-08 HCHO的空间分布如图5所示。选择中国地区4个区域，利用OMI QA4ECV与TROPOMI HCHO产品集对EMI的HCHO结果进行交叉验证，4个区域对应的经纬度范围如表3所示。



(a) 美国
(a) America



(b) 中东
(b) Middle East

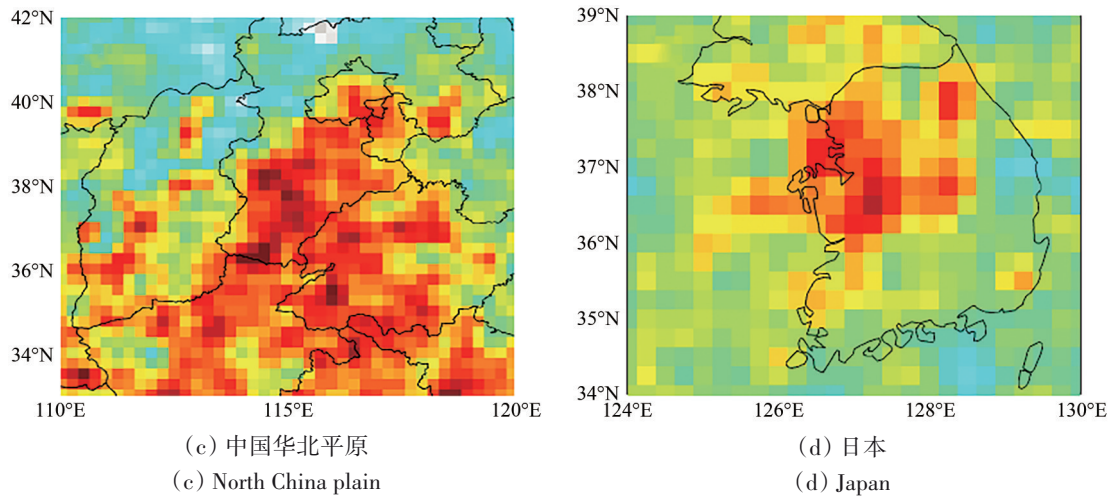


图4 EMI HCHO 月均值空间分布图
Fig.4 Monthly mean HCHO VCD of EMI

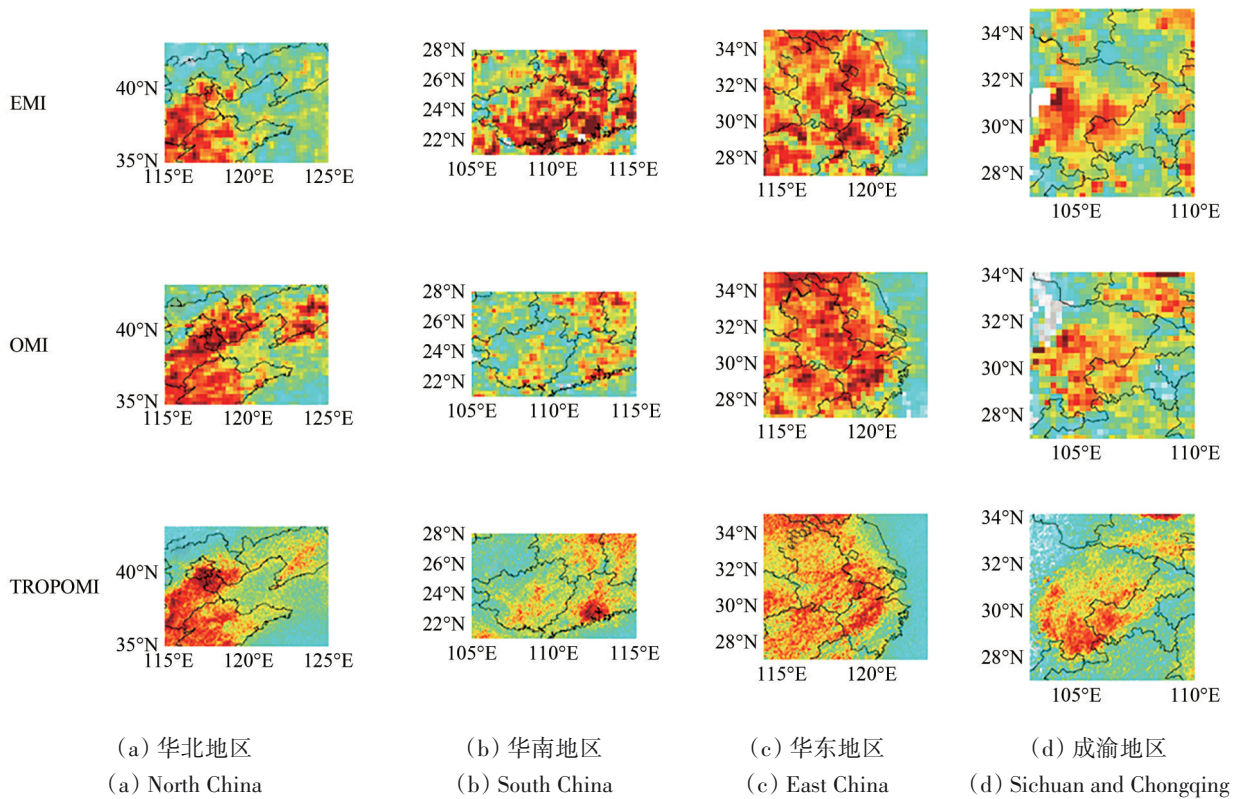


图5 2018-08 HCHO 月均值
Fig.5 Monthly mean HCHO in August, 2018

表3 所选择的用于交叉对比的区域范围

Table 3 Regions selected for intercomparison

序号	所选区域	纬度	经度	缩写
1	华北地区	35°N—40°N	114°E—121°E	NC
2	华南地区	21°N—26.4°N	105°E—116°E	SC
3	长江三角洲地区	27°N—35°N	114°E—121°E	YRD
4	成渝地区	27.8°N—32.9°N	103°E—110°E	CY

