

基于 EMI- II 的火山区域二氧化硫反演研究

钱园园^{1,2}, 罗宇涵¹, 周海金¹, 常振¹, 杨太平¹, 奚亮^{1,2}, 汤付颖^{1,2}, 司福祺^{1*}¹中国科学院合肥物质科学研究院安徽光学精密机械研究所环境光学与技术重点实验室, 安徽 合肥 230031;²中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026

摘要 利用差分吸收光谱技术(DOAS)反演了我国第二代星载大气痕量气体差分吸收光谱仪(EMI- II)的SO₂斜柱浓度(SCD),并通过辐射传输模型SCIATRAN建立了SO₂大气质量因子(AMF)的查找表,经去条带处理后获得SO₂的垂直柱浓度(VCD)。以2021年10月底拉帕尔马岛火山区域为研究对象,基于EMI- II数据反演的SO₂VCD与国外同类型载荷TROPOMI的结果一致,相关性系数 R 分别为0.89、0.90、0.92。此外,还将汤加海底火山的SO₂反演结果与TROPOMI的监测数据进行对比,结果表明,EMI- II观测结果与TROPOMI一致,都观测到此次SO₂羽流的自东向西的传输过程。结合风场数据,计算了2022年1月14—15日汤加海底火山爆发产生的SO₂排放通量,结果表明,利用EMI- II载荷反演的火山区域SO₂VCD可靠性高,可实现全球火山爆发预警。

关键词 大气光学; 差分吸收光谱; EMI- II; SO₂垂直柱浓度; 汤加海底火山

中图分类号 O433

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS221398

1 引言

二氧化硫(SO₂)的排放主要来自人为排放与自然排放,人为排放包括化石燃料的燃烧与炼钢厂的工业排放,而主要的自然排放来自火山爆发、物质燃烧等^[1]。SO₂不仅对人类的健康造成影响(例如酸雨、呼吸道疾病等),还与气候、环境等密切相关,SO₂氧化时还会导致气溶胶的生成、雾霾的加重、光化学烟雾的产生^[2]。SO₂在大气中的寿命在几天至几周不等:在对流层,它的寿命一般只有几天;在低平流层,它的寿命可达几周以上^[3]。SO₂浓度不仅是空气质量的一个重要指标,它还与火山爆发密切相关,SO₂的柱浓度可为空气质量监测提供数据保障,可为SO₂污染的溯源等工作提供数据基础,还可为火山喷发活动提供预警信号。

差分光学吸收光谱技术(DOAS)自20世纪70年代由Platt等^[4]提出以来,已被广泛应用在地基遥感^[5]、机载遥感、车载遥感^[6]、船载遥感及星载遥感领域,可实现对臭氧(O₃)、二氧化氮(NO₂)、SO₂、甲醛(HCHO)、氧化溴(BrO)等痕量气体的测量^[7]。与其他观测方式相比,星载观测具有观测范围广、可实现每日的全球覆盖等优势,已成为火山区域SO₂监测的一种重要手段,利用星载平台测量火山区域SO₂的浓度可为研究火山喷发提供数据基础。国外在卫星载荷监测SO₂方面的研究起步较早,TOMS(total

ozone mapping spectrometer)^[8]、GOME(global ozone monitoring experiment)^[9]、SCIAMACHY(scanning imaging absorption spectrometer for atmospheric cartography)^[10]、OMI(ozone monitoring instrument)^[2]、TROPOMI(tropospheric monitoring instrument)^[11]等仪器已实现SO₂的全球监测。

基于DOAS算法反演SO₂的垂直柱浓度(VCD)已被国外同类型载荷如GOME、OMI、TROPOMI等验证^[8-11]。我国于2018年5月9日发射了高分5号(GF-5)卫星,其搭载了我国首颗星载痕量气体差分吸收光谱仪(EMI),基于EMI的测量数据可实现火山区域SO₂VCD的反演^[12],但其火山区域监测SO₂VCD的能力还需进行长期验证。EMI- II作为第二代载荷,于2021年9月7日搭载于高光谱观测卫星发射升空,其SO₂的反演能力还未被验证。本文首次基于DOAS算法反演了EMI- II载荷的SO₂VCD,并以拉帕尔马岛火山、汤加海底火山为例,通过与TROPOMI的SO₂VCD结果对比来验证EMI- II的火山区域SO₂反演能力,并结合风场数据计算出2022年1月14—15日汤加火山喷发的SO₂排放通量。

2 方法与原理

2.1 EMI- II 与 TROPOMI 载荷简介

EMI- II 包含 4 个光谱通道,分别为紫外 1 通道

收稿日期: 2022-06-30; 修回日期: 2022-08-01; 录用日期: 2022-08-12; 网络首发日期: 2022-08-20

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金(61905256)

通信作者: *sifuqi@aiofm.ac.cn

(234~311 nm)、紫外 2 通道(306~401 nm)、可见 1 通道(400~552 nm)与可见 2 通道(544~714 nm)。本文反演 SO₂ 的数据来自 EMI- II 的紫外 2 通道,数据维为 1473 × 211 × 1072 pixel(时间维 × 空间维 × 光谱维),

该通道的光谱分辨率为 0.3~0.6 nm,天底空间分辨率为 13 km × 24 km。EMI- II 的视场角为 114°,在轨高度为 705 km,过境时间为当地时间上午 10:30,其扫描模式如图 1 所示。

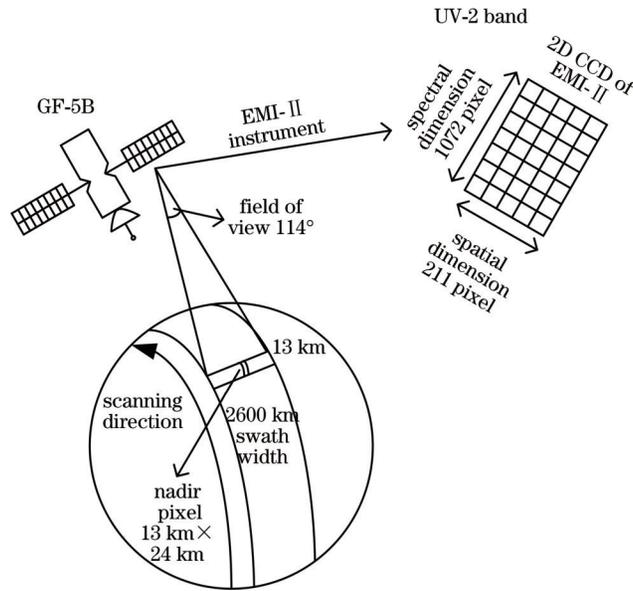


图 1 EMI- II 的天底扫描模式示意图

Fig. 1 Diagram showing the nadir scanning mode of EMI- II

TROPOMI 载荷搭载于“哨兵五号”(SP-5)卫星上,于 2017 年 10 月 13 日发射升空,其过境时间为当地时间 13:30,空间分辨率可达到 3.5 km × 5.5 km。TROPOMI 有 8 个光谱波段,其紫外波段的光谱分辨率为 0.5 nm。TROPOMI 每日有 14 或 15 条轨道的数据,可实现每日的全球覆盖,目前已实现对 O₃、NO₂、SO₂、HCHO、一氧化碳(CO)、甲烷(CH₄)、云等的测量。本实验所用的云产品来自 TROPOMI 的 OFFL 产品^[13],并使用 TROPOMI 的官方 SO₂ 产品^[11]来验证 EMI- II 反演的 SO₂ 结果。

