

Monitorización de las concentraciones atmosféricas de metano y óxido nítrico a partir del Metop/IASI

García, O.*¹, Schneider, M.², Ertl, B.^{2,3}, Sepúlveda, E.¹, Borger, C.^{2,a}, Diekmann, C.², Hase, F.², Khosrawi, F.², Cansado, A.⁴, Aullé, M.⁴

¹Centro de Investigación Atmosférica de Izaña (CIAI), Agencia Estatal de Meteorología (AEMet), Santa Cruz de Tenerife, España.

²Instituto para la Meteorología e Investigación del Clima (IMK), Instituto de Tecnología de Karlsruhe (KIT), Karlsruhe, Alemania.

³Centro Steinbuch para Computación, Instituto de Tecnología de Karlsruhe (KIT), Karlsruhe, Alemania.

⁴Servicio de Modelización de la Calidad del Aire, Agencia Estatal de Meteorología (AEMet), Madrid, España.

^aActualmente en el Grupo de Teledetección Satelital, Instituto Max Planck de Química, Mainz, Alemania.

Resumen: El futuro del sistema Tierra-atmósfera dependerá, en gran medida, de nuestra capacidad para entender todos los procesos que están conduciendo al calentamiento global, y sus consecuencias climáticas, y, en este contexto, los gases de efecto invernadero (GEIs) juegan un papel clave como uno de los principales motores del cambio climático. Con esta idea nace el proyecto de investigación INMENSE (*IASI for Surveying Methane and Nitrous Oxide in the Troposphere*), el cual tiene como objetivo mejorar nuestra comprensión de los balances atmosféricos de dos de los más importantes GEIs, el metano (CH₄) y el óxido nítrico (N₂O). Para ello, el proyecto INMENSE ha generado nuevas observaciones de concentraciones de CH₄ y N₂O en la troposfera media/alta a escala global a partir de las medidas satelitales del sensor IASI (*Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*), que vuela a bordo de los satélites meteorológicos EUMETSAT/Metop. En este trabajo los productos INMENSE IASI de CH₄ y N₂O son presentados, caracterizados y extensamente validados usando una base de datos de referencia multiplataforma (perfiles verticales de avión, medidas *in-situ* y remotas desde superficie). Esta completa validación sugiere que los productos IASI de CH₄ y N₂O tienen una precisión entre el 1-3% y un error sistemático del 2%, así como que son consistentes temporal y espacialmente. Por último, las observaciones IASI de CH₄ y N₂O sobre la península ibérica han sido comparadas a las simulaciones del modelo de transporte químico MOCAGÉ, analizando el grado de acuerdo entre ambas bases de datos.

Palabras clave: metano, óxido nítrico, IASI, INMENSE.

Monitoring of atmospheric methane and nitrous oxide concentrations from Metop/IASI

Abstract: Future of the Earth-atmosphere system will depend, to a large extent, on our capability of understanding all the processes driving climate change and, in this context, of outstanding importance are the monitoring and the investigation of greenhouse gases (GHGs), as main drivers of the Earth's climate change. With this idea the project INMENSE (*IASI for Surveying Methane and Nitrous Oxide in the Troposphere*) was born, which aims to improve our current understanding of the atmospheric budgets of two of the most important well-mixed greenhouse gases, methane (CH₄) and nitrous oxide (N₂O). To this end, INMENSE has generated a new global observational data set of middle/upper tropospheric concentrations of CH₄ and N₂O from the space-based remote sensor IASI (*Infrared*

To cite this article: García, O., Schneider, M., Ertl, B., Sepúlveda, E., Borger, C., Diekmann, C., Hase, F., Khosrawi, F., Cansado, A., Aullé, M. 2020. Monitoring of atmospheric methane and nitrous oxide concentrations from Metop/IASI. *Revista de Teledetección*, 57, 1-11. <https://doi.org/10.4995/raet.2020.13290>

* Corresponding author: ogarcia@aemet.es

Atmospheric Sounding Interferometer), on board the meteorological satellites EUMETSAT/Metop. In this work the INMENSE IASI CH₄ and N₂O products are presented, characterized and comprehensively validated by using a multi-platform reference database (aircraft vertical profiles, ground-based in-situ and remote-sensing observations). This extensive validation exercise suggests that the IASI CH₄ and N₂O products shows a precision between 1-3% and a bias of 2% as well as they are consistent temporally and spatially. Finally, the CH₄ and N₂O IASI observations over the Iberian Peninsula have been compared to MOCAGE chemical transport simulations, assessing the degree of agreement between both datasets.

Key words: methane, nitrous oxide, IASI, INMENSE.

1. Introducción

Múltiples evidencias en el sistema Tierra-atmósfera indican que el calentamiento global, y sus consecuencias climáticas, son ya una realidad. Las diferentes observaciones y registros meteorológicos a nivel global indican, unívocamente, que la temperatura media del planeta ha aumentado 1 °C en el último siglo, produciéndose una rápida aceleración a partir de la década de 1980. Este calentamiento global ha venido acompañado, entre otros fenómenos, de una disminución del volumen disponible de nieve y hielo a nivel global, así como un aumento del nivel del mar (IPCC, 2013). El IPCC (2013) reconoce, además, que este calentamiento ha sido inducido principalmente por las actividades humanas desde la era pre-industrial y establece la necesidad de reducir las emisiones atmosféricas de Gases de Efecto Invernadero (GEIs) sustancial y sostenidamente, como principales causantes del calentamiento observado.

Después del dióxido de carbono (CO₂), el metano (CH₄) y el óxido nitroso (N₂O) son actualmente los GEIs más importantes. Aunque menos abundantes que el CO₂, son mucho más eficientes atrapando la radiación térmica en la atmósfera (25 y 300 veces para el CH₄ y N₂O, respectivamente) (IPCC, 2013). Además, similarmente al CO₂, sus concentraciones acumuladas en la atmósfera han aumentado continuamente durante los últimos siglos, superándose los registros pre-industriales en aproximadamente un 150% y un 20% para CH₄ y N₂O, respectivamente (IPCC, 2013). Sin embargo, la ubicación exacta, la intensidad y la naturaleza de sus fuentes y sumideros presentan aún grandes incertidumbres (Crevoisier et al., 2009). El conocimiento de sus fuentes y sumideros, su distribución espacial y su variabilidad temporal son esenciales para entender su papel en los ciclos de carbono y nitrógeno atmosférico, así como para predecir

exactamente su impacto en el sistema climático o para proporcionar recomendaciones precisas sobre las reducciones en sus emisiones, que serían necesarias para limitar el calentamiento global actual y futuro, y sus consecuencias climáticas.

