

地球表層における物質循環モデルの開発研究

課題責任者

関谷 高志 海洋研究開発機構 地球環境研究部門 地球表層システム研究センター

著者

関谷 高志^{*1}, 宮崎 和幸^{*2,1}, 須藤 健悟^{*3,1}, 滝川 雅之^{*4}

*¹ 海洋研究開発機構 地球環境研究部門 地球表層システム研究センター, *² ジェット推進研究所/カリフォルニア工科大学, *³ 名古屋大学 大学院環境学研究科 地球環境科学専攻, *⁴ 海洋研究開発機構 地球環境研究部門 北極環境変動総合研究センター

本研究課題では、全球大気組成データ同化を通じて、対流圏二酸化窒素 (NO₂) 気柱量の従来の衛星観測プロダクト (OMI QA4ECV version 1.1) と最新の衛星観測プロダクト (TROPOMI version 1.2) の系統的な比較を行った。以下に示す TROPOMI を用いたデータ同化 (TROPOMI DA) における改善は、観測の感度、衛星リトリーバル誤差、空間被覆率の違いに大きく影響されていた。TROPOMI DA により、同化をしない場合と比較して、同化した衛星観測に対する平均二乗誤差 (RMSE) が 54% 減少した。これは、OMI を用いたデータ同化 (OMI DA) の場合 (38%) より大きな減少である。また、独立した地上観測に対する NO₂ 濃度の一致度の改善も TROPOMI DA (23-50%) の方が OMI DA (最大 47%) よりも大きかった。衛星観測から推定された窒素酸化物 (NO_x) 排出量の全球総量は OMI DA と比較して TROPOMI DA が 15% 小さく、領域規模では 2-23% 小さかった。これらの結果から、TROPOMI DA が NO₂ および NO_x 排出量の解析値を改善するとともに、データ同化を通じた衛星プロダクトの比較が潜在的な衛星リトリーバル誤差とその特性 (時空間的な構造を含む) に関する独自かつ詳細な情報を提供することが示唆された。

キーワード: 大気化学, 衛星観測, データ同化, 排出量逆推定

1. はじめに

Ozone Monitoring Instrument (OMI) [1] に代表されるような衛星観測は、1996 年以來の長期にわたって対流圏 NO₂ 気柱量の全球分布情報を提供してきた。対流圏 NO₂ は、大気質、大気化学、気候変動といった分野において、対流圏オゾンや硝酸塩エアロゾルの主要な前駆物質として重要である [2]。2017 年 10 月に Sentinel-5 Precursor 衛星に搭載された Tropospheric Monitoring Instrument (TROPOMI) [3] が打ち上げられた。TROPOMI からは、従来の衛星観測より高分解能 (7 x 3.5 km²) かつ改善されたシグナル/ノイズ (S/N) 比の対流圏 NO₂ 気柱量の観測データが提供されている [4]。

NO_x 排出量の推定において、衛星 NO₂ 観測の有用性が示されてきている。TROPOMI NO₂ を用いた研究では、高時空間分解能で NO_x 排出量の推定が行われてきているが、これらの研究の対象は、点排出源から都市スケールでの限られた領域のみに限定されてきた [5]。TROPOMI による領域～全球規模での排出量推定において、従来の衛星観測 (OMI など) と比較して、どの程度改善したかについては定量的・整合的な手法で明確に示されてこなかった。

そこで本研究では、TROPOMI および OMI の対流圏 NO₂ リトリーバルのデータ同化 (それぞれ、TROPOMI DA, OMI DA) から得られた濃度・排出量の解析値を比較した。TROPOMI DA と OMI DA の系統的比較から TROPOMI を利用したデータ同化の OMI に対する相対的な利点を明らかにする。こうした情報は、TROPOMI 衛星観測を用いたボトムアップ排出

量インヴェントリの評価や対流圏オゾン・硝酸塩エアロゾルの生成プロセスに関する研究において有益と考えられる。

2. データと手法

本研究では、TROPOMI NO₂ version 1.2beta プロダクト [6] を OMI QA4ECV version 1.1 プロダクト [7] を利用した推定に対する 2018 年 4-5 月の期間を対象とした系統的比較により評価した。データ同化については、局所アンサンブル変換カルマンフィルタ [8] をベースとした全球大気化学データ同化システム [9] を用いた。また、それぞれの衛星観測リトリーバルについては、スーパー・オブザベーション手法 [10] を適用し、0.56° 水平解像度の観測データを作成した。