2.2 DOAS 测量原理

DOAS 技术^[4]通过痕量气体的特征吸收与所测光强对气体浓度进行反演。基于朗伯-比尔定律,可推导出 DOAS 的基本等式为

$$\ln \frac{I^*(\lambda)}{I_0(\lambda)} = \sum_j [\sigma_j^*(\lambda) \cdot c_j \cdot L] = \sum_j [\sigma_j^*(\lambda) \cdot S_{CD,j}], \quad (1)$$

式中: $I_0(\lambda)$ 表示在波长为 λ 处辐射体的原始发光强度; $I^*(\lambda)$ 表示通过光程 L 后探测器接收到的测量光强; $\sigma_j^*(\lambda)$ 表示窄带吸收截面; c_j 表示痕量气体 j 的平均浓度; $S_{CD,j} = \int c_j \cdot L \cdot dl$, 表示痕量气体 j 的斜柱浓度(SCD)。 $D = \ln \frac{I^*(\lambda)}{I_0(\lambda)}$ 为差分光学厚度,由式(1)通过最小二乘法拟合即可得到目标气体的 SCD。

2.3 光谱反演

通过 QDOAS 软件^[14]反演得到 SO₂ 的 SCD,反演

波长选择 312~326 nm,参考谱为 EMI- II 载荷所测的太阳谱。气体的吸收截面包括 SO₂、O₃、NO₂、BrO、HCHO,并利用 QDOAS 的 ring.exe 扣除了 ring 效应,具体的参数配置见表 1。以 2022 年 1 月 15 日某轨(轨道号:001901)的第 34 维数据为例,SO₂ SCD 的反演结果如图 2 所示。

表 1 SO₂ 反演的 DOAS 拟合参数配置

Table 1 Parameter settings of DOAS fitting for retrieving the SO₂

Retrieval parameter	Retrieval condition
Polynomial	Order 5
SO ₂ absorption cross section	298 K ^[15]
O ₃ absorption cross section	223 K, 243 K ^[16]
NO ₂ absorption cross section	220 K, 298 K ^[17]
BrO absorption cross section	223 K ^[18]
HCHO absorption cross section	298 K ^[19]
Ring absorption cross section	Calculated using QDOAS

2.4 AMF 反演

为了将 SCD 变为与观测方式无关的 VCD,需借助大气质量因子(AMF),AMF 定义为 SCD 与 VCD 的比值。首先利用辐射传输模型 SCIATRAN 建立 AMF 的查找表,查找表的输入参数包括太阳天顶角(SZA)、相对方位角(RAA)、观测方位角(VZA)、地表反照率、云压等,具体参数节点如表 2 所示。然后,利用多维线性空间插值方法得到 EMI- II 观测参数对应的 AMF,即可计算出 SO₂ 的 VCD。

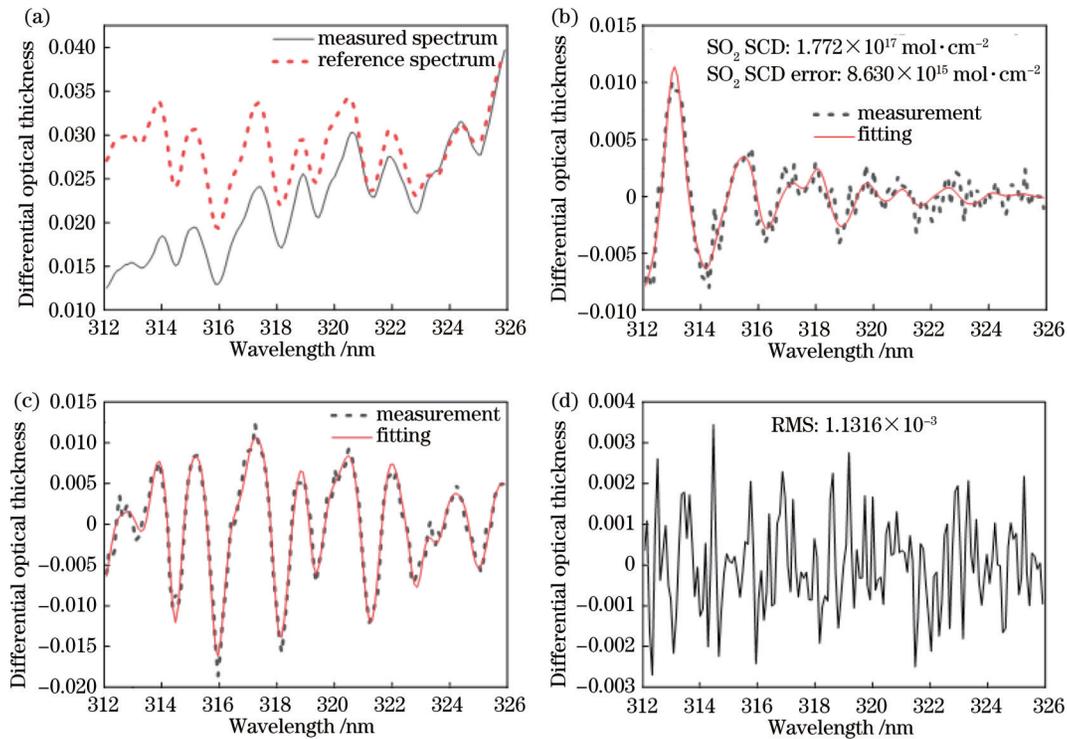


图 2 2022 年 1 月 15 日 EMI- II 某轨道的光谱拟合结果。(a) 测量的光谱与参考光谱; (b) SO₂ 差分光学厚度; (c) ring 差分光学厚度; (d) 拟合残差

Fig. 2 Spectral fitting results for some orbit on January 15, 2022 from EMI- II . (a) Measured and reference spectra; (b) SO₂ differential optical thickness; (c) ring differential optical thickness; (d) remaining residual of DOAS fitting