Una de las principales limitaciones para abordar estos retos es la falta de observaciones precisas de la composición atmosférica en diferentes escalas espaciales y temporales. En este sentido, la monitorización desde el espacio juega un papel fundamental en la investigación del sistema climático. Entre los sensores remotos actuales a bordo de plataformas espaciales, el instrumento IASI (*Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*) tiene una especial relevancia, ya que combina eficazmente los requisitos para la predicción meteorológica (alta cobertura espacial y buena resolución temporal) y los necesarios para la observación de gases traza atmosféricos, como el CH₄ y el N₂O (muy buena relación señal-ruido y una alta resolución espectral), con una larga disponibilidad de datos. La misión IASI está garantizada entre 2007-2022 a bordo de la serie de satélites meteorológicos Metop, los cuales forman el segmento espacial del Sistema Polar de EUMETSAT (Organización Europea para la Explotación de Satélites Meteorológicos, www.eumetsat.int). Estas características convierten a la misión IASI en un componente clave del programa de observación del sistema climático.

En este contexto, el proyecto de investigación INMENSE (*IASI for Surveying Methane and Nitrous Oxide in the Troposphere*) explora el potencial del sensor remoto IASI para proporcionar distribuciones globales de CH₄ y N₂O con el objetivo de mejorar nuestro conocimiento del balance atmosférico de estos importantes GEIs. El presente trabajo tiene como objetivo sintetizar los principales resultados del proyecto INMENSE,

presentando los nuevos productos de CH₄ y N₂O IASI generados dentro del proyecto, así como su completa caracterización y validación. Para ello, la sección 2 describe el sensor remoto IASI así como los nuevos productos CH₄ y N₂O obtenidas a partir de sus observaciones y su completa caracterización en términos de la sensibilidad vertical y errores estimados. Además, se detallan los datos auxiliares empleados para su validación (observaciones de referencia y simulaciones del modelo de transporte químico MOCAGE). La Sección 3 presenta la comparativa con las dos bases de datos, mientras que la Sección 4 resume los principales resultados de este trabajo.

2. Metodología

2.1. Sensor IASI

El sensor remoto IASI es un espectrómetro de infrarrojo por transformada de Fourier (FTIR), desarrollado conjuntamente por EUMETSAT y el CNES (Centro Nacional de Estudios Espaciales, <https://cnes.fr/fr>), que mide la radiación térmica emitida por la superficie de la Tierra y la atmósfera entre 645-2760 cm⁻¹ de forma continua con una resolución espectral de 0,5 cm⁻¹ (i.e., 8461 observaciones espectrales). Escanea la superficie terrestre en píxeles individuales de 12 km de diámetro en el nadir, cubriendo una superficie horizontal de aproximadamente 2200 km en cada barrido. Este instrumento vuela a bordo de los satélites meteorológicos EUMETSAT/Metop, que operan en órbita polar síncrona al Sol a una altitud de 817 km, realizando 14 órbitas al día alrededor de la Tierra. Esta configuración de medida hace que el sensor IASI proporcione observaciones globales dos veces al día (09:30 y 22:30 hora solar local), generando aproximadamente 1,25 millones de espectros por día.

Actualmente hay tres sensores IASI en órbita en Metop-A (desde 2006), Metop-B (desde 2012) y Metop-C (desde 2018), que operan en una órbita coplanaria. Sus respectivos pases se realizan con una diferencia aproximada de 30 minutos, lo que ofrece la oportunidad de combinar las observaciones de los tres sensores.

2.2. Estrategia de inversión del CH₄ y N₂O

Los perfiles de concentraciones de gases atmosféricos se pueden derivar analizando la deformación

de las líneas de absorción gaseosa debida a la presión atmosférica observada en los espectros de alta resolución medidos por el IASI. Para ello, basado en el formalismo de Rodgers (2000), el espectro IASI (y) se relaciona con el estado de la atmósfera (x) y con parámetros auxiliares (p) a través de una función modelo F , que describe el proceso físico de medida, i.e., la interacción de la radiación térmica con la atmósfera, tal que:

$$y=F(x,p) \quad (1)$$

El proceso de inversión de x está mal-condicionado, ya que existen múltiples estados de la atmósfera (x) que producen casi idénticos espectros (y). Para resolverlo, la solución es condicionada definiendo una función de coste (Ecuación 2), cuyo mínimo será el estado de la atmósfera solución:

$$[y-F(x,p)]^T S_y^{-1} [y-F(x,p)] + [x-x_a]^T S_a^{-1} [x-x_a] \quad (2)$$

El primer término representa la diferencia entre el espectro medido (y) y el simulado para un estado dado de la atmósfera (x), donde S_y es la matriz de covarianza de $[y-F(x,p)]$ que da cuenta de la señal medida que no es capturada correctamente por el modelo F . El segundo término es el factor de regularización, el cual fuerza la solución (x) hacia el estado *a priori* más probable (x_a), donde S_a es la matriz de covarianza *a priori* que define el tipo y fuerza de la regularización.

Basado en estos principios, el proyecto INMENSE emplea el procesador IASI desarrollado durante el proyecto europeo MUSICA (*MU*lti-*pl*atform *re*mote *S*ensing of *I*sotopologues for *i*nvestigating the *C*ycle of *A*tmospheric water, Schneider et al., 2016).

Este procesador (en lo sucesivo procesador MUSICA IASI) deriva concentraciones de CH₄ y N₂O con diferentes isótopos de vapor de agua (junto a HNO₃), analizando el espectro térmico de emisión medido por el sensor IASI en el rango 1190-1140 cm⁻¹ con el algoritmo de inversión PROFFIT-nadir (Schneider y Hase, 2011). Particularmente, los perfiles verticales de CH₄ y N₂O son derivados en escala logarítmica usando el método de inversión *ad-hoc* Tikhonov-Phillips (Tikhonov, 1963).