データ同化の解析値の検証のため、地上 NO₂ 濃度の観測データを利用した。ヨーロッパについては European Environmental Agency (EEA) の European air quality database (AirBASE) から 3255 観測点のデータを、アメリカ合衆国については United States Environmental Protection Agency (US EPA) の Air Quality System (AQS) から 404 観測点のデータを、日本については国立環境研究所により取りまとめられた大気汚染状況の常時監視の一般局から 1246 観測点のデータを利用した。

3. 結果

初めに衛星観測点を抽出した日々の NO₂ 解析値から、同

化した観測に対する平均二乗誤差 (RMSE) のデータ同化による減少量を算出し、それに基づきデータ同化の自己整合性に関する評価を行った。TROPOMI DA の 60° S-60° N における RMSE は、コントロール計算 (同化なし) の場合と比較して 54%減少した。TROPOMI DA における RMSE 減少は OMI DA (38%) より大きかった。これらの違いは TROPOMI リトリバルのスーパー・オブザベーション誤差が OMI と比較して減少したことに起因すると考えられる。また、熱帯・中緯度における海洋上では、TROPOMI リトリバルにおける下部対流圏や雲直上における感度 (i. e., アベレーシング・カーネル) が OMI より高感度であることも、NO₂ 濃度の改善に寄与している。

衛星観測が行われた直後の時間帯に同化インパクトを評価するため、14 地方時の地上現場観測データを検証に用いた。コントロール計算については、ヨーロッパにおいて、領域平均の NO₂ モデルバイアスと RMSE はそれぞれ、-18%と 145%であった。アメリカにおいては、領域平均のモデルバイアスと RMSE がそれぞれ 37%と 268%であり、ニューヨーク、ロサンゼルス、シカゴのような都市域において顕著な正のバイアスがみられた。日本における平均モデルバイアスと RMSE はそれぞれ、-23%と 124%であった。

TROPOMI DA による NO₂ 濃度場の時空間変動の改善を反映して、ヨーロッパの領域 RMSE は 29%減少した (図 1)。

コントロール計算における RMSE が小さいため、イタリア、スペイン、ポルトガルにおける TROPOMI DA による RMSE 減少は顕著ではなかった。アメリカ合衆国においては、TROPOMI DA により、領域平均バイアスと RMSE がそれぞれ 46%と 50%減少した。アメリカ東部や西海岸において RMSE 減少が大きい一方で、コロラド州やワイオミング州においては、RMSE が増加した。日本においては、TROPOMI DA により時空間変動をより良く捉えたことで RMSE が 23%減少したが、平均バイアスは 68%増加した。一方、TROPOMI DA による RMSE 減少に比べると、OMI DA による RMSE 減少は多くの場合において小さかった。ヨーロッパでは、OMI DA により RMSE が 5%増加した。これは、オランダにおける大きな RMSE 増加のためである。アメリカ合衆国と日本においては、ニューヨーク、ロサンゼルス、東京のようなメガシティにおける、TROPOMI DA による RMSE 減少が OMI DA より 25-70%大きい一方、TROPOMI DA による領域 RMSE 減少は OMI DA (アメリカ、日本でそれぞれ、47%、20%) と同程度であった。これらの結果は、TROPOMI DA のデータ同化結果が OMI リトリバルに対する TROPOMI リトリバルの負バイアスに影響されている一方で、TROPOMI DA は OMI DA より NO₂ 濃度の時空間変動をより良く推定していることを示している。