该对比基于0.25°×0.25°的月均值。其中，EMI结果由2018-08每日逐轨道的反演结果进行重采样并进行月平均得到，对逐轨道产品剔除HCHO垂直柱浓度大于 1×10^{17} molec./cm²，RMS大于 5×10^{-3} 以及HCHO垂直柱浓度大于5倍的逐行的标准差的像元。OMI和TROPOMI的结果是De Smedt提供的OMI QA4ECV和TROPOMI HCHO月均数据集(0.05°×0.05°)重采样到0.25°×0.25°得到。

对比结果表明(图6、图7)，整体上，EMI HCHO相对TROPOMI与OMI QA4ECV HCHO都是高估的，在整个中国东部地区较TROPOMI和OMI分别平均高估 1.59×10^{15} molec./cm²和 1.17×10^{15} molec./cm²。三者之间在4个区域的空间一致性较好，EMI与TROPOMI(OMI)在华南，长三角，华北和成渝地区的相关性分别为0.88(0.78)，0.91(0.86)，0.88(0.82)和0.92(0.87)。与TROPOMI的空间相关性优于OMI。相比之下，EMI在华南区域的结果与OMI和TROPOMI的差异较大。EMI HCHO在华南地区的高值成片状，未能体现出珠三角地区典型的人为源VOCs强干扰的作用，且该区域三者之间的均方根误差(RMSE)明显高于其他3个区域。需要进一步研究确定其原因。相应的，华北地区的相关性和RMSE最优。