Las interferencias de vapor de agua son muy altas en la región espectral analizada, como ilustra la Figura 1. En ella se muestra un ejemplo de un espectro medido por el sensor IASI y el simulado

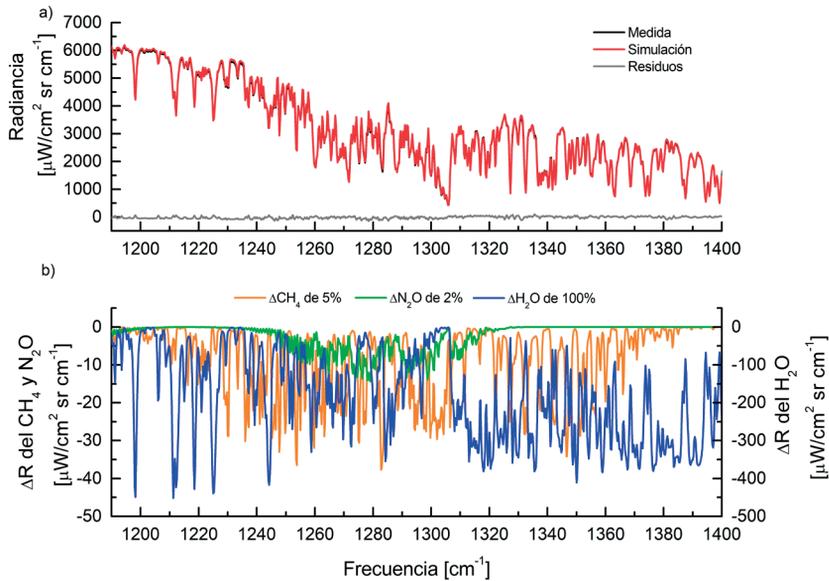


Figura 1. (a) Ejemplo de espectro medido por el sensor IASI y el simulado por el modelo PROFFIT-nadir para una observación sobre el océano tropical ($\approx 12^\circ\text{S}$) en invierno; (b) Cambio espectral en la radiancia medida por el IASI (DR) debido a cambios en la concentración de CH_4 en un 5%, de N_2O en un 2% y del H_2O en un 100%. Nótese que la escala de ordenadas es diferente para H_2O .

por el modelo PROFFIT-nadir, así como el cambio espectral en la radiancia medida por el IASI debido a variaciones típicas en las concentraciones atmosféricas de CH_4 (+5%), de N_2O (+2%) y del H_2O (+100%). Como se observa, la huella espectral de las variaciones del H_2O es un orden de magnitud mayor que la señal del CH_4 y N_2O , lo que implica que la calidad de las estimaciones de estos gases estará condicionada a interpretar correctamente las interferencias espectrales de los

diferentes isótopos de vapor de agua. Por ello, el procesador MUSICA IASI emplea un sofisticado método de inversión basado en la aproximación de Estimación Óptima para derivar las concentraciones de los diferentes isótopos de vapor de agua y reducir así su influencia (Schneider et al., 2016). La región analizada además incluye absorción de HNO_3 y de CO_2 , por lo que ambos gases son invertidos simultáneamente con el resto de especies. Por último, la estrategia de inversión también incluye

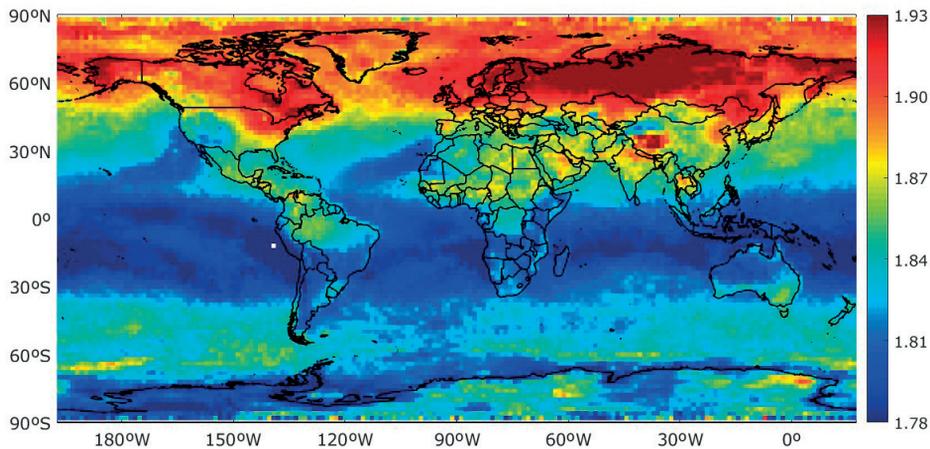


Figura 2. Ejemplo de la distribución global de CH_4 troposférico (a 4,2 km s.n.m., en ppmv) en agosto de 2017 observada por el sensor IASI. Se han promediado las observaciones individuales del MetopA/IASI y MetopB/IASI para un área longitud \times latitud de $2^\circ \times 2^\circ$.

la estimación simultánea del perfil de la temperatura atmosférica, así como de la temperatura de la superficie. Un ejemplo de la distribución global de CH_4 troposférico (4,2 km s.n.m.) invertido con el procesador MUSICA IASI para agosto de 2017 se muestra en la Figura 2, donde se han promediado las observaciones individuales del Metop-A/IASI y Metop-B/IASI para un área longitud \times latitud de $2^\circ \times 2^\circ$ para una mejor visualización de los patrones a escala global.

Nótese que en este trabajo solo se analizan observaciones de IASI de CH_4 y N_2O para píxeles libres de nubes, los cuales se filtran considerando los productos de nubes distribuidos por EUMETSAT en el nivel L2 (August et al., 2012). Para más detalles sobre la estrategia de inversión consultar a García et al. (2018).