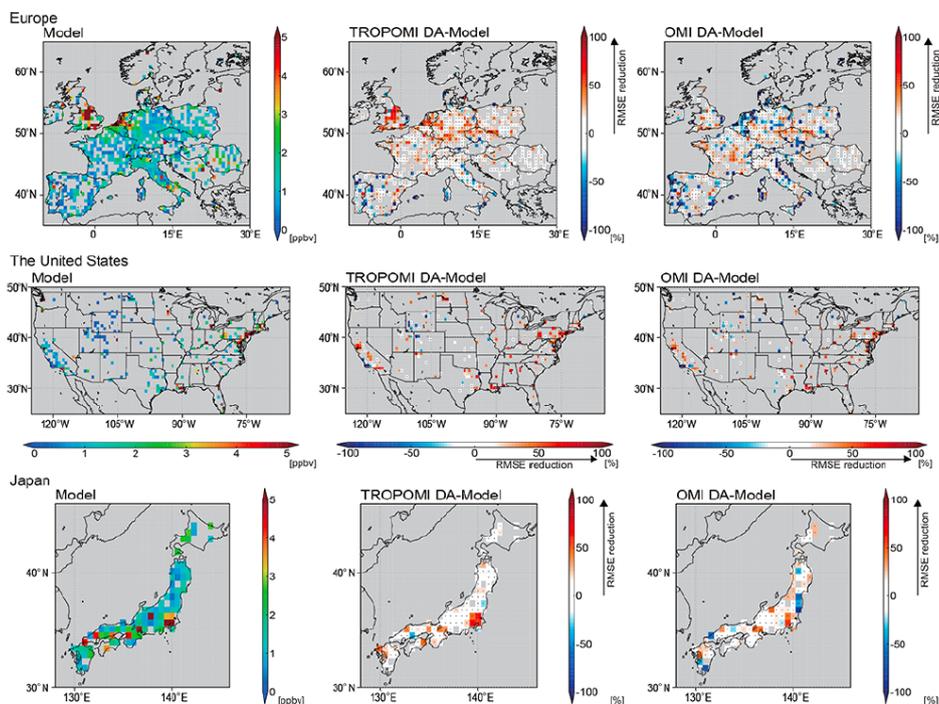


図1. ヨーロッパ (上)、アメリカ合衆国 (中)、日本 (下) における地上現場観測データに対する14地方時におけるNO₂濃度モデル計算値のRMSE分布 (左)、TROPOMI DA・OMI DAによるRMSE減少 (それぞれ中、右)。RMSEおよび減少値は0.56° 解像度でマッピングした。RMSEと減少量の単位はそれぞれ、ppbvと%である。○が記された格子点は、Mann-Whitney U 検定により95%の信頼度で有意なRMSE減少があるとされた格子点である。

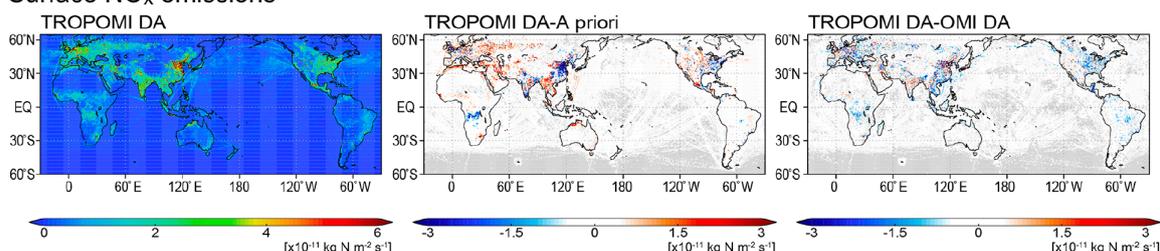
Surface NO_x emissions

図2. TROPOMI DAにより推定された2018年4-5月の全球NO_x排出量分布 (左) とそのアプリオリ排出量との違い (中)、OMI DAとの違い (右)。単位は $\times 10^{11}$ kg N m⁻² s⁻¹。灰色の領域は、差がMann-Whitney U 検定により95%の信頼度で有意でないと考えられた格子点である。

TROPOMI DAによるNO_x排出量のトップダウン推定は、アプリオリ排出量とは大きな違いがみられた (図 2)。アメリカ東部、中国、インド北部、中央アフリカにおいて、TROPOMI DAの排出量はアプリオリ排出量より小さい傾向にあった。領域・国別の排出総量は、TROPOMI DAにより、アメリカ合衆国で14%、中国で38%、インドで17%、中央アフリカで22%減少し、ヨーロッパで12%、中東で39%、東南アジアで44%増加した。また、OMI DAと比べると、TROPOMI DAによるNO_x排出量の全球総量は15%小さく、領域スケールでは、汚染域では3-18%、森林火災領域では22-23%小さかった。これらの違いは、OMI リトリバルに対するTROPOMI リトリバルの負バイアスを反映している。

さらに、いくつかの都市において、TROPOMI DAによるNO_x排出量推定をTROPOMIを用いた先行研究による推定値と比較した。着目した都市は、少なくとも2つ以上の推定値が存在するリヤド、シカゴ、ニューヨーク、トロント、パリである。表1にまとめたように、本研究によるリヤド、シカゴ、ニューヨークの推定値は、Beirle et al. [11]とLange et al. [12]による推定値と10%以内の差異で一致した。しかしながら、Goldberg et al. [13]と比較すると、シカゴ、ニューヨーク、トロントにおける本研究の推定値は18-66%小さかった。これは、Goldberg et al. で