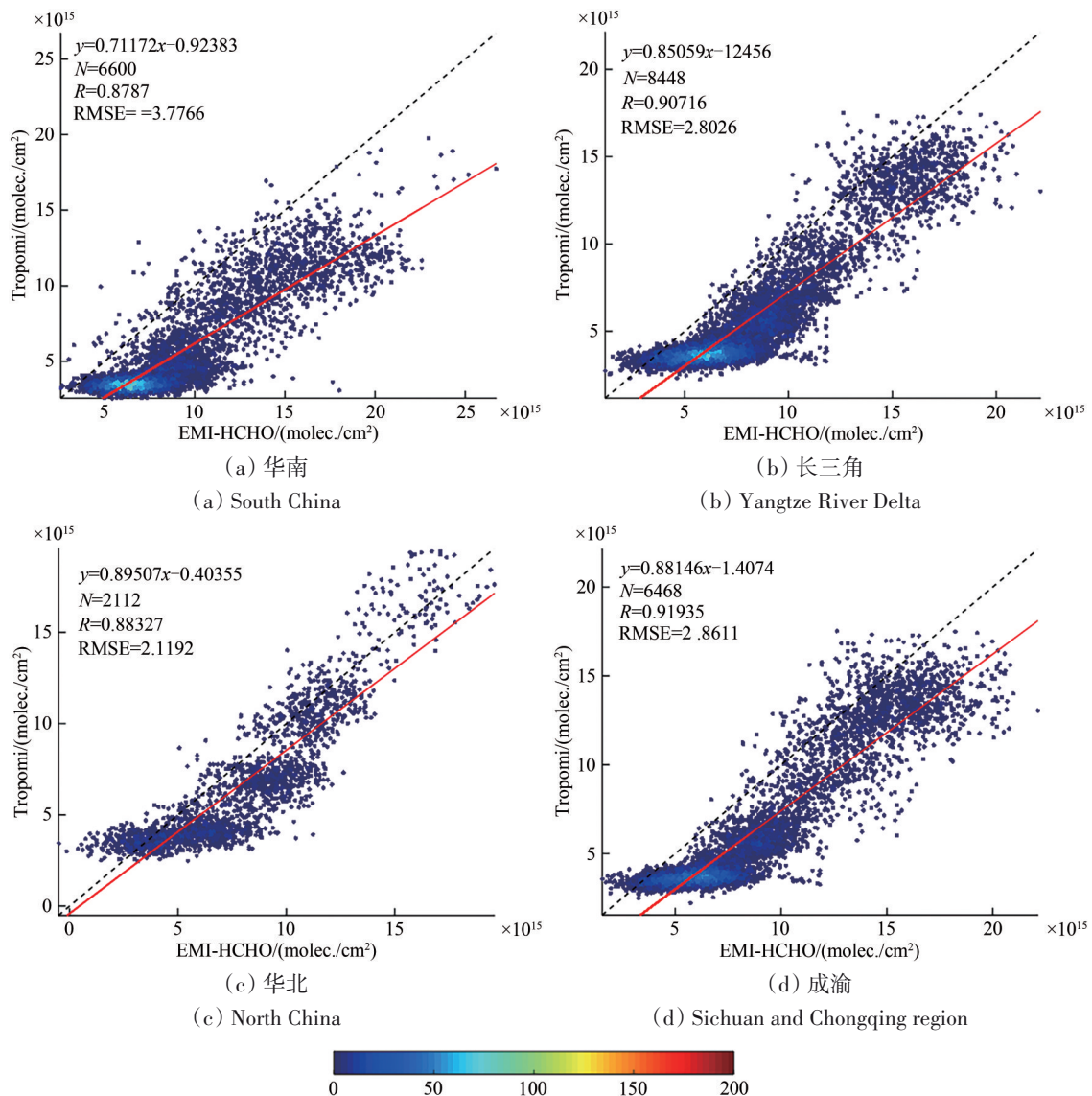


图6 EMI与TROPOMI HCHO交叉对比

Fig.6 The intercomparison of HCHO results from EMI and TROPOMI over selected regions