2.3. Caracterización del CH_4 y N_2O : sensibilidad vertical y estimación de errores

La sensibilidad de un sensor remoto es caracterizada en el proceso de inversión mediante la matriz *averaging kernel* (A). En el caso de perfiles atmosféricos, A da cuenta de los cambios en el perfil invertido (x') respecto a cambios en el perfil atmosférico real (x), relacionando ambas magnitudes como:

$$(x' - x_a) = A(x - x_a) \quad (3)$$

En particular, las filas de la matriz A describen las altitudes de las capas que contribuyen al perfil invertido y en qué medida, representando así la resolución y sensibilidad vertical que puede ser alcanzada por el sistema remoto (Rodgers, 2000). Como una medida de la sensibilidad total, la traza de A (conocida como DOFS -*Degrees of Freedom for Signal*) proporciona el número total de capas independientes detectables por el sensor remoto. Así, cuanto mayor es el DOFS, más información es extraída de la medida del instrumento. Un ejemplo de las filas de A para una observación típica en medias latitudes del sensor IASI, y su correspondiente valor de DOFS, se muestra en la Figura 3. En este caso, pero también de forma general, para el N_2O se obtienen menores DOFS totales que para el CH_4 (1,4 vs. 1,7, respectivamente), lo que indica que el producto IASI CH_4 ofrece una mejor sensibilidad que las observaciones de N_2O . Mientras

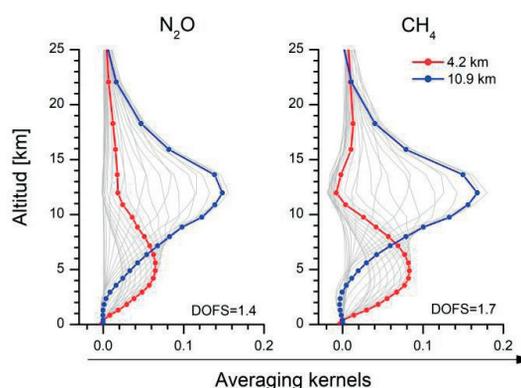


Figura 3. Ejemplo de *averaging kernels* (filas de la matriz A en escala logarítmica) para una observación del sensor IASI sobre tierra a latitudes medias ($\approx 50^\circ\text{N}$) en verano. En gris se muestran las filas de A para diferentes altitudes, mientras que las líneas roja y azul representan la A a la altitud de 4,2 km s.n.m. y 10,9 km s.n.m., respectivamente. El valor del DOFS total se incluye también en la figura.

que para N_2O la sensibilidad está principalmente limitada a la región de la UTLS (alta troposfera-baja estratosfera, representada en la Figura 3 por la A a 10,9 km s.n.m.), el producto IASI de CH_4 puede detectar variaciones que tienen lugar en la troposfera libre (representada en la Figura 3 por la A a 4,2 km s.n.m.) independientemente de aquellas que se producen en la región de la UTLS.

La sensibilidad y resolución vertical del sensor IASI depende de las variaciones del contraste térmico entre la superficie y las capas más bajas de la atmósfera, por lo que varía especialmente con la latitud de la observación, pero también con la época del año, la superficie de la observación (tierra u océano), así como con la hora del día del pase del sensor IASI ($\approx 09:30$ y $21:30$ hora solar local). La máxima sensibilidad se alcanza, por tanto, para aquellas observaciones que favorecen el mayor contraste térmico en los niveles bajos de la troposfera, i.e., en latitudes tropicales, en los meses cálidos, sobre tierra y por la mañana. Por ejemplo, para el N_2O pasamos, en promedio, de DOFS totales de 1,4 a 1,2 de las regiones tropicales a las polares, mientras que para el CH_4 la disminución es de 1,8 a 1,4. El resto de factores proporcionan variaciones significativas, pero menores del 10%.

La caracterización de los productos IASI se completa con una estimación teórica de errores, que nos permite identificar las fuentes de error más importantes, y por tanto susceptibles de mejora en la estrategia de inversión, así como cuantificarlos.

En este trabajo se ha considerado como fuentes potenciales de error aleatorio el ruido instrumental, el perfil de temperatura atmosférico (2 K hasta 2 km s.n.m. y 1 K por encima), la emisividad superficial (1%) y la interferencia de los isótopos de H₂O (10%), mientras que como fuentes sistemáticas o no-Gaussianas se ha considerado los errores en los parámetros espectroscópicos (2%), el impacto del continuo de H₂O (10%) y la presencia de nubes y polvo mineral sobre los píxeles de observación.

Propagando estas fuentes de error hacia los perfiles atmosféricos de CH₄ y N₂O invertidos, considerando para ello el formalismo de Rodgers (2000), se obtiene que el perfil atmosférico de temperatura es la fuente que más influye en la precisión de los productos IASI (entre 0-3% para altitudes menores de 20 km), mientras la contribución del resto de fuentes consideradas es menor al 1%. Respecto a los errores sistemáticos, la espectroscopía es la fuente dominante proporcionando un error entre el ±2%, aunque la presencia de nubes (especialmente de cirrus) puede ocasionar errores de casi el 5% en las concentraciones de CH₄ y N₂O troposféricas. Para más detalles sobre el análisis de errores consultar a García et al. (2018).

2.4. Datos auxiliares

2.4.1. Observaciones de referencia

Para usar con total confianza los nuevos datos IASI es necesario documentar su precisión y consistencia tanto temporal como espacialmente.

Para ello, INMENSE emplea una base de datos multi-plataforma como referencia de validación (Figura 4):

1. Perfiles de avión de CH₄ y N₂O de las cinco campañas del proyecto HIAPER *Pole-to-Pole Observation* (HIPPO, <http://hippo.ucar.edu/>) realizados entre 2009 y 2011. Los diferentes vuelos durante las cinco misiones cubrieron desde 67°S a 80°N, la mayoría del área sobre el océano Pacífico, y desde superficie hasta, aproximadamente, 14 km de altitud (~150-300 hPa).
2. Observaciones continuas a nivel de superficie de CH₄ y N₂O realizadas entre 2007 y 2017 en observatorios de alta montaña situados en latitudes subtropicales y medias: Observatorio Atmosférico de Izaña (28,3°N, 16,5°W, 2,3 km s.n.m) y Jungfraujoch (46,5°N, 8,0°E, 3,6 km s.n.m). Estas medidas se realizan en el contexto del programa GAW/WMO (*Global Atmospheric Watch/World Meteorological Organization*, <https://community.wmo.int/activity-areas/gaw>).
3. Perfiles verticales de CH₄ y N₂O derivados de medidas solares realizadas con espectrómetros de infrarrojo por transformada de Fourier (FTIR) entre 2007 y 2017 en el contexto de la red NDACC (*Network for the Detection of Atmospheric Composition Change*, <http://www.ndaccdemo.org/>) en: la estación subtropical del Observatorio Atmosférico de Izaña (28,3°N, 16,5°W, 2,3 km s.n.m), la estación de