は、高解像度領域モデルから得られた先験情報を用いてAir Mass Factorを再計算しているためであると考えられる。また、パリにおいては、本研究の推定値がLorente et al. [14]、Lange et al. と比較してそれぞれ35%、41%小さいが、これは解析期間の違いが影響していると考えられる。例えば、Lorente et al. では、冬季に暖房起源の排出量増加が示唆されている。ここまでの結果からTROPOMI version 1.2-1.3を用いた排出量推定は負バイアスの影響は受けるものの、時空間変動については良く推定できる可能性が示唆される。

4. まとめと結論

本研究では、TROPOMI およびOMI 対流圏NO₂気柱量リトリバルのデータ同化から得られたNO₂濃度・NO_x排出量解析値を比較した。TROPOMI リトリバルのスーパー・オブザベーション誤差がOMI リトリバルより16%小さいことから、同化した観測に対するRMSE減少がTROPOMI DA (54%)の方がOMI DA (38%)より大きかった。独立した地上NO₂観測に対する一致度についても、多くの場合において、TROPOMI DA (23-50%)の方がOMI DA (最大47%)より大きく改善した。また、TROPOMI DAから推定される2018年4月15日～5月31日におけるNO_x排出量の全球総量は46.2 TgNyr⁻¹であり、OMI DAからの推定値のり15%小

表1. 大都市域における本研究と先行研究におけるNO_x排出量の推定値。単位はMg/hour。排出量は本研究は2018年4月15日～5月31日までの平均値、Lange et al. (2021)が2018年3月～2020年11月の平均値、Beirle et al. (2019)が2017年12月～2018年10月の平均値、Goldberg et al. (2019)が2018年5～9月の平均値、Lorente et al. (2019)が2018年2～6月の平均値である。エラー範囲は本研究については解析スプレッド、先行研究についてはそれぞれの研究の推定誤差を示す。

City	This study	Lange et al. (2021)	Beirle et al. (2019)	Goldberg et al. (2019)	Lorente et al. (2019)
Riyadh (24.6° N, 46.7° E)	21.5 ± 0.9	21.8 ± 0.8	23.8		
Chicago (41.8° N, 87.8° W)	11.0 ± 2.4	12.1 ± 1.1		18.8 ± 5	
New York (40.7° N, 74.0° W)	14.6 ± 2.5	14.7 ± 1.5		17.9 ± 5	
Toronto (43.7° N, 79.4° W)	4.9 ± 2.9	7.6 ± 0.5		14.3 ± 5	
Paris (48.9° N, 2.3° E)	5.2 ± 2.7	8.0 ± 0.5			8.8

い。汚染・森林火災領域における総量においては、TROPOMI DA による推定値が 2-23% 小さかった。

本研究におけるデータ同化解析の比較は、アベレーシング・カーネルやアプリアリ・プロファイル形状の影響を取り除いた、TROPOMI リトリバーバルと OMI リトリバーバルの相互評価である。TROPOMI DA の独立観測に対する一致度の改善は、TROPOMI リトリバーバルの科学的な応用における空間被覆率やリトリバーバル誤差の改善の重要性を示している。これらの結果から、データ同化を通じた個々の衛星観測の評価は、潜在的なリトリバーバル誤差やその特性（時空間的な構造を含む）に関する独自かつ詳細な情報をもたらすことが示され、様々な衛星リトリバーバルプロダクトの評価、衛星リトリバーバルプロダクト開発を支援するプラットフォームとなることが期待される。

謝辞

なお、本研究の一部は、NASA との契約に基づき、カリフォルニア工科大学／ジェット推進研究所で実施された。本研究には、ESA が処理した Copernicus Sentinel TROPOMI データ（2018 年）を修正したものが含まれている。シミュレーションとデータ同化の計算には、JAMSTEC の支援により Earth Simulator を使用した。

文献(10 ポイント太字)