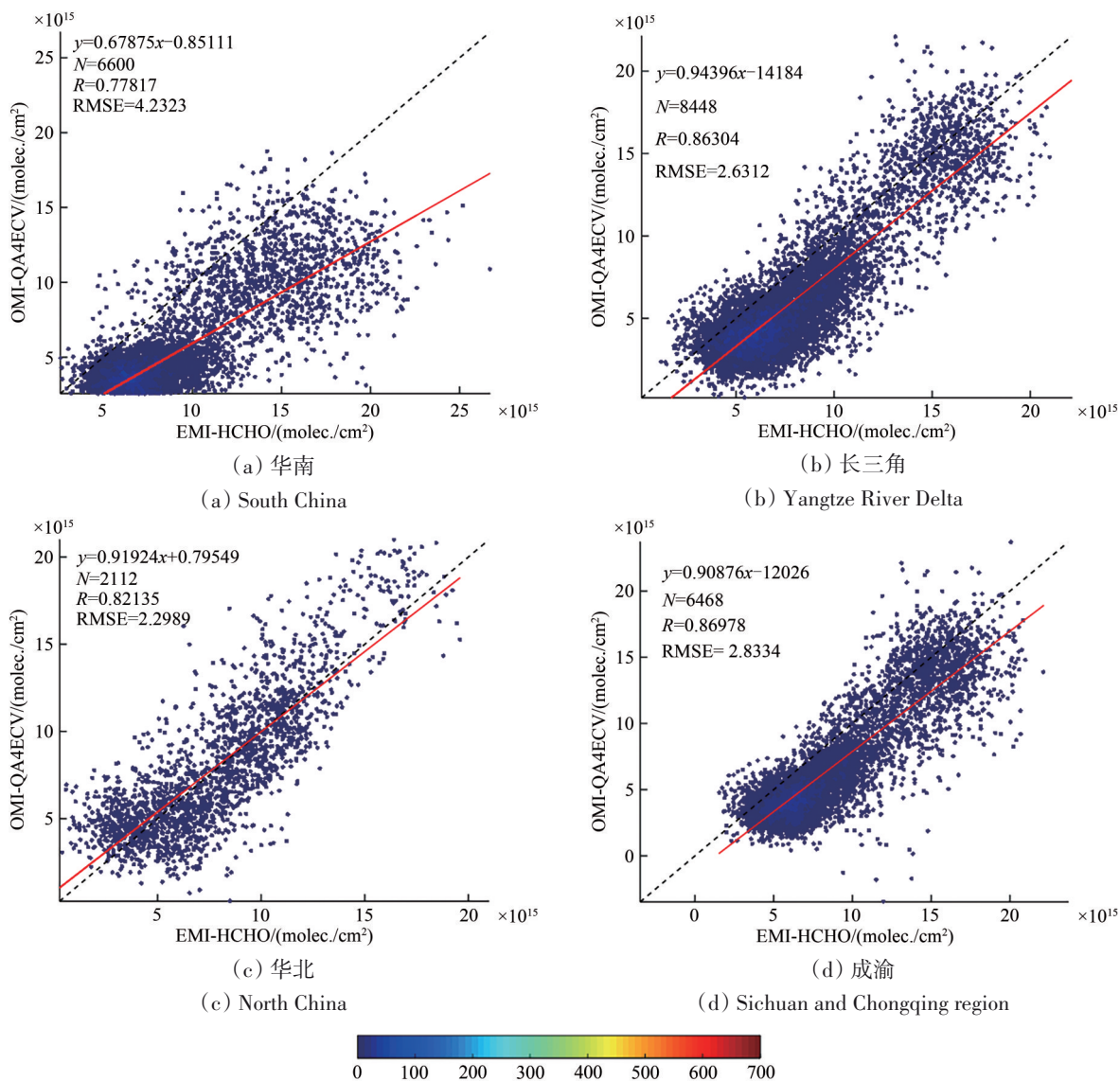


图7 EMI与OMI QA4ECV HCHO交叉对比

Fig. 7 The intercomparison of HCHO results from EMI and OMI QA4ECV over selected regions

交叉对比的结果如表4所示。通过交叉对比发现，尽管EMI的信噪比较低，对HCHO探测的不确定性大，但是本文基于EMI的HCHO反演算法的月均值结果有效降低了反演结果中的随机误差，

可以体现HCHO的空间分布特征，且与TROPOMI和OMI有较好的空间一致性（华南地区除外）。此外，不完善的云去除策略需要在接下来进一步改进。

表4 EMI、OMI、TROPOMI HCHO交叉对比结果

Table 4 The intercomparison of HCHO products from EMI, OMI and TROPOMI

区域	EMI & TROPOMI			EMI & OMI		
	<i>R</i>	<i>slope</i>	RMSE/(10 ¹⁵ molec./cm ²)	<i>R</i>	<i>slope</i>	RMSE/(10 ¹⁵ molec./cm ²)
SC	0.88	0.71	3.78	0.78	0.68	4.23
YRD	0.91	0.85	2.8	0.86	0.94	2.63
NC	0.88	0.9	2.12	0.82	0.92	2.3
CY	0.92	0.88	2.86	0.87	0.91	2.83

注:SC:华南地区,YRD:长江三角洲地区,NC:华北地区,CY:成渝地区。

5 结论

根据模拟光谱和EMI UV2波段的设计指标

(如信噪比,波长漂移等)评估分析了EMI载荷进行HCHO反演的可行性,并基于EMI实际观测数据进行了HCHO反演与交叉对比验证。结论如下:

(1) 噪声会使 HCHO 反演结果剧烈抖动并伴随着 RMS 的显著增加。目前 EMI UV2 波段的设计信噪比可能引入的 RMS 高于 OMI 和 TROPOMI 20% 和 100%。

(2) EMI UV2 波段实际波长校正误差在 0.04—0.16 nm 范围内。模拟结果表明波长定标精度 <0.01 nm 能保证由波长漂移引入的反演误差在 $\pm 20\%$ 变化范围内，因此，在利用 EMI 光谱进行反演之前对波长进行了精校正，校正后精度优于 10^{-3} nm，可用于 HCHO 反演。

(3) EMI HCHO 的拟合结果表明，其 SCD 的不确定为 1.2×10^{16} molec./cm²，高于 OMI 和 TROPOMI。这主要是受制于仪器的信噪比。通过月均处理，可以显著降低反演结果中的随机误差。

(4) 在月均值尺度上，EMI HCHO 的全球分布符合现阶段对 HCHO 空间分布的认知。与 OMI 和 TROPOMI 在华北，华南，长三角，珠三角的交叉对比结果表面，三者具有较好的空间一致性 ($R > 0.8$)。整体上，EMI 结果高于 OMI 和 TROPOMI 1.59×10^{15} molec./cm²、 1.17×10^{15} molec./cm²。这可能与本文中 EMI 数据采用了粗糙的云筛选策略，且没有进行云校正有关，具体原因需要进一步研究。