表 2 建立 SO₂ AMF 查找表的参数节点

Table 2 Parameter nodes for building the SO₂ AMF look-up table

Parameter	Value
SZA / (°)	0, 10, 20, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 72, 74, 76, 78, 80
RAA / (°)	0, 45, 90, 135, 180
VZA / (°)	0, 5, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70
Albedo	0, 0.05, 0.1, 0.20, 0.30, 0.40, 0.60, 0.80, 1.0
Cloud pressure / hPa	1013, 795, 701, 616, 472, 356, 264, 164, 96

所使用的地表反照率数据来自基于 OMI 观测的月气候数据集^[20], 分辨率为 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ 。由于 EMI- II 的云信息反演算法还处于优化阶段, 所使用的云信息(云压、云分数)来自 TROPOMI 的官方产品。本研究采用独立像元近似法(IPA)计算有云像元的 AMF, 将有云像元分为全云部分($A_{MF, cloud}$)与无云部分($A_{MF, clear}$), 故云修正后的 AMF 为

$$A_{MF} = w \cdot A_{MF, cloud} + (1 - w) \cdot A_{MF, clear}, \quad (2)$$

式中: w 表示来自 TROPOMI 云产品的云分数。

2.5 条带效应的去除

由于一级辐照度校准存在不可避免的误差, 星载仪器反演的结果均存在条带效应^[21-23], 在验证 EMI- II 的 SO₂ VCD 结果之前, 需要对条带效应进行处理。采用基于傅里叶变换滤波的方式去除条带效应, 具体步骤如下:

1) 在无 SO₂ 污染区域(本文选为太平洋海域)内选择出 SO₂ VCD 变化最小(即方差最小)的窗口 [70(穿轨方向) × 50(沿轨方向)], 当前紫外 2 通道为空间维的每 3 行合并成 1 行, 故空间维为 70 行的状态;

2) 计算沿穿轨方向的平均 SO₂ VCD, 会得到 70 个平均值;

3) 对这 70 个平均值进行傅里叶变换(低通滤波, 截止频率为 0), 得到低频部分与高频部分(噪声, 或者条带信息);

4) 将计算的 SO₂ VCD 减去步骤 3) 中得到的高频部分即可获得去条带后的 SO₂ VCD。

以 2021 年 11 月 5 号的一轨(轨道号为 000865)为例, 条带去除前后的结果如图 3 所示, 其中 1 DU = $2.69 \times 10^{16} \text{ mol/cm}^2$ 。

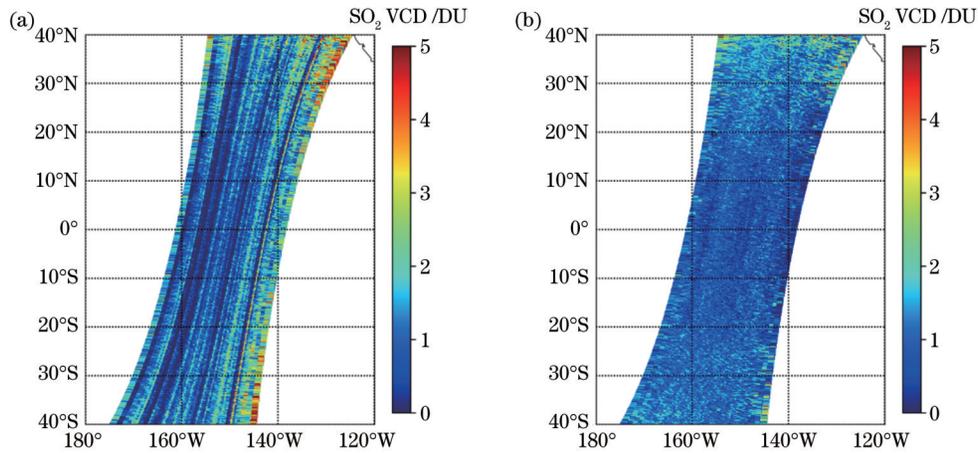


图3 某轨道的条带效应去除效果。(a)条带去除前;(b)条带去除后

Fig. 3 Diagram of deducing the stripe effect of some orbit. (a) Before deducing the stripe effect; (b) after deducing the stripe effect

2.6 火山区域 SO₂ 排放通量计算

火山爆发时产生的 SO₂ 羽流的排放通量^[24]的计算公式为

$$F = \int_S c \cdot v \cdot n \cdot dS, \quad (3)$$

式中: F 表示排放通量; c 表示 SO₂ 基团的质量浓度 (g/m³); v 表示风速; n 表示垂直于表面 S 的单位矢量。

假设观测期间的风场较为稳定, SO₂ 羽流在风场作用下发生移动后的排放通量可表示为

$$F = \sum_i (V_{cd,i} \cdot l_i) \cdot v \cdot \cos \theta, \quad (4)$$

式中: l_i 表示第 i 个像素的水平长度; θ 表示风场方向与纵向的夹角。对于与火山喷发点距离为 d 的 SO₂ 烟羽, 式(4)可改写为

$$F = \sum_i (V_{cd,i} \cdot l_i) \cdot v \cdot \cos \theta \cdot \exp\left(\frac{d/v}{\tau}\right), \quad (5)$$

式中: τ 表示 SO₂ 烟羽的寿命。

3 结果与分析

3.1 拉帕尔马岛火山喷发监测

当地时间 2021 年 9 月 19 日 15 时, 位于西班牙的拉帕尔马岛火山 (28°30'N, 17°30'W) 开始喷发, 大量的火山灰四处飘散, 且本次火山喷发持续时间较长, 适合作为研究分析的对象。本研究反演了 2021 年 10 月 27 日、29 日与 31 日该区域的 SO₂ VCD, 并与 TROPOMI 的 SO₂ VCD 数据进行对比 (重采样的网格分辨率为 0.25° × 0.5°), 结果如图 4 所示。由图 4 可知, 利用 EMI-II 数据反演的 SO₂ VCD 的空间分布与 TROPOMI 结果基本一致, 且都观测到 SO₂ 羽流向西南方向传输的过程, 但由于 EMI-II 是上午星 (过境时间为当地时间 10:30), 而 TROPOMI 为下午星 (过境时间为当地时间 13:30), 所以 EMI-II 监测到的 SO₂ 结果与 TROPOMI 的数据有些许差异。将 EMI-