- [1] 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., and Saari, H., “The Ozone Monitoring Instrument”, *IEEE T. Geosci. Remote*, 44, 1093–1101, (2006).
- [2] IPCC, “Climate Change 2021: The Physical Science Basis”, *Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, in press, (2022).
- [3] Veeffkind, J., Aben, I., McMullan, K., Förster, H., de Vries, J., Otter, G., Claas, J., Eskes, H., de Haan, J., Kleipool, Q., van Weele, M., Hasekamp, O., Hoogeveen, R., Landgraf, J., Snel, R., Tol, P., Ingmann, P., Voors, R., Kruizinga, B., Vink, R., Visser, H., and Levelt, P., “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.*, 120, 70–83, (2012).
- [4] van Geffen, J., Boersma, K. F., Eskes, H., Sneep, M., ter Linden, M., Zara, M., and Veeffkind, J. P., “S5P TROPOMI NO₂ slant column retrieval: method, stability, uncertainties and comparisons with OMI”, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 1315–1335, (2020).
- [5] Beirle, S., Borger, C., Dörner, S., Li, A., Hu, Z., Liu, F., Wang, Y., and Wagner, T., “Pinpointing nitrogen oxide emissions from space”, *Science Advances*, 5, eaax9800, (2019).
- [6] ESA: Copernicus Sentinel-5P, “TROPOMI Level 2 Nitrogen Dioxide column products, Version 01”, European Space Agency [data set], <https://doi.org/10.5270/S5P-s4ljg54>, (2018).
- [7] Boersma, K. F., Eskes, H., Richter, A., De Smedt, I., Lorente, A., Beirle, S., Van Geffen, J., Peters, E., Van Roozendael, M., and Wagner, T.: QA4ECV NO₂ tropospheric and stratospheric vertical column data from OMI (Version 1.1), Royal Netherlands Meteorological Institute (KNMI) [data set], <https://doi.org/10.21944/qa4ecv-no2-omi-v1.1>, (2017).
- [8] Hunt, B. R., Kostelich, E. J., and Szunyogh, I., “Efficient data assimilation for spatiotemporal chaos: A local ensemble transform Kalman filter”, *Physica D*, 230, 112–126, (2007).
- [9] Sekiya, T., Miyazaki, K., Ogochi, K., Sudo, K., Takigawa, M., Eskes, H., and Boersma, K. F., “Impacts of Horizontal Resolution on Global Data Assimilation of Satellite Measurements for Tropospheric Chemistry Analysis”, *J. Adv. Model. Earth Sy.*, 13, e2020MS002180, (2021).
- [10] Eskes, H. J., Velthoven, P. F. J. V., Valks, P. J. M., and Kelder, H. M.: Assimilation of GOME total-ozone satellite observations in a three-dimensional tracer-transport model, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 129, 1663–1681, (2003).
- [11] Beirle, S., Borger, C., Dörner, S., Li, A., Hu, Z., Liu, F., Wang, Y., and Wagner, T., “Pinpointing nitrogen oxide emissions from space”, *Sci. Adv.*, 5, eaax9800, (2019).
- [12] Lange, K., Richter, A., and Burrows, J. P., “Variability of nitrogen oxide emission fluxes and lifetimes estimated from Sentinel-5P TROPOMI observations”, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* [preprint], <https://doi.org/10.5194/acp-2021-273>, in review, (2021).
- [13] Goldberg, D. L., Lu, Z., Streets, D. G., de Foy, B., Griffin, D., McLinden, C. A., Lamsal, L. N., Krotkov, N. A., and Eskes, H., “Enhanced Capabilities of TROPOMI NO₂: Estimating NOX from North American Cities and Power Plants”, *Environ. Sci. Technol.*, 53, 12594–12601, (2019).
- [14] Lorente, A., Boersma, K. F., Eskes, H. J., Veeffkind, J. P., van Geffen, J. H. G. M., de Zeeuw, M. B., Denier van der Gon, H. A. C., Beirle, S., and Krol, M. C., “Quantification of nitrogen oxides emissions from build-up of pollution over Paris with TROPOMI”, *Sci. Rep.*, 9, 20033, (2019).

Environmental Geochemical Cycle Modelling Research

Project Representative

Takashi Sekiya Earth Surface System Research Center, Research Institute for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

Authors

Takashi Sekiya ^{*1}, Kazuyuki Miyazaki ^{*2,1}, Kengo Sudo ^{*3,1}, Masayuki Takigawa ^{*4}

^{*1}Earth Surface System Research Center, Research Institute for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, ^{*2}Jet Propulsion Laboratory/California Institute of Technology, ^{*3}Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, ^{*4}Institute of Arctic Climate and Environment Research