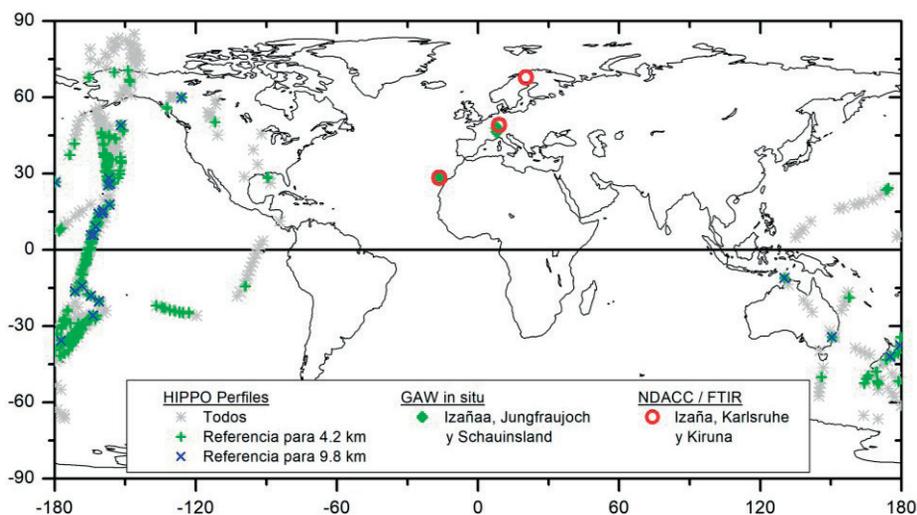


Figura 4. Bases de datos y estaciones empleadas para la validación de los productos IASI CH₄ y N₂O. Figura adoptada de García et al. (2018).

latitudes medidas de Karlsruhe (49,1°N, 8,9°E, 0,1 km s.n.m) y la estación polar de Kiruna (67,8°N, 20,4°E, 0,4 km s.n.m).

2.4.2. Modelo MOCAGE

Las estimaciones de modelos de transporte químico son herramientas muy útiles para realizar tanto validaciones de las observaciones satelitales, como para analizar hasta qué punto estas observaciones pueden capturar las emisiones superficiales de GEIs, y otros gases traza, y su transporte en la atmósfera. Por ello, INMENSE integra las observaciones IASI con las simulaciones del modelo de transporte químico MOCAGE (*Modélisation de la Chimie Atmosphérique Grande Echelle*, Josee et al., 2004). MOCAGE es un modelo global tridimensional de transporte y química atmosférica, que proporciona simulaciones numéricas de las interacciones entre los procesos dinámicos, físicos y químicos en la troposfera y la estratosfera, tanto para gases como para aerosoles. Este modelo es ampliamente utilizado, tanto a nivel operativo como de investigación, especialmente en las simulaciones de concentraciones de gases traza y material particulado asociados a la calidad del aire (Teyssède et al., 2007; Meteo-France et al., 2017; Brocchi et al. 2018). No obstante, existen también numerosos ejemplos en la literatura del uso de MOCAGE para analizar las emisiones y transporte en la atmósfera de las concentraciones de CH₄ y N₂O, comparando con otros modelos químicos de transporte (p.e., SLIMCAT, CNRMAOCCM o LMDz-ORINCA), así como observaciones de sensores a bordo de plataformas espaciales (p.e., FTIR IASI, radar TRMM, radiómetro ODIN, FTIR SCIAMACHY, FTIR TANSO, FTIR AIRS

o MOPITT) (Teyssède et al., 2007; Ricaud et al., 2009; Naik et al., 2013; Ricaud et al., 2014). En general, estos estudios muestran que existe un buen acuerdo entre las estimaciones MOCAGE y el resto de bases de datos, atribuyendo las mayores discrepancias a errores en la simulación de procesos dinámicos regionales y/o hemisféricos.

En este trabajo se emplea la configuración MOCAGE implementada en AEMet. Esta configuración cuenta con una estructura vertical de 47 niveles híbridos que se extienden desde la superficie hasta 0,1 hPa (~60 km) y emplea el esquema químico RACMOBUS, que comprende 119 especies y 372 reacciones y fotólisis (Lefèvre et al., 1994, Stockwell et al., 1997). Las emisiones de los componentes químicos se estiman únicamente en superficie, empleando para ello el inventario de emisiones global del IPCC/EMEP con una resolución de 50 km y con el inventario de TNO_MACC-III para la zona continental europea con año base 2011 y con una resolución horizontal aproximada de 7 km. Para una descripción detallada sobre la configuración MOCAGE implementada en AEMet consultar www.aemet.es/es/eltiempo/prediccion/calidad_del_aire/ayuda. Nótese que los productos MOCAGE de CH₄ and N₂O empleados aquí no son operativamente distribuidos por AEMet, sino que se han generado ex profeso para el proyecto INMENSE.

3. Resultados y discusión

3.1. Comparación con observaciones de referencia

La Tabla 1 resume la comparación entre la base de datos de referencia y los productos de IASI

Tabla 1. Resumen de la comparativa entre los productos MUSICA IASI y las bases de datos de referencia (IASI-Referencia): MD es la media de las diferencias relativas e IP68 es la semi-distancia entre los percentiles 84,1th y 15,9th de las diferencias relativas. Para cada comparativa se muestra la altitud y el periodo de comparación.

Referencia	Localización, Periodo	Altitud [km s.n.m.]	N ₂ O MD; IP68 [%]	CH ₄ MD; IP68 [%]
HIPPO	67°S-80°N, 2009-2011	4,2	+2,0; 1,7	-2,0; 2,0
		9,8	-0,5; 2,5	+1,5; 2,0
GAW	Izaña, 2007-2016 Junfraujoch, 2007-2013	2,3	-0,4; 1,3	-4,9; 1,4
		3,8	+6,9; 2,1	-2,9; 2,7
NDACC	Izaña, 2007-2017	4,2	+2,9; 1,3	-5,8; 1,6
FTIR	Karlsruhe, 2010-2017	12,0	-0,5; 1,3	+2,8; 1,3
		4,2	+5,1; 1,5	+0,1; 1,9
		10,9	+1,5; 1,5	+5,1; 1,5
		4,2	+7,3; 1,9	+2,7; 2,3
	Kiruna, 2007-2016	9,8	+1,8; 1,5	+2,3; 1,4