II 的 SO₂ VCD 以 1° × 1° 的网格重采样后与 TROPOMI 结果进行线性拟合, 结果如图 5 所示, 相关性系数 R 分别为 0.891、0.901、0.915, 这表明 EMI-II 反演的 SO₂ VCD 与 TROPOMI 结果相关性较高。在部分高值区域, EMI-II 结果较 TROPOMI 结果偏低, 这主要是因为 SO₂ 高值区域 TROPOMI 与 EMI-II 所用的先验廓线不同, TROPOMI 在 SO₂ 高值区域的 AMF 较小, 进而导致 EMI-II 的 SO₂ 柱浓度在高值区域较 TROPOMI 偏低。

3.2 汤加海底火山喷发监测

当地时间 2022 年 1 月 14 日 4 时左右, 汤加海底火山 (20°34'12"S, 175°22'48"W) 初次爆发, 大量的火山灰以及气体羽流被送至平流层以上。当地时间 2022 年 1 月 15 日 17 时左右, 汤加海底火山再次爆发, 形成的火山羽流高度达到 30 km 左右。此次火山爆发的冲击波形成了高达 1.2 m 的海啸, 喷发的火山灰和气体团等对全球环境与气候的影响较大。

图 6 展示了本次汤加海底火山爆发所产生的 SO₂ 羽流气团的分布和传输过程。需要特别说明的是, TROPOMI 载荷在 2022 年 1 月 16 日出现通信问题, 导致 3 轨数据缺失。由图 6 可知, EMI-II 反演的结果与 TROPOMI 结果一致, 均观测到此次火山爆发所产生的 SO₂ 烟羽, 并观测到此次火山爆发后 SO₂ 羽流的传输过程。

拉格朗日混合单粒子轨道 (HYSPLIT) 模型是由美国国家海洋和大气管理局 (NOAA) 开发的用于计算大气污染输送及扩散轨迹的模型^[25]。卫星图像显示, 此次火山喷发的羽流高度在 20 km 以上^[26], 利用 HYSPLIT 风向轨迹模型的前向轨迹模式来对火山爆发时段的大气输送情况进行分析, 结果如图 7 所示。从图 7 可以看到, 在观测期间 20、25、30 km 处都以东风为主, 大气传输方向自东向西, 这与图 6 的观测结果 (SO₂ 烟羽自东向西从汤加群岛传输至澳大利亚) 吻合。

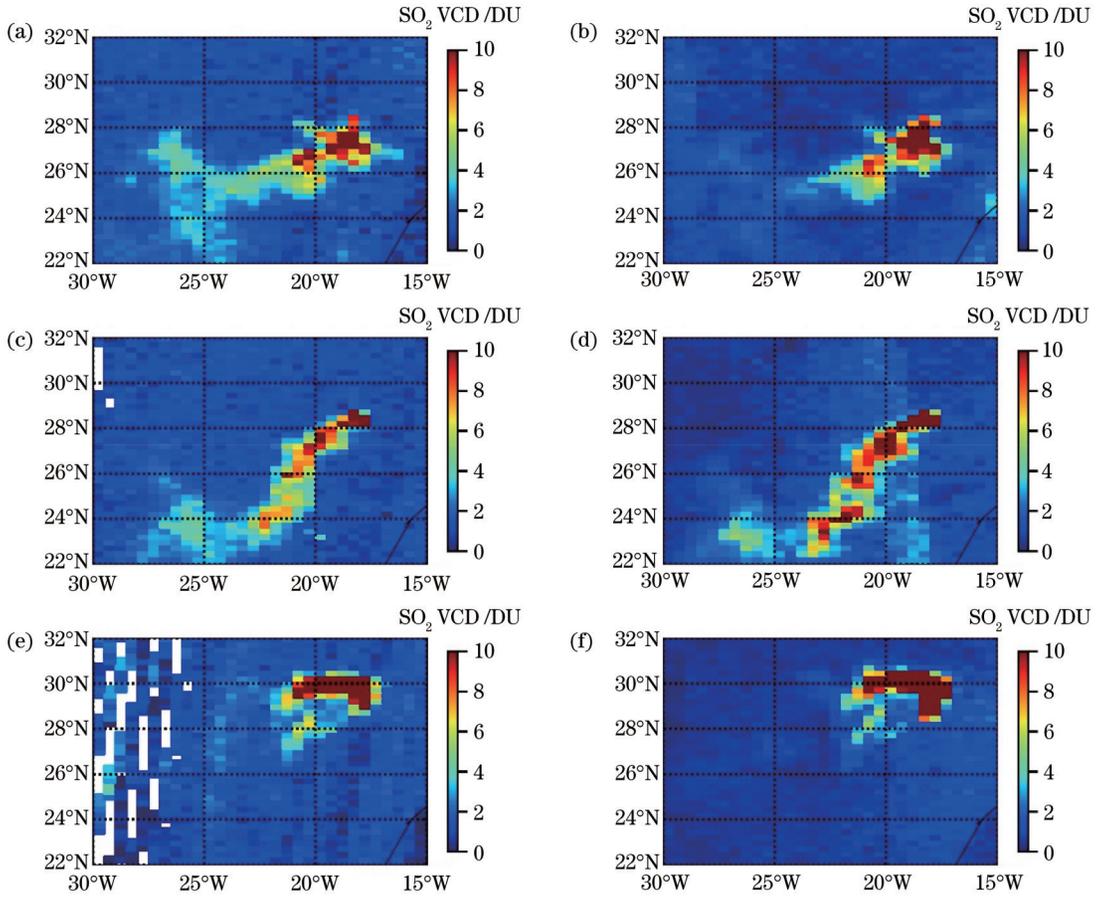


图 4 拉帕尔马岛火山 SO₂ 监测结果。(a) 2021 年 10 月 27 日 EMI- II 反演的 SO₂ VCD; (b) 2021 年 10 月 27 日 TROPOMI 监测的 SO₂ VCD; (c) 2021 年 10 月 29 日 EMI- II 反演的 SO₂ VCD; (d) 2021 年 10 月 29 日 TROPOMI 监测的 SO₂ VCD; (e) 2021 年 10 月 31 日 EMI- II 反演的 SO₂ VCD; (f) 2021 年 10 月 31 日 TROPOMI 监测的 SO₂ VCD

Fig. 4 Monitored SO₂ results from the La Palma volcano. (a) Retrieved SO₂ VCD from EMI- II on October 27, 2021; (b) SO₂ VCD obtained by TROPOMI on October 27, 2021; (c) retrieved SO₂ VCD from EMI- II on October 29, 2021; (d) SO₂ VCD obtained by TROPOMI on October 29, 2021; (e) retrieved SO₂ VCD from EMI- II on October 31, 2021; (f) SO₂ VCD obtained by TROPOMI on October 31, 2021