This study gives a systematic comparison of the Tropospheric Monitoring Instrument (TROPOMI) version 1.2 and Ozone Monitoring Instrument (OMI) QA4ECV tropospheric NO₂ column through global chemical data assimilation (DA) integration for the period April–May 2018. DA performance is controlled by measurement sensitivities, retrieval errors, and coverage. The smaller mean relative observation errors by 16% in TROPOMI than OMI over 60°N–60°S during April–May 2018 led to larger reductions in the global root-mean-square error (RMSE) against the assimilated NO₂ measurements in TROPOMI DA (by 54 %) than in OMI DA (by 38 %). Agreements against the independent surface observations were also improved by TROPOMI DA compared to the control model simulation (by 23–50%), which were more obvious than those by OMI DA for many cases (by up to 47%). The estimated global total NO_x emissions were 15% lower in TROPOMI DA, with 2–23% smaller regional total emissions. These results demonstrate that TROPOMI DA improves global analyses of NO₂ concentrations and NO_x emissions, which provides unique and detailed information on possible retrieval errors and its characteristics including their spatiotemporal structures.

Keywords : atmospheric chemistry, satellite observations, data assimilation, emission inversion

1. Introduction

Satellite measurements, such as the Ozone Monitoring Instrument (OMI) [1], have provided long-term global pictures of tropospheric NO₂ columns since 1996. Tropospheric NO₂ is important for air quality, atmospheric chemistry, and climate change as the main precursor of tropospheric ozone and nitrate aerosols [2]. Since October 2017, the Tropospheric Monitoring Instrument (TROPOMI) aboard the Sentinel-5 Precursor [3] has been measuring tropospheric NO₂ columns at higher spatial resolutions of 7 x 3.5 km² and improved signal-to-noise (S/N) ratio, compared to OMI [4].

Satellite NO₂ observations have proven useful for constraining NO_x emissions. Using TROPOMI NO₂, surface NO_x emissions have been estimated at high spatial and temporal resolutions, but studies are mostly limited to specific areas at point source to urban scales [5]. Relative advantage of TROPOMI NO₂ over previous satellite measurements, such as OMI NO₂, in emission estimations for different regions of the world has not been clearly addressed in a quantitative and consistent manner.

In this study, we compared concentration and emission analyses derived from the assimilation of TROPOMI and OMI tropospheric NO₂ retrievals. The systematic comparison of TROPOMI DA and OMI DA reveals relative advantages of DA using TROPOMI over OMI, which benefit studies on the

evaluation of bottom-up emission inventories and formation processes of ozone and nitrate aerosols.

2. Data and Methods

We evaluate TROPOMI NO₂ version 1.2beta product [6] through a systematic comparison against the estimates using OMI NO₂ QA4ECV version 1.1 product [7] for April–May 2018, using global chemical data assimilation (DA) system [8] based on local ensemble transform Kalman filter technique [9], while applying a super-observation technique [10] for both retrievals at a 0.56° model resolution.

For the validation of DA analysis, we used surface NO₂ concentrations from 3255 sites over Europe obtained from the European air quality database (AirBase) of the European Environmental Agency (EEA), 404 sites over the United States obtained from the Air Quality System (AQS) of the United States Environmental Protection Agency (US EPA), and 1246 sites over Japan obtained from Japanese continuous measurement data of general air pollution at ground level compiled by the National Institute for Environmental Studies (NIES).

3. Results

We evaluated the self-consistency with the assimilated observations based on reductions in root-mean-square error (RMSE) by DA using daily maps sampled at observation

locations. The RMSE for TROPOMI DA over 60°S–60°N was reduced by 54% compared to that for the control model simulation, which were larger for TROPOMI DA than OMI DA (by 38 %). These differences can be explained by the reduced relative super-observation errors in TROPOMI. Over the oceans in the tropics and midlatitudes, higher vertical sensitivity (i.e., averaging kernels) in TROPOMI than OMI in the lower troposphere and above clouds also contributed to the improvements.

Surface in situ observation data at 14:00 LT were used for validation to evaluate assimilation impacts just after their overpass times. Over Europe, the regional mean model bias and RMSE of NO₂ were -18% and 145 %, respectively. Over the United States, regional mean model bias and RMSE were 37% and 268 %, respectively, with larger positive biases over urban areas such as New York, Los Angeles, and Chicago. The regional mean bias and RMSE over Japan were -23% and 124 %, respectively.