de CH_4 y N_2O . La comparativa con los perfiles verticales HIPPO sugiere una precisión y un error sistemático del 2%, valores que están en buen acuerdo con la caracterización teórica presentada en la Sección 2.3. La limitada sensibilidad vertical del IASI, la cual presenta una marcada dependencia latitudinal asociada al contraste térmico de las capas bajas de la atmósfera y la altura de la tropopausa, es el principal factor que condiciona la comparabilidad y precisión de los nuevos productos IASI. Asimismo, debe tenerse en cuenta la diferente huella del CH_4 y N_2O en el espectro de emisión medido por el IASI y la variabilidad espacio-temporal de sus concentraciones atmosféricas. En particular, la cobertura geográfica de las cinco misiones HIPPO nos permite analizar si los nuevos productos IASI capturan adecuadamente las variaciones latitudinales. Se observa que mientras los gradientes troposféricos del N_2O son muy débiles (menores 0,5%) y no pueden ser detectados, las variaciones de CH_4 son mucho más intensas (diferencias mayores del 5%). Esta diferencia es más alta que la precisión obtenida para el producto de CH_4 , especialmente en las zonas tropicales y subtropicales, donde la sensibilidad vertical del IASI es mayor, por lo que los datos MUSICA IASI pueden cualitativamente capturar los gradientes de CH_4 entre bajas y altas latitudes y entre el hemisferio Sur y el hemisferio Norte. No obstante, como apunta la estimación teórica de errores, la precisión de los productos IASI mejoraría en la medida que se reduzcan las incertidumbres en la caracterización del perfil de temperatura atmosférica. Respecto a los errores sistemáticos, el valor encontrado en torno al 2% se puede explicar por incertidumbres en los parámetros espectroscópicos (base de datos HITRAN 2016), empleados para la simulación de las líneas de absorción del CH_4 y N_2O presentes en los espectros de emisión medidos por el sensor IASI, tal y como muestra la estimación teórica de errores presentada en la Sección 2.3.

Las comparaciones con los datos de referencia NDACC FTIR y GAW en un periodo de 10 años confirman la precisión obtenida con la comparación HIPPO, así como la consistencia a largo plazo de los productos MUSICA IASI. En el caso de los productos NDACC FTIR se encuentra un error sistemático mayor que con el resto de técnicas de referencia, debido a que estos productos también presentan su propio error sistemático de

~2% (García et al., 2016). Asimismo, se encuentra una inconsistencia entre las observaciones de CH_4 a bajas y altas latitudes de hasta el 5%, lo cual está en buen acuerdo con lo observado con la comparativa HIPPO (García et al., 2018). García et al. (2018) también mostró, realizando un análisis en diferentes escalas temporales, que los datos MUSICA IASI pueden detectar las variaciones día-a-día (solamente en la UTLS), ciclos estacionales y evolución a largo plazo (en la UTLS y para el CH_4 también en la troposfera libre). Se confirma así la capacidad del nuevo producto IASI CH_4 de diferenciar las señales troposféricas de la UTLS, especialmente, a bajas latitudes, como se documentó en la Sección 2.3., mientras que para el N_2O las diferentes comparaciones confirman que la sensibilidad está limitada a la región de la UTLS.

3.2. Comparación con MOCAGE sobre la península ibérica

Las Figuras 5 y 6 resumen la comparativa de las observaciones IASI y las correspondientes simulaciones MOCAGE sobre la península ibérica, mostrando la distribución espacial de las diferencias medias (IASI-MOCAGE) y el coeficiente de correlación de Pearson entre ambas bases de datos para las concentraciones troposféricas y en la UTLS del CH_4 y N_2O . Esta comparación ha sido realizada promediando diariamente las observaciones individuales del Metop-A/IASI y Metop-B/IASI en áreas de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$, mientras que las simulaciones diarias MOCAGE, obtenidas con la configuración de más alta resolución implementada en AEMet ($0,1^\circ \times 0,1^\circ$), se promediaron en las mismas áreas de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$.

Consistentemente para ambos gases, las diferencias sistemáticas muestran una dependencia con el tipo de superficie sobre el que se realizan las observaciones IASI, observando peor acuerdo sobre los píxeles de tierra que sobre mar. Este patrón podría sugerir problemas en el tratamiento de la emisividad superficial en la inversión de las observaciones IASI, la cual presenta menor incertidumbre para píxeles oceánicos (August et al., 2012) o la influencia del perfil vertical de la temperatura atmosférica, el cual presenta mayor contraste en las zonas de tierra. También debería tenerse en cuenta la posible subestimación de los inventarios de emisiones consideradas en el modelo MOCAGE (con base en el año 2011).

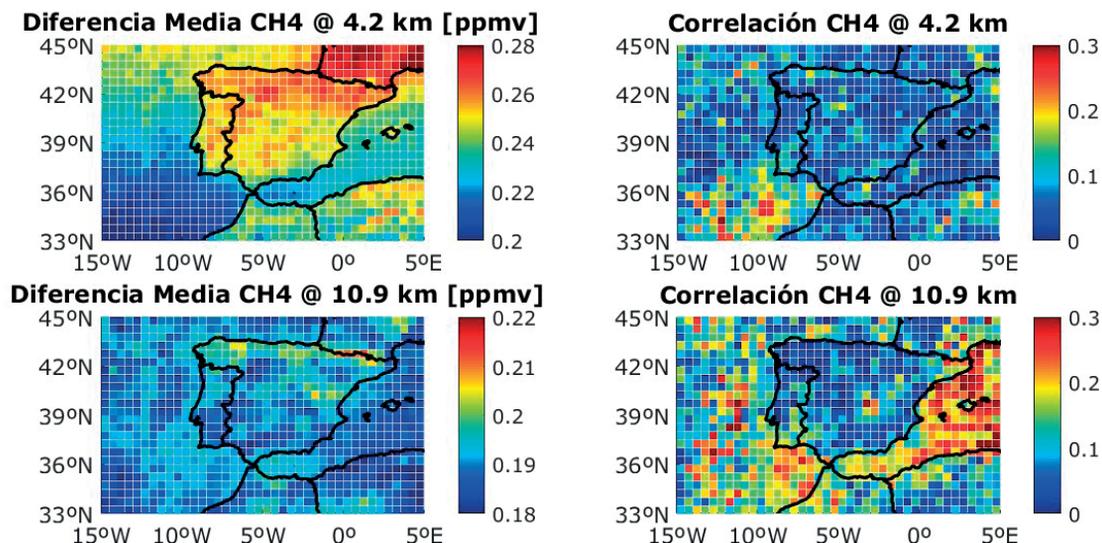


Figure 5. Distribución de la diferencia media (IASI-MOCAGE, en ppmv) y del coeficiente de correlación de Pearson entre las observaciones IASI y las simulaciones MOCAGE para el CH₄ troposférico y en la región de la tropopausa (a 4,2 km y 10,9 km s.n.m., respectivamente) sobre la península ibérica.