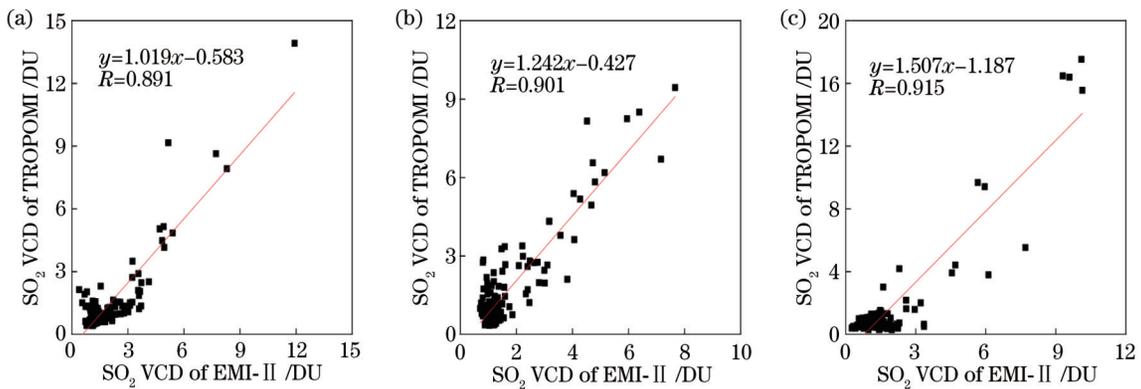


图 5 不同时间的拉帕尔马岛火山区域 EMI- II 与 TROPOMI 的 SO₂ VCD 线性拟合结果。(a) 2021 年 10 月 27 日; (b) 2021 年 10 月 29 日; (c) 2021 年 10 月 31 日

Fig. 5 Linear fitting results of SO₂ VCD between EMI- II and TROPOMI at La Palma volcano area at different time. (a) October 27, 2021; (b) October 29, 2021; (c) October 31, 2021

将 2022 年 1 月 15—18 日 EMI- II 与 TROPOMI 的 SO₂ VCD 以 1° × 1° 的网格重采样后取平均值, 进行逐像元的比较, 其散点图结果 (99.5% 置信区间)

如图 8 所示。由图 8 可知, 汤加火山爆发所产生的羽流中的 SO₂ VCD 主要在 0~50 DU 范围内, 部分高值区域可能达到 100 DU 以上。在高值网格区域,

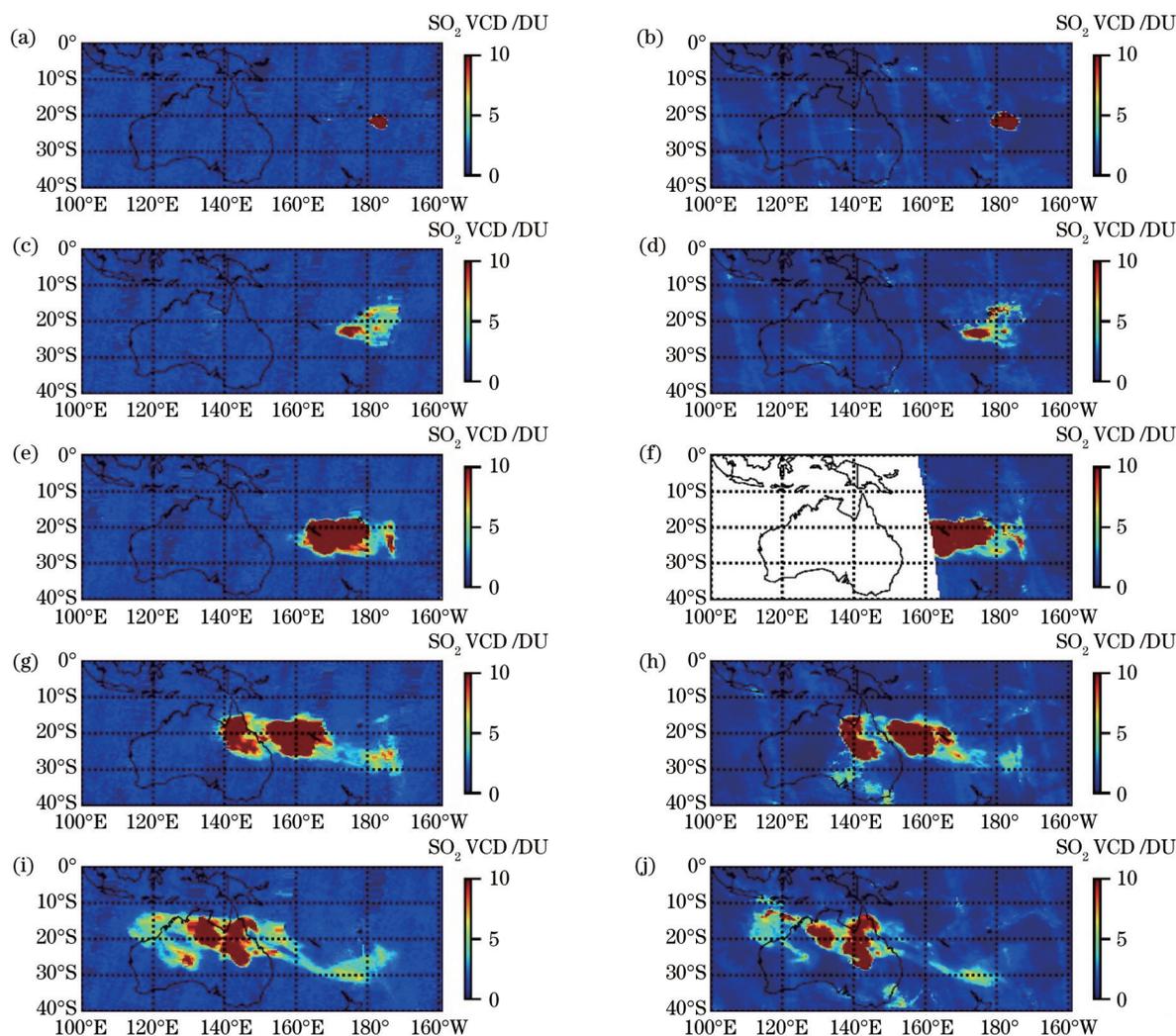


图6 汤加海底火山 SO_2 VCD 监测结果。(a) 2022 年 1 月 14 日 EMI-II 的监测结果;(b) 2022 年 1 月 14 日 TROPOMI 的监测结果;(c) 2022 年 1 月 15 日 EMI-II 的监测结果;(d) 2022 年 1 月 15 日 TROPOMI 的监测结果;(e) 2022 年 1 月 16 日 EMI-II 的监测结果;(f) 2022 年 1 月 16 日 TROPOMI 的监测结果;(g) 2022 年 1 月 17 日 EMI-II 的监测结果;(h) 2022 年 1 月 17 日 TROPOMI 的监测结果;(i) 2022 年 1 月 18 日 EMI-II 的监测结果;(j) 2022 年 1 月 18 日 TROPOMI 的监测结果