由于 HCHO 反演对噪声敏感且 EMI 传感器的信噪比又相对较低，虽然能在月均值的尺度上反映 HCHO 的空间分布信息，但是反演的 RMS 和 SCD 的不确定性都较高。整体上，EMI 载荷本身的信噪比和辐射校正精度直接制约了 HCHO 反演的可行性和精度。现阶段，仅能在夏季 HCHO 信号较强的情况下 EMI 载荷才具有反演 HCHO 的能力，且伴随着大的不确定性。此外，现阶段 EMI 载荷具有在探测辐照度上频率不足的问题，该问题可影响光谱质量评估。另一方面，EMI 自身云产品缺失，不管是利用外部载荷的云参数进行云校正，还是基于粗略阈值法进行云去除都会给气体产品带来难以量化的误差。在下一代载荷的参数指标设计上，提高仪器的信噪比、提高仪器辐射校正和几何校正精度、优化波段设置、配置星上定标系统等都有助于提高气体反演的能力。

志 谢 本论文所用 EMI Level 1 数据由生态环境部卫星环境应用中心周春艳博士提供，Level 1 数据的详细处理细节得到了中国科学院安徽光学精密机械研究所周海金老师的指导，在此表示衷心的感谢！

参考文献 (References)

- Anderson L G, Lanning J A, Barrell R, Miyagishima J, Jones R H and Wolfe P. 1996. Sources and sinks of formaldehyde and acetaldehyde: an analysis of Denver's ambient concentration data. *Atmospheric Environment*, 30(12): 2113-2123 [DOI: 10.1016/1352-2310(95)00175-1]
- Burrows J P, Weber M, Buchwitz M, Rozanov V, Ladstätter-Weißmayer A, Richter A, DeBeek R, Hoogen R, Bramstedt K, Eichmann K U, Eisinger M and Perner D. 1999. The global ozone monitoring experiment (GOME): mission concept and first scientific results. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56(2): 151-175 [DOI: 10.1175/1520-0469(1999)056<0151:tgomeg>2.0.co;2]
- Chance K and Orphal J. 2011. Revised ultraviolet absorption cross sections of H₂CO for the HITRAN database. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 112 (9): 1509-10 [DOI: 10.1016/j.jqsrt.2011.02.002]
- Cheng L X, Tao J H, Valks P, Yu C, Liu S, Wang Y P, Xiong X Z, Wang Z F and Chen L F. 2019. NO₂ Retrieval from the Environmental Trace Gases Monitoring Instrument (EMI): preliminary results and intercomparison with OMI and TROPOMI. *Remote Sensing*, 11(24): 3017 [DOI: 10.3390/rs11243017]
- Cheng N L, Chen Z Y, Sun F, Sun R W, Dong X, Xie X M and Xu C X. 2018. Ground ozone concentrations over Beijing from 2004 to 2015: variation patterns, indicative precursors and effects of emission-reduction. *Environmental Pollution*, 237: 262-274 [DOI: 10.1016/j.envpol.2018.02.051]
- De Smedt I, Müller J F, Stavrou T, Van Der A R, Eskes H and Van Roozendael M. 2008. Twelve years of global observations of formaldehyde in the troposphere using GOME and SCIAMACHY sensors. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(16): 4947-4963 [DOI: 10.5194/acp-8-4947-2008]
- De Smedt I, Stavrou T, Hendrick F, Danckaert T, Vlemmix T, Pinaridi G, Theys N, Lerot C, Gielen C, Vigouroux C, Hermans C, Fayt C, Veeckind P, Müller J F and Van Roozendael M. 2015. Diurnal, seasonal and long-term variations of global formaldehyde columns inferred from combined OMI and GOME-2 observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(8): 12241-300 [DOI: 10.5194/ACP-15-12519-2015]
- De Smedt I, Van Roozendael M, Stavrou T, Müller J F, Lerot C, Theys N, Valks P, Hao N and Van Der A R. 2012. Improved retrieval of global tropospheric formaldehyde columns from GOME-2/MetOp-A addressing noise reduction and instrumental degradation issues. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(11): 2933-2949 [DOI: 10.5194/amt-5-2933-2012]
- De Smedt I, Theys N, Yu H, Danckaert T, Lerot C, Compernelle S, Van Roozendael M, Richter A, Hilboll A, Peters E, Pedergnana