Los mapas de correlación evidencian que existe un acuerdo débil en la troposfera para ambos gases, aunque el CH₄ muestra valores de correlación ligeramente más altos que el N₂O, lo cual sería esperable de la mayor sensibilidad vertical observada para este gas. Respecto a la UTLS, las observaciones IASI y las simulaciones MOCAGE del CH₄ y N₂O muestran mejor acuerdo (menores

errores sistemáticos y correlaciones más altas), lo que podría indicar que reproducen de manera similar la dinámica estacional de la altura de la tropopausa, con máximos en la primavera/verano y mínimos en invierno. Este resultado está de acuerdo con la caracterización teórica de los productos IASI y con validación con las observaciones de referencia independientes.

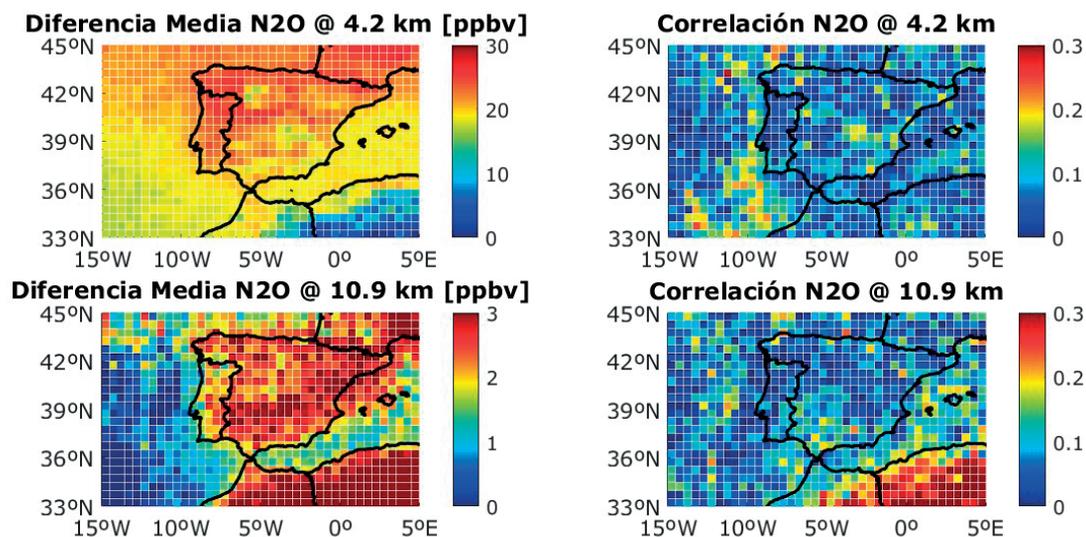


Figure 6. Ídem a Figura 5, pero para el N₂O. Nótese que las unidades en las diferencias medias son ppbv.

La zona analizada de tan solo 12° en latitud no permite apreciar dependencia latitudinal en los errores medios ni en la correlación, pero si cabe destacar que especialmente el producto de CH₄ muestra menores errores (y valores de correlación ligeramente más altos) sobre océano a latitudes más bajas.

La comparativa IASI-MOCAGE sugiere que ambos sistemas podrían capturar la dinámica de la alta troposfera de forma coherente, pero evidencia claramente que no son comparables en la baja troposfera. Asimismo, pone de manifiesto que serían necesarios refinamientos en las estrategias de inversión IASI (mejorar la caracterización de la emisividad superficial o la temperatura atmosférica) y en las estimaciones MOCAGE (incluyendo, por ejemplo, actualizaciones de los inventarios de emisiones) para reducir las discrepancias encontradas.

4. Resumen y conclusiones

Este trabajo explora el potencial del sensor remoto IASI, a bordo de los satélites polares EUMETSAT/Metop, para proporcionar distribuciones globales de las concentraciones atmosféricas de dos de los más importantes gases de efecto invernadero, el CH₄ y el N₂O, a través del proyecto de investigación INMENSE.

La completa caracterización teórica, así como la extensa validación presentada a través de la comparativa con una base de datos de referencia multi-plataforma (perfiles *in-situ* de avión, medidas *in-situ* y de FTIR en superficie), sugiere que los productos IASI de CH₄ y N₂O tienen una precisión entre el 1-3% y un error sistemático del 2%. Estos valores son suficientes para capturar los gradientes latitudinales del CH₄ troposférico, así como su evolución anual, pero insuficientes para la débil variación latitudinal y estacional del N₂O. Para este GEI la sensibilidad del IASI se limita a la región de la alta troposfera/baja estratosfera.

La comparativa con las simulaciones del modelo de transporte químico MOCAGE ha evidenciado que las estimaciones de las concentraciones de CH₄ y N₂O de ambas bases de datos no son comparables en la baja troposfera. Por tanto, serían necesarias mejoras significativas para investigar, a través de las simulaciones MOCAGE, el tipo

señales de fuentes/sumideros de CH₄ y N₂O que pueden ser capturadas por las observaciones IASI, así como su transporte en la atmósfera. No obstante, los nuevos productos IASI parecen capturar similarmente a las simulaciones MOCAGE la dinámica de la alta troposfera, lo cual está de acuerdo con la validación experimental realizada con observaciones independientes de referencia.

Agradecimientos

Este trabajo se ha beneficiado de los fondos recibidos del ERC (*European Research Council*) para el proyecto MUSICA (FP7/(2007-2013)/ERC n°256961), del Deutsche Forschungsgemeinschaft para el proyecto MOTIV (Geschäftszeichen SCHN1126/21), del Ministerio de Economía y Competitividad de España a través de los proyectos NOVIA (CGL2012-37505) e INMENSE (CGL2016-80688P), del Ministerio de Educación, Cultura y Deporte a través del programa “José Castillejo” (CAS14/00282), y de EUMETSAT para el proyecto VALIASI. Además, nos gustaría agradecer a la red NDACC, al programa de GAW/WMO, así como a la NSF (*National Science Foundation*) y a la NOAA (*National Oceanic and Atmospheric Administration*) por su soporte en la adquisición de las medidas FTIR, *in-situ* y campañas HIPPO, respectivamente.