Fig. 6 Monitored SO_2 VCD of Tonga submarine volcano. (a) Result from EMI-II on January 14, 2022; (b) result from TROPOMI on January 14, 2022; (c) result from EMI-II on January 15, 2022; (d) result from TROPOMI on January 15, 2022; (e) result from EMI-II on January 16, 2022; (f) result from TROPOMI on January 16, 2022; (g) result from EMI-II on January 17, 2022; (h) result from TROPOMI on January 17, 2022; (i) result from EMI-II on January 18, 2022; (j) result from TROPOMI on January 18, 2022

EMI-II 反演的结果较 TROPOMI 结果偏低,这主要是因为 TROPOMI 在 SO_2 高值区域所用的先验廓线与 EMI-II 不同,使得 TROPOMI 在高值区域的 AMF 较小,进而导致 EMI-II 结果在高值区域较 TROPOMI 结果偏低。

由于此次汤加火山喷发所产生的 SO_2 烟羽已达到平流层,其寿命较长,故可以用式(4)替代式(5)来计算汤加火山的 SO_2 排放通量,其中风场数据来自 ECMWF 的再分析数据集。计算可得:2022 年 1 月 14 日与 15 日的 SO_2 排放通量分别为 345.83 t/s 与 504.85 t/s,因此,2022 年 1 月 15 日火山喷发产生的 SO_2 排放通量较 14 日高 45.98%。由于 2022 年 1 月中

旬汤加海底火山喷发的监测与研究主要依赖于卫星观测与模型结果,当前的研究未给出火山喷发的确切持续时间(非 SO_2 羽流存在时间),故无法准确地计算出此次汤加海底火山爆发产生的 SO_2 排放总量,但所得到的 SO_2 排放通量的计算对岩浆脱气及其动力学等研究有着极其重要的意义。

4 结 论

基于 DOAS 算法反演了 EMI-II 的 SO_2 VCD,并在火山区域验证了所提反演算法的可靠性。以 2021 年 10 月底拉帕尔马岛火山喷发为例,EMI-II 反演的 SO_2 VCD 与 TROPOMI 结果一致,同时观测到 SO_2 羽

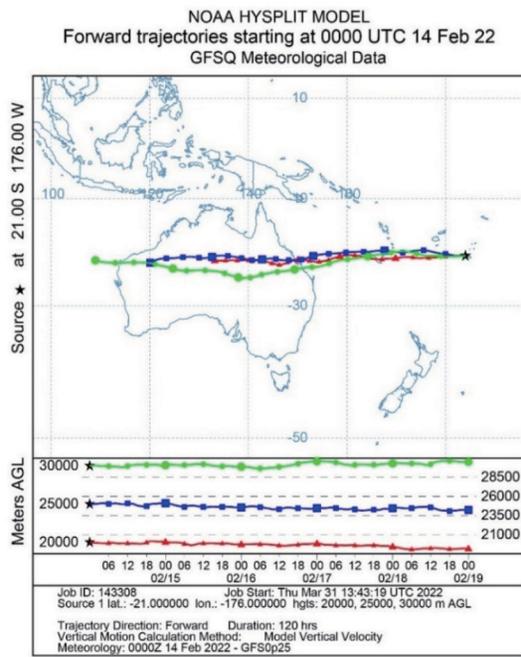


图 7 汤加海底火山爆发期间大气团前向轨迹的示意图
Fig. 7 Diagram of the forward trajectories of air masses during the Tonga submarine volcano eruptions

流向西南方向传输的过程,并且相关性系数 R 分别为 0.891、0.901 与 0.915。由于 EMI- II 是上午星, TROPOMI 为下午星,其空间分布有稍许偏差是合理的。还以汤加海底火山喷发为例,验证了 EMI- II 对火山区域 SO_2 VCD 的监测能力,EMI- II 反演的 2022 年 1 月 14—18 日 SO_2 VCD 的空间分布与 TROPOMI 监测结果一致,均观测到此次火山爆发产生的 SO_2 羽流向西传输的过程,这也与基于 HYSPLIT 风向轨迹模型获得的该时段当地的大气团传输轨迹吻合。但是,由于不同算法之间的差异,虽然 EMI- II 的结果整体与 TROPOMI 一致,但 EMI- II 反演的 SO_2 VCD 部分极高值点较 TROPOMI 结果偏低,这主要是因为 SO_2 高值网格中, TROPOMI 在计算 AMF 时所用的先验廓线与 EMI- II 不同,AMF 的精确计算将是今后工作的重点。此外,结合风场数据与 EMI- II 计算的 SO_2 VCD,计算出 2022 年 1 月 14—15 日汤加火山喷发的 SO_2 排放通量分别为 345.83 t/s 与 504.85 t/s。本研究的结果证明了 EMI- II 具有火山区域 SO_2 的监测能力,其对后续 EMI- II 的 SO_2 VCD 反演以及全球验证有着重要的意义。