- M, Loyola D, Beirle S, Wagner T, Eskes H, van Geffen J and Boersma K F. 2018. Algorithm theoretical baseline for formaldehyde retrievals from SSP TROPOMI and from the QA4ECV project. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(4): 2395-2426 [DOI: 10.5194/amt-11-2395-2018]
- Duncan B N, Yoshida Y, Olson J R, Sillman S, Martin R V, Lamsal L, Hu Y T, Pickering K E, Retscher C, Allen D J and Crawford J H. 2010. Application of OMI observations to a space-based indicator of NO_x and VOC controls on surface ozone formation. *Atmospheric Environment*, 44(18): 2213-2223 [DOI: 10.1016/j.atmosenv.2010.03.010]
- González Abad G, Liu X, Chance K, Wang H, Kurosu T P and Sulaiman R. 2015. Updated Smithsonian Astrophysical Observatory Ozone Monitoring Instrument (SAO OMI) formaldehyde retrieval. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8(1): 19-32 [DOI: 10.5194/amt-8-19-2015]
- González Abad G, Vasilkov A, Seftor C, Liu X and Chance K. 2016. Smithsonian Astrophysical Observatory Ozone Mapping and Profiler Suite (SAO OMPS) formaldehyde retrieval. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(7): 2797-2812 [DOI: 10.5194/amt-9-2797-2016]
- Han X, Zhu L Y, Wang S L, Meng X Y, Zhang M G and Hu J. 2018. Modeling study of impacts on surface ozone of regional transport and emissions reductions over North China Plain in summer 2015. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(16): 12207-12221 [DOI: 10.5194/acp-18-12207-2018]
- Kanakidou M, Seinfeld J H, Pandis S N, Barnes I, Dentener F J, Facchini M C, Van Dingenen R, Ervens B, Nenes A, Nielsen C J, Swietlicki E, Putaud J P, Balkanski Y, Fuzzi S, Horth J, Moortgat G K, Winterhalter R, Myhre C E L, Tsigaridis K, Vignati E, Stephanou E G and Wilson J. 2005. Organic aerosol and global climate modelling: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(4): 1053-1123 [DOI: 10.5194/acp-5-1053-2005]
- Li C, Joiner J, Krotkov N A and Dunlap L. 2015. A new method for global retrievals of HCHO total columns from the Suomi National Polar-orbiting Partnership Ozone Mapping and Profiler Suite. *Geophysical Research Letters*, 42(7): 2515-2522 [DOI: 10.1002/2015GL063204]
- Liao J, Hanisco T F, Wolfe G M, St Clair J, Jimenez J L, Campuzano-Jost P, Nault B A, Fried A, Marais E A, Abad G G, Chance K, Jethva H T, Ryerson T B, Warneke C and Wisthaler A. 2019. Towards a satellite formaldehyde - in situ hybrid estimate for organic aerosol abundance. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(5): 2765-2785 [DOI: 10.5194/acp-19-2765-2019]
- Malicet J, Daumont D, Charbonnier J, Parisse C, Chakir A and Brion J. 1995. Ozone UV spectroscopy. II. Absorption cross-sections and temperature dependence. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 21(3): 263-73 [DOI: 10.1007/BF00696758]
- Marchenko S, Krotkov N A, Lamsal L N, Celarier E A, Swartz W H and Bucsele E J. 2015. Revising the slant column density retrieval of nitrogen dioxide observed by the Ozone Monitoring Instrument. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 120(11): 5670-5692 [DOI: 10.1002/2014jd022913]
- Parrish D D, Ryerson T B, Mellqvist J, Johansson J, Fried A, Richter D, Walega J G, Washenfelder R A, De Gouw J A, Peischl J, Aikin K C, McKeen S A, Frost G J, Fehsenfeld F C and Herndon S C. 2012. Primary and secondary sources of formaldehyde in urban atmospheres: Houston Texas region. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(7): 3273-3288 [DOI: 10.5194/acp-12-3273-2012]
- Rozanov V V, Dinter T, Rozanov A V, Wolanin A, Bracher A and Burrows J P. 2017. Radiative transfer modeling through terrestrial atmosphere and ocean accounting for inelastic processes: software package SCIATRAN. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 194: 65-85 [DOI: 10.1016/j.jqsrt.2017.03.009]
- Rozanov V V, Rozanov A V, Kokhanovsky A A and Burrows J P. 2014. Radiative transfer through terrestrial atmosphere and ocean: software package SCIATRAN. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 133: 13-71 [DOI: 10.1016/j.jqsrt.2013.07.004]
- Thalman R and Rainer V. 2013. Temperature dependent absorption cross-sections of O₂-O₂ collision pairs between 340 and 630 nm and at atmospherically relevant pressure. *Physical chemistry chemical physics* 15(37):15371-81 [DOI: 10.1039/c3cp50968k]
- Thomas W, Hegels E, Slijkhuys S, Spurr R and Chance K. 1998. Detection of biomass burning combustion products in Southeast Asia from backscatter data taken by the GOME Spectrometer. *Geophysical Research Letters*, 25(9): 1317-1320 [DOI: 10.1029/98gl01087]
- Van Chance K, Burrows J P and Schneider W. 1991. Retrieval and molecule sensitivity studies for the global ozone monitoring experiment and the scanning imaging absorption spectrometer for atmospheric cartography//Proceedings of SPIE 1491, Remote Sensing of Atmospheric Chemistry. Orlando, FL: SPIE [DOI: 10.1117/12.46657]
- Wang Y P, Wang Z F, Yu C, Zhu S Y, Cheng L X, Zhang Y and Chen L F. 2019. Validation of OMI HCHO products using MAX-DOAS observations from 2010 to 2016 in Xianghe, Beijing: investigation of the effects of aerosols on satellite products. *Remote Sensing*, 11(2): 203 [DOI: 10.3390/rs11020203]
- Vandaele A C, Hermans C, Simon P C, Carleer M, Colin R, Fally S, Merienne M F, Jenouvrier A and Coquart B. 1998. Measurements of the NO₂ absorption cross-section from 42 000 cm⁻¹ to 10 000 cm⁻¹ (238-1000 nm) at 220 K and 294 K. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* 59(3-5):171-84 [DOI: 10.1016/s0022-4073(97)00168-4]
- Wang Y P. 2020. Formaldehyde and Glyoxal Retrieval Algorithm Research Based on Satellite Remote Sensing and Typical Application in China. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences (王