TROPOMI DA reduced the regional RMSE over Europe by 29%, reflecting improvements in spatial and temporal variability by TROPOMI DA (Fig. 1). Because of the small RMSEs in the control model simulation, RMSE reductions by TROPOMI DA were not obvious over Italy, Spain, and Portugal. Over the United

States, TROPOMI DA reduced the regional mean bias and RMSE by 46% and 50 %, respectively. In contrast to the large RMSE reductions over the eastern United States and western coastal areas, RMSEs increased over Colorado and Wyoming again due to the small RMSEs in the control model simulations. Over Japan, TROPOMI DA reduced RMSE by 23% due to better capturing spatial and temporal variations but increased negative model bias by 68 %. Error reductions were smaller in OMI DA overall. The RMSE over Europe was increased by OMI DA by 5% mainly due to the increased errors over the Netherlands. Over the United States and Japan, the RMSE reductions for megacities such as New York, Los Angeles, and Tokyo were 25 %–70% larger in TROPOMI DA than in OMI DA. The regional RMSE reduction was comparable between the two runs (by 47% for the United States and 20% for Japan by OMI DA). These results suggest that the results of TROPOMI DA were affected by the TROPOMI low bias compared to OMI, while TROPOMI DA provided better constraints on spatial and temporal variations in NO₂ concentrations than OMI DA.

The top-down estimates of NO_x emissions provided by TROPOMI DA significantly differed from the a priori emissions. TROPOMI DA tends to decrease emissions over the eastern United States, China, northern India, and Central Africa. The

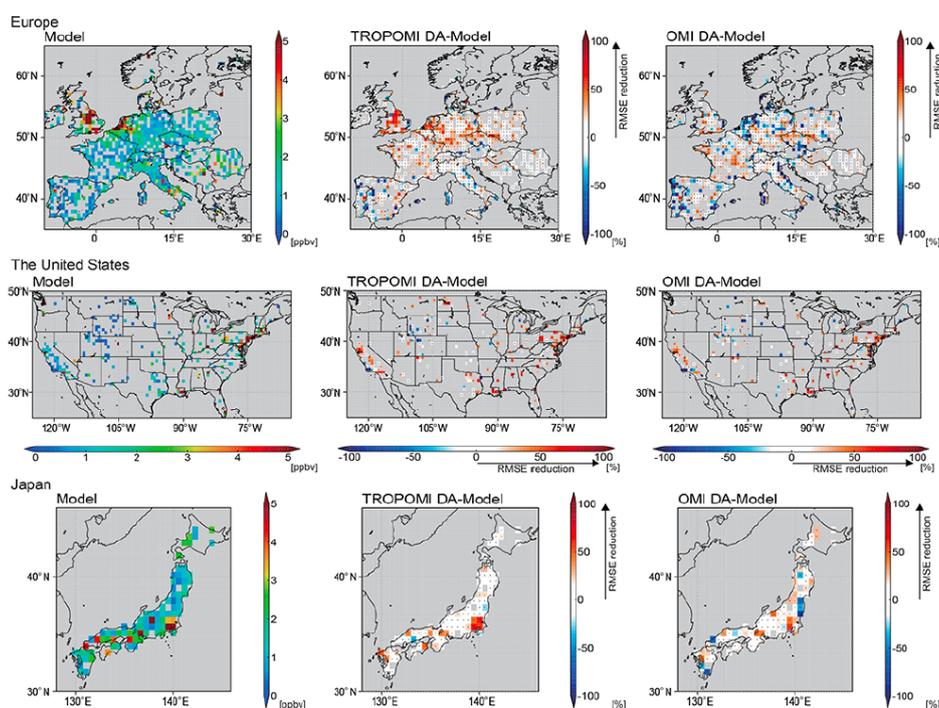


Figure 1. RMSEs against surface in situ observations for surface NO₂ concentration fields (ppbv) at 14:00 LT (local time) in the control model simulation (left column) and their reductions (%) by TROPOMI DA and OMI DA (middle and right columns, respectively) over Europe (top), the United States (middle), and Japan (bottom). The values are mapped onto 0.56° resolution grids. For the middle and right columns, grids with open circles indicate RMSE reductions that are statistically significant at the 95% confidence level using the Mann–Whitney U test.

country and regional total emissions were decreased by 14% in the United States, 38% in China, 17% in India, and 22% in Central Africa, and they were increased by 12% in Europe, 39% in the Middle East, and 44% in Southeast Asia. The global total NO_x emissions were 15% smaller in TROPOMI DA than in OMI DA, with 3 %–18% smaller regional total emissions for polluted regions and 22 %–23% smaller regional total emissions for biomass burning regions, which led to smaller surface NO₂ concentrations. These differences reflect the low bias of TROPOMI retrievals compared to OMI retrievals.