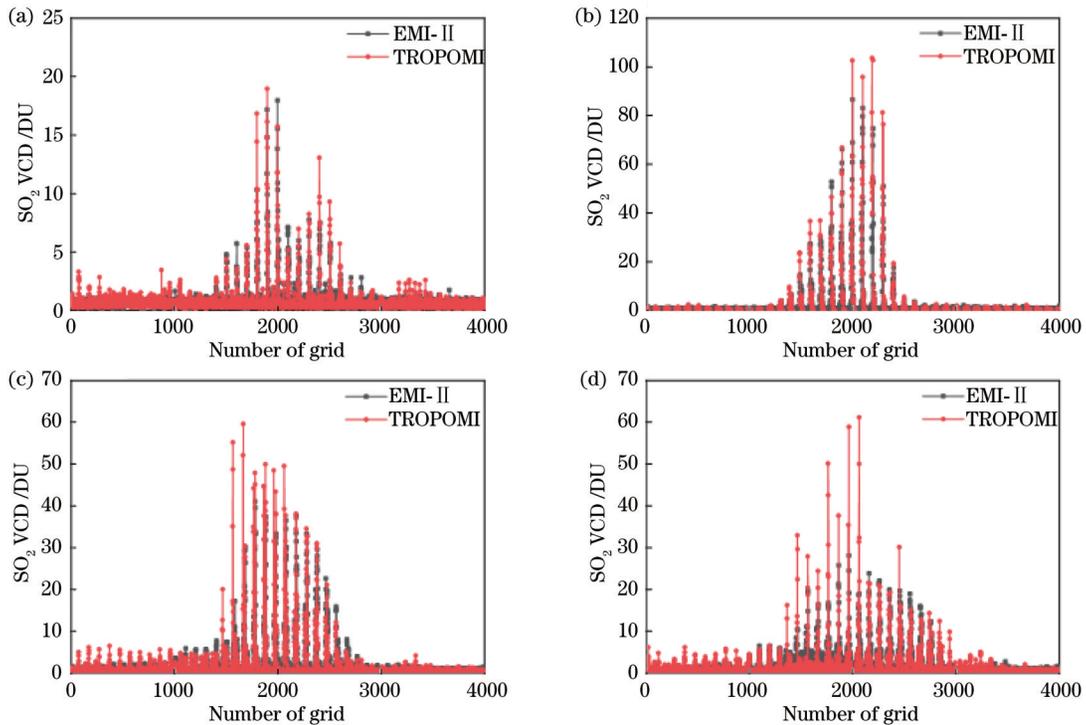


图 8 汤加海底火山喷发期间 EMI- II 与 TROPOMI 的 SO_2 VCD 散点图。(a) 2022 年 1 月 15 日;(b) 2022 年 1 月 16 日;(c) 2022 年 1 月 17 日;(d) 2022 年 1 月 18 日
Fig. 8 Scatter plots of SO_2 VCDs from EMI- II and TROPOMI during Tonga submarine volcanic eruption. (a) January 15, 2022; (b) January 16, 2022; (c) January 17, 2022; (d) January 18, 2022

参 考 文 献

[1] Lee C, Richter A, Weber M, et al. SO_2 retrieval from SCIAMACHY using the weighting function DOAS (WFDOAS) technique: comparison with standard DOAS retrieval[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2008, 8(20): 6137-6145.

[2] Theys N, de Smedt I, van Gent J, et al. Sulfur dioxide vertical column DOAS retrievals from the ozone monitoring instrument: global observations and comparison to ground-based and satellite data[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2015, 120(6): 2470-2491.

[3] Khattak P, Khokhar M F, Yasmin N. Spatio-temporal analyses

- of atmospheric sulfur dioxide column densities over Pakistan by using SCIAMACHY data[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2014, 14(7): 1883-1896.
- [4] Platt U, Stutz J. Differential optical absorption spectroscopy[M]. *Physics of Earth and Space Environments*, Heidelberg: Springer, 2008: 135-174.
- [5] 潘屹峰, 田鑫, 谢品华, 等. CNN-SVR用于MAX-DOAS光谱预测对流层NO₂廓线[J]. *光学学报*, 2022, 42(24): 2401001.
Pan Y F, Tian X, Xie P H, et al. Prediction of tropospheric NO₂ profile using CNN-SVR for MAX-DOAS spectrum[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(24): 2401001.
- [6] 黄业园, 李昂, 秦敏, 等. 基于车载多轴差分吸收光谱技术的武汉氮氧化物分布及排放研究[J]. *光学学报*, 2021, 41(10): 1030002.
Huang Y Y, Li A, Qin M, et al. Nitrogen oxides spatial distribution and emissions with mobile multi-axis differential optical absorption spectroscopy in Wuhan City[J]. *Acta Optica Sinica*, 2021, 41(10): 1030002.
- [7] 刘文清. “双碳”目标下大气环境光学监测技术发展机遇[J]. *光学学报*, 2022, 42(6): 0600001.
Liu W Q. Opportunities and challenges for development of atmospheric environmental optics monitoring technique under “double carbon” goal[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(6): 0600001.
- [8] Carn S A, Krueger A J, Krotkov N A, et al. Fire at Iraqi sulfur plant emits SO₂ clouds detected by Earth Probe TOMS[J]. *Geophysical Research Letters*, 2004, 31(19): L19105.
- [9] Thomas W, Erbertseder T, Ruppert T, et al. On the retrieval of volcanic sulfur dioxide emissions from GOME backscatter measurements[J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2005, 50(3): 295-320.
- [10] Lee C, Martin R V, van Donkelaar A, et al. Retrieval of vertical columns of sulfur dioxide from SCIAMACHY and OMI: air mass factor algorithm development, validation, and error analysis[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, 114(D22): D22303.
- [11] Theys N, Hedelt P, De Smedt I, et al. Global monitoring of volcanic SO₂ degassing with unprecedented resolution from TROPOMI onboard Sentinel-5 Precursor[J]. *Scientific Reports*, 2019, 9: 2643.
- [12] 闫欢欢, 王后茂, 王维和, 等. 高分五号大气痕量气体差分吸收光谱仪观测数据的火山喷发SO₂总量反演[J]. *遥感学报*, 2021, 25(11): 2326-2338.
Yan H H, Wang H M, Wang W H, et al. Volcanic SO₂ retrieved from GF-5 environmental trace gas monitoring instrument[J]. *National Remote Sensing Bulletin*, 2021, 25(11): 2326-2338.
- [13] Loyola D G, García S G, Lutz R, et al. The operational cloud retrieval algorithms from TROPOMI on board Sentinel-5 precursor[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2018, 11(1): 409-427.
- [14] Danckaert T, Fayt C, van Roozendaal M, et al. QDOAS software user manual[EB/OL]. (2021-12-07)[2022-02-05]. <http://uv-vis.aeronomie.be/software/QDOAS/>.
- [15] Vandaele A C, Hermans C, Fally S. Fourier transform measurements of SO₂ absorption cross sections: II: temperature dependence in the 29000-44000 cm⁻¹ (227-345 nm) region[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2009, 110(18): 2115-2126.
- [16] 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]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A*, 2003, 157(2/3): 167-184.
- [17] Vandaele A C, Hermans C, Simon P C, et al. Fourier transform measurement of NO₂ absorption cross-section in the visible range at room temperature[J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 1996, 25(3): 289-305.
- [18] Fleischmann O C, Hartmann M, Burrows J P, et al. New ultraviolet absorption cross-sections of BrO at atmospheric temperatures measured by time-windowing Fourier transform spectroscopy[J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A*, 2004, 168(1/2): 117-132.
- [19] Meller R, Moortgat G K. Temperature dependence of the absorption cross sections of formaldehyde between 223 and 323 K in the wavelength range 225-375 nm[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2000, 105(D6): 7089-7101.
- [20] Kleipool Q L, Dobber M R, de Haan J F, et al. Earth surface reflectance climatology from 3 years of OMI data[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, 113(D18): D18308.
- [21] Boersma K F, Eskes H J, Veeckind J P, et al. Near-real time retrieval of tropospheric NO₂ from OMI[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, 7(8): 2103-2118.
- [22] Qian Y Y, Luo Y H, Si F Q, et al. Total ozone columns from the environmental trace gases monitoring instrument (EMI) using the DOAS method[J]. *Remote Sensing*, 2021, 13(11): 2098.
- [23] 杨太平, 司福祺, Wang P, 等. 大气痕量气体差分吸收光谱仪云量反演算法研究[J]. *光学学报*, 2020, 40(9): 0901001.
Yang T P, Si F Q, Wang P, et al. Research on cloud fraction inversion algorithm of environmental trace gas monitoring instrument[J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(9): 0901001.
- [24] Theys N, Campion R, Clarisse L, et al. Volcanic SO₂ fluxes derived from satellite data: a survey using OMI, GOME-2, IASI and MODIS[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(12): 5945-5968.
- [25] Draxler R R, Hess G D. An overview of the HYSPLIT_4 modeling system for trajectories, dispersion, and deposition[J]. *Australian Meteorological Magazine*, 1998, 47(4): 295-308.
- [26] Ramírez-Herrera M T, Coca O, Vargas-Espinosa V. Tsunami effects on the coast of Mexico by the Hunga Tonga-Hunga Ha'apai volcano eruption, Tonga[J]. *Pure and Applied Geophysics*, 2022, 179(4): 1117-1137.