- 雅鹏. 2020. 中国地区甲醛和乙二醛卫星遥感反演算法研究及典型应用. 北京: 中国科学院大学)
- Williams, Jason E, Folkert Boersma K, Phillippe Le Sager and Willem W Verstraeten. 2017. The high-resolution version of TM5-MP for optimized satellite retrievals: description and validation. *Geoscientific Model Development* 10 (2):721-50 [DOI: 10.5194/gmd-10-721-2017]
- Wilmouth, David M, Thomas F Hanisco, Neil M Donahue and James G Anderson. 1999. Fourier Transform Ultraviolet Spectroscopy of the A 2Π_{3/2} ← X 2Π_{3/2} Transition of BrO. *The Journal of Physical Chemistry A* 103 (45):8935-45 [DOI: 10.1021/jp991651o]
- Xian L, Ju T Z, Chen X P, Wen F, Zhang J Y, Wang P Y, Liu H Q and Pei J. 2019. Temporal and spatial distribution characteristics and influencing factors of formaldehyde in China in recent three years. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 39(6): 1886-1894 (咸龙, 巨天珍, 陈雪萍, 温飞, 张江峪, 王培玉, 刘宏庆, 裴洁. 2019. 近三年中国甲醛时空分布特征及影响因素分析. *环境科学学报*, 39(6): 1886-1894 [DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2019.0022])
- Zara M, Boersma K F, De Smedt I, Richter A, Peters E, van Geffen J H G M, Beirle S, Wagner T, Van Roozendael M, Marchenko S, Lamsal L N and Eskes H J. 2018. Improved slant column density retrieval of nitrogen dioxide and formaldehyde for OMI and GOME-2A from QA4ECV: intercomparison, uncertainty characterisation, and trends. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(7): 4033-4058 [DOI: 10.5194/amt-11-4033-2018]
- Zhang C X, Liu C, Wang Y, Si F Q, Zhou H J, Zhao M J, Su W J, Zhang W Q, Chan K L, Liu X, Xie P H, Liu J G and Wagner T. 2018. Preflight evaluation of the performance of the Chinese Environmental Trace Gas Monitoring Instrument (EMI) by spectral analyses of nitrogen dioxide. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 56(6): 3323-3332 [DOI: 10.1109/tgrs.2018.2798038]
- Zhao M J, Si F Q, Zhou H J, Wang S M, Jiang Y and Liu W Q. 2018. Preflight calibration of the Chinese Environmental Trace Gases Monitoring Instrument (EMI). *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(9): 5403-5419 [DOI: 10.5194/amt-11-5403-2018]
- Zhu S Y, Li X Y, Cheng T H, Yu C, Wang X H, Miao J and Hou C. 2019. Comparative analysis of long-term (2005—2016) spatio-temporal variations in high-level tropospheric formaldehyde (HCHO) in Guangdong and Jiangsu Provinces in China. *Journal of Remote Sensing*, 23(1): 137-154 (朱松岩, 李小英, 程天海, 余超, 王新辉, 苗晶, 侯灿. 2019. 广东省和江苏省大气甲醛时空变化对比分析. *遥感学报*, 23(1): 137-154 [DOI: 10.11834/jrs.20197528])
- Zhu S Y, Yu C, Li X Y, Chen L F and Zhu H. 2018. An overview of satellite-based formaldehyde retrieval and present status. *China Environmental Science*, 38(5): 1685-1694 (朱松岩, 余超, 李小英, 陈良富, 祝好. 2018. 紫外大气甲醛卫星遥感反演方法和研究现状. *中国环境科学*, 38(5): 1685-1694 [DOI: 10.19674/j.cnki.issn1000-6923.2018.0198])