Referencias

- August, T., Klaes, D., Schlüssel, P., Hultberg, T., Crapeau, M., Arriaga, A., O’Carroll, A., Coppens, D., Munro, R., Calbet, X. 2012. IASI on Metop-A: Operational Level 2 retrievals after five years in orbit, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 113, 1340-1371. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.02.028>
- Brocchi, V., Krysztofiak, G., Catoire, V., Guth, J., Marécal, V., Zbinden, R., El Amraoui, L., Dulac, F., Ricaud, P. 2018. Intercontinental transport of biomass burning pollutants over the Mediterranean Basin during the summer 2014 ChArMEX-GLAM airborne campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 6887-6906. <https://doi.org/10.5194/acp-18-6887-2018>
- Crevoisier, C., Nobileau, D., Fiore, A.M., Armante, R., Chédin, A., Scott, N.A. 2009. Tropospheric methane in the tropics – first year from IASI hyperspectral infrared observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 6337-6350. <https://doi.org/10.5194/acp-9-6337-2009>

- García, O.E., Sepúlveda, E., Schneider, M., Hase, F., August, T., Blumenstock, T., Kühl, S., Munro, R., Gómez-Peláez, Á.J., Hultberg, T., Redondas, A., Barthlott, S., Wiegele, A., González, Y., Sanromá, E. 2016. Consistency and quality assessment of the Metop-A/IASI and Metop-B/IASI operational trace gas products (O₃, CO, N₂O, CH₄, and CO₂) in the subtropical North Atlantic, *Atmospheric Measurement Techniques*, *9*, 2315-2333. <https://doi.org/10.5194/amt-9-2315-2016>
- García, O.E., Schneider, M., Ertl, B., Sepúlveda, E., Borger, C., Diekmann, C., Wiegele, A., Hase, F., Barthlott, S., Blumenstock, T., Raffalski, U., Gómez-Peláez, A., Steinbacher, M., Ries, L., de Frutos, A.M. 2018. The MUSICA IASI CH₄ and N₂O products and their comparison to HIPPO, GAW and NDACC FTIR references, *Atmospheric Measurement Techniques*, *11*, 4171-4215. <https://doi.org/10.5194/amt-11-4171-2018>
- IPCC. 2013. *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp.
- Josse, B., Simon P., Peuch, V.H. 2004. Rn-222 global simulations with the multiscale CTM MOCAGE, *Tellus*, *56B*, 339-356. <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2004.00112.x>
- Lefèvre, F., Brasseur, G.P., Folkens, I., Smith, A.K., Simon, P. 1994. Chemistry of the 1991-1992 stratospheric winter: three-dimensional model simulations, *Journal Geophysics Research*, *99*(D4), 8183-8195. <https://doi.org/10.1029/93JD03476>
- Meteo-France and all CAMS_50 modelling teams. 2017. Regional Production. Description of the operational models and of the ENSEMBLE system - October 2016, Copernicus Atmosphere Monitoring Service, disponible en https://atmosphere.copernicus.eu/sites/default/files/2018-02/CAMS50_factsheet_201610_v2.pdf.
- Naik, V., Voulgarakis, A., Fiore, A.M., Horowitz, L.W., Lamarque, J.F., Lin, M., ... , Zeng, G. 2013. Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*, 5277-5298. <https://doi.org/10.5194/acp-13-5277-2013>
- Ricaud, P., Attié, J.L., Teyssède, H., ElAmraoui, L., Peuch, V.H., Matricardi, M., Schluessel, P. 2009. Equatorial total column of nitrous oxide as measured by IASI on MetOp-A: implications for transport processes, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*, 3947-3956. <https://doi.org/10.5194/acp-9-3947-2009>
- Ricaud, P., Sič, B., El Amraoui, L., Attié, J.L., Zbinden, R., Huszar, P., Szopa, S., Parmentier, J., Jaidan, N., Michou, M., Abida, R., Carminati, F., Hauglustaine, D., August, T., Warner, J., Imasu, R., Saitoh, N., Peuch, V.H. 2014. Impact of the Asian monsoon anticyclone on the variability of mid-to-upper tropospheric methane above the Mediterranean Basin, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*, 11427-11446. <https://doi.org/10.5194/acp-14-11427-2014>
- Rodgers, C., 2000. *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Praxis*, Singapore, World Scientific Publishing Co. <https://doi.org/10.1142/3171>
- Schneider, M., Hase, F. 2011. Optimal estimation of tropospheric H₂O and dD with IASI/METOP, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*, 11207-11220. <https://doi.org/10.5194/acp-11-11207-2011>
- Schneider, M., Wiegele, A., Barthlott, S., González, Y., Christner, E., Dyroff, C., García, O.E., Hase, F., Blumenstock, T., Sepúlveda, E., Mengistu Tsidu, G., Takele Kenea, S., Rodríguez, S., Andrey, J. 2016. Accomplishments of the MUSICA project to provide accurate, long-term, global and high-resolution observations of tropospheric {H₂O, δD} pairs – a review, *Atmospheric Measurement Techniques*, *9*, 2845-2875. <https://doi.org/10.5194/amt-9-2845-2016>
- Stockwell, W.R., Kirchner, F., Kuhn, M., Seefeld, S. 1997. A new mechanism for regional atmospheric chemistry modelling, *Journal Geophysics Research*, *102*, 25847-25879. <https://doi.org/10.1029/97JD00849>
- Teyssède, H., Michou, M., Clark, H.L., Josse, B., Karcher, F., Olivíe, D., Peuch, V.H., Saint-Martin, D., Cariolle, D., Attié, J.L., Nédélec, P., Ricaud, P., Thouret, V., van der A, R.J., Volz-Thomas, A., Chéroux, F. 2007. A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies: evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*, 5815-5860. <https://doi.org/10.5194/acp-7-5815-2007>
- Tikhonov, A.: On the solution of incorrectly stated problems and a method of regularization, *Dokl. Acad. Nauk SSSR*, *151*, 501-504, 1963.