Retrieval of Sulfur Dioxide in Volcanic Region from EMI- II

Qian Yuanyuan^{1,2}, Luo Yuhan¹, Zhou Haijin¹, Chang Zhen¹, Yang Taiping¹, Xi Liang^{1,2},
Tang Fuying^{1,2}, Si Fuqi^{1*}

¹Key Laboratory of Environmental Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, Anhui, China;

²University of Science and Technology of China, Hefei 230026, Anhui, China

Abstract

Objective The SO₂ slant column density (SCD) of environmental trace gases monitoring instrument II (EMI- II) from China is firstly retrieved using differential optical absorption spectroscopy (DOAS). The air mass factor (AMF) look-up table of SO₂ is established using the SCIATRAN radiative transfer model. The vertical column density (VCD) is obtained after destriping. With the La Palma volcano at the end of October 2021 as an example, the SO₂ VCD obtained by retrieval from EMI- II data is consistent with that from TROPospheric monitoring instrument (TROPOMI) with the correlation coefficients (*R*) of 0.89, 0.90, and 0.92. In addition, the retrieved SO₂ VCD in the region of Tonga submarine volcano is also compared with that from TROPOMI. The EMI- II results show similar spatial distributions to those of the TROPOMI results, and the transmission process (from the east to the west) of the SO₂ plume is monitored. With the wind field data, this paper calculates the fluxes of SO₂ generated from the eruption of the Tonga submarine volcano on 14 and 15 January 2022. The results of the paper show that EMI- II can yield reliable SO₂ VCD in volcanic regions via retrieval and realize the early warning of global volcanic eruptions.

SO₂ not only affects human health (e. g. , respiratory diseases) but also is closely related to climate and environment (e. g. , acid rain). Its oxidation may lead to the formation of aerosols and photochemical smog. SO₂ is an important indicator of air quality and is closely associated with volcanic eruptions. The SO₂ VCD can provide a data basis for tracing the SO₂ pollution caused by industrial emissions and early warning signals for volcanic eruptions around the world. Therefore, it is extremely important to obtain the daily global SO₂ VCD. In this study, we report the SO₂ VCD results in volcanic regions from EMI- II and validate the retrieved results with those from TROPOMI. In addition, the fluxes of SO₂ from the eruption of the Tonga submarine volcano are calculated, which may help make clear the dynamics of magma degassing. We hope that our results can contribute to the development and global validation of the EMI- II SO₂ VCD.

Methods The SO₂ SCD is calculated using the QDOAS software with DOAS method. DOAS retrieves the concentrations of trace gases depending on their characteristic absorption and the measured optical intensity, which is based on the Lambert-Beer's law. Then, the corresponding SO₂ AMF of the EMI- II is calculated using the established AMF look-up table, which is simulated in the SCIATRAN radiative transfer model. The SO₂ VCD is then obtained from SCD and AMF. We use spatial filtering following the Fourier transform method to remove obvious stripes caused by the irradiance calibration error when retrieving the SO₂ VCD from EMI- II. The fluxes of SO₂ from satellite-based measurements can be calculated using the above method. For the Tonga submarine volcano, the effect of distance can be ignored for the long lifetime of the stratospheric SO₂ plume.

Results and Discussions To validate the retrieved SO₂ VCD results, we compare the SO₂ VCD from EMI- II with that from TROPOMI at the La Palma volcano on 27, 29, and 31 October 2021. The SO₂ VCD from EMI- II shows similar spatial distributions to those of the SO₂ VCD from TROPOMI (Fig. 4) with *R* of 0.891, 0.901, and 0.915 (Fig. 5), respectively. In addition, the SO₂ VCD from EMI- II is also compared with that from TROPOMI in the region of the Tonga submarine volcano from 14 to 18 January 2022 (Fig. 6), and the SO₂ VCD from EMI- II is found to have similar spatial distributions to those of the SO₂ VCD from TROPOMI. The SO₂ plume transported from Tonga to Australia, which corresponds to the wind field results from a hybrid single-particle Lagrangian integrated trajectory (HYSPLIT) model (Fig. 7). However, the SO₂ VCD from EMI- II is lower than that from TROPOMI in the grid with a high SO₂ SCD, which is mainly because the *a priori* profile of TROPOMI is different from that of EMI- II in the radiative transfer model. According to the calculated SO₂ VCD and wind field data, the fluxes of SO₂ on 14 and 15 January 2022 in the region of Tonga submarine volcano are 345.83 and 504.85 t/s, respectively.

Conclusions In this paper, the SO₂ VCD is retrieved from EMI- II and validated in volcanic regions. With the La Palma volcano and the Tonga submarine volcano as examples, the SO₂ VCD from EMI- II presents similar spatial distributions to those of the SO₂ VCD from TROPOMI. In addition, the transmission process of SO₂ plume in a volcanic region can be

monitored using the retrieved SO_2 VCD from EMI- II . The results of this study confirm that EMI- II can monitor SO_2 in volcanic regions and realize the early warning of global volcanic eruptions. This paper is of great importance for the development and global validation of SO_2 VCD from EMI- II .

Key words atmospheric optics; differential optical absorption spectroscopy; EMI- II ; SO_2 vertical column density; Tonga submarine volcano