Feasibility analysis and preliminary results of formaldehyde retrieval based on Environmental trace gases Monitoring Instrument onboard GF-5 satellite

WANG Yapeng^{1,2,3}, TAO Jinhua¹, CHENG Liangxiao^{1,2}, YU Chao¹, FAN Meng¹, ZHANG Ying¹, CHEN Yuanlin^{1,2}, ZHU Lili¹, GU Jianbin¹, CHEN Liangfu^{1,2}

1. State Key Laboratory of Remote Sensing Science, Institute of Aerospace Information, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. National Satellite Meteorological Center, China Meteorological Administration, Beijing 100081, China

Abstract: Onboard the Chinese GF-5 satellite, Environmental trace gas Monitoring Instrument (EMI) is a nadir-viewing wide-field spectrometer that measures solar back-scattered earthshine radiances in the ultraviolet and visible spectra range. It was launched on 9 May 2018, and aims to quantify the global distribution of tropospheric and stratospheric trace gases. Meanwhile, formaldehyde (HCHO) is an intermediate oxidation reaction of various Volatile Organic Compounds (VOC) in the atmosphere, which is important for the formation of tropospheric ozone and secondary organic aerosols. Previous studies have proven that HCHO can be used as a tracer for VOCs in the absence of other VOC observations. Therefore, the monitoring of HCHO is essential for air quality. The spectral range of EMI covers HCHO absorption signature at 320—360 nm, with the potential for HCHO detection.

We have evaluated the requirements and feasibility for HCHO retrieval based on simulation. We find that the irradiance of EMI is effectively calibrated with smaller wavelength shift. However, compared with OMI and TROPOMI, the FWHM and wavelength shifts of EMI are highly dependent on the cross-track positions. On the basis of the EMI Level 1 spectral quality evaluation, the Differential Optical

Absorption Spectrometry (DOAS) method is used for HCHO retrieval. HCHO Slant Column Densities (SCDs) are initially obtained by spectral fitting, and then the SCDs are converted to Vertical Column Densities (VCDs) using Air - Mass Factors (AMFs) at 340 nm. We perform a wavelength adjustment procedure by using the solar Fraunhofer lines from a highly accurate reference solar atlas prior to the spectral fitting procedure to account for the influence of pixel-dependent wavelength shifts on HCHO SCDs. In the EMI HCHO spectral fitting procedure, the fitting interval is set to 328.5—346 nm with a fifth-order polynomial. The absorption cross-section of HCHO and the interfering species O₃, NO₂, BrO, O₄, and the ring cross section calculated by the QDOAS Ring tool are included in the fitting process. All absorption cross-sections are convoluted with the EMI FWHM, according to the corresponding cross-track position.

Simulation results demonstrate that HCHO retrieval is prone to noise, and the nominal SNR of EMI UV2 band is lower, leading to larger random error in the HCHO SCD retrieval as well as the fit residual. The SCD uncertainty of EMI HCHO is 1.2×10^{16} molec./cm². The preliminary results of formaldehyde retrieval derived from EMI show that EMI can capture the spatial distribution of HCHO. The comparison of EMI and TROPOMI and EMI and OMI shows consistency in spatial, with the correlation coefficient larger than 0.8. However, EMI HCHO is generally higher than OMI and TROPOMI over east China, probably resulting from the imperfect wavelength calibration and the contamination of the remaining cloud after cloud screening. The results demonstrated the potential of EMI for HCHO retrieval in summer.

Key words: remote sensing, GF-5, EMI, HCHO, DOAS, air quality

Supported by National Key Research and Development Program of China (No. 2017YFB0503901, 2018YFC0213901, 2018YFC0213904); Strategic Priority Research Program of the Chinese Academy of Sciences (No. XDA19010403, XDA19040201); National Research Program for Key Issues in Air Pollution Control (No. DQGG0201)