4. Summary and conclusion

We compared DA analyses of NO₂ concentrations, and NO_x emissions derived from the assimilation of the TROPOMI and OMI tropospheric NO₂ column retrievals. Because of 16% smaller relative super-observation errors in TROPOMI than in OMI, the DA self-consistency, as measured by RMSE reductions against the assimilated observations, was improved in TROPOMI DA by 54 %, which was larger than OMI DA (by 38 %). Agreements against the independent surface in situ NO₂ data were also improved by 23 %–50 %, which was larger than those for OMI DA (by up to 47 %) for many cases. Global total NO_x emission for 15 April–31 May 2018 was increased from 43.5 TgNyr⁻¹ in a priori emissions to 46.2 TgNyr⁻¹ by TROPOMI DA, which was 15% smaller than those derived from OMI DA (54.2 Tg N), with 3 %–23% smaller regional total emissions for major polluted and biomass burning areas.

The DA performance comparisons provide a systematic evaluation of TROPOMI and OMI retrievals, independent from their averaging kernels and a priori profiles. The improved agreements with independent observations in TROPOMI DA demonstrate the importance of improved spatial coverage and reduced retrieval uncertainty for many science applications. Consequently, the evaluation of individual satellite measurement through DA integration provides unique and detailed information on possible retrieval errors and its characteristics, including their spatiotemporal structures, which in turn provides a platform to evaluate different retrievals and supports satellite retrieval developments.

Acknowledgement

A part of the research was conducted at the Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, under a contract with NASA. This work contains the modified Copernicus Sentinel data (2018), processed by ESA, for TROPOMI. Earth Simulator was used for simulation and data assimilation calculations with the support of JAMSTEC.

References

[1] 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., and Saari, H., “The Ozone Monitoring Instrument”, IEEE T.

Geosci. Remote, 44, 1093–1101, (2006).

- [2] IPCC, “Climate Change 2021: The Physical Science Basis”, *Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, in press, (2022).
- [3] Veefkind, J., Aben, I., McMullan, K., Förster, H., de Vries, J., Otter, G., Claas, J., Eskes, H., de Haan, J., Kleipool, Q., van Weele, M., Hasekamp, O., Hoogeveen, R., Landgraf, J., Snel, R., Tol, P., Ingmann, P., Voors, R., Kruizinga, B., Vink, R., Visser, H., and Levelt, P., “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.*, 120, 70–83, (2012).
- [4] van Geffen, J., Boersma, K. F., Eskes, H., Sneep, M., ter Linden, M., Zara, M., and Veefkind, J. P., “S5P TROPOMI NO₂ slant column retrieval: method, stability, uncertainties and comparisons with OMI”, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 1315–1335, (2020).
- [5] Beirle, S., Borger, C., Dörner, S., Li, A., Hu, Z., Liu, F., Wang, Y., and Wagner, T., “Pinpointing nitrogen oxide emissions from space”, *Science Advances*, 5, eaax9800, (2019).
- [6] ESA: Copernicus Sentinel-5P, “TROPOMI Level 2 Nitrogen Dioxide column products, Version 01”, European Space Agency [data set], <https://doi.org/10.5270/S5P-s4ljg54>, (2018).
- [7] Boersma, K. F., Eskes, H., Richter, A., De Smedt, I., Lorente, A., Beirle, S., Van Geffen, J., Peters, E., Van Roozendaal, M., and Wagner, T.: QA4ECV NO₂ tropospheric and stratospheric vertical column data from OMI (Version 1.1), Royal Netherlands Meteorological Institute (KNMI) [data set], <https://doi.org/10.21944/qa4ecv-no2-omi-v1.1>, (2017).
- [8] Sekiya, T., Miyazaki, K., Ogochi, K., Sudo, K., Takigawa, M., Eskes, H., and Boersma, K. F., “Impacts of Horizontal Resolution on Global Data Assimilation of Satellite Measurements for Tropospheric Chemistry Analysis”, *J. Adv. Model. Earth Sy.*, 13, e2020MS002180, (2021).
- [9] Hunt, B. R., Kostelich, E. J., and Szunyogh, I., “Efficient data assimilation for spatiotemporal chaos: A local ensemble transform Kalman filter”, *Physica D*, 230, 112–126, (2007).
- [10] Eskes, H. J., Velthoven, P. F. J. V., Valks, P. J. M., and Kelder, H. M.: Assimilation of GOME total-ozone satellite observations in a three-dimensional tracer-transport model, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 129, 1663–1681, (2003).