

碳柱观测合作网络(COCCON)甲烷监测进展及其在中国的初步应用

涂倩思^{1,2}, 秦凯³, 鹿凡³

1. 同济大学 机械与能源工程学院, 上海 201804;

2. 卡尔斯鲁厄理工学院 气象与气候研究院, 德国 卡尔斯鲁厄 76344;

3. 中国矿业大学 环境与测绘学院, 徐州 221116

摘要: 地基遥感技术是监测大气温室气体柱浓度、校准卫星和研究碳源汇的有效手段。基于便携式傅里叶光谱仪EM27/SUN的碳柱观测合作网络(COCCON)可以作为全球碳柱总量观测网(TCCON)的有效补充。本文介绍了COCCON仪器线型函数ILS与开放路径测量方法、高精度反演算法PROFFAST, 展现了仪器的高稳定性和反演结果的较低的不确定性, 梳理总结了COCCON甲烷观测在卫星遥感反演验证、城市排放、煤矿区排放、畜牧业排放等方面的研究进展, 呈现了COCCON仪器在中国城市及煤矿区甲烷监测中的初步应用并展望了下一步需要研究的重点问题。

关键词: 温室气体, 地基遥感, 傅里叶变换光谱仪, EM27/SUN, 碳柱观测合作网络, 甲烷, 煤矿区排放

中图分类号: TP79/P4/P2

引用格式: 涂倩思, 秦凯, 鹿凡. 2024. 碳柱观测合作网络(COCCON)甲烷监测进展及其在中国的初步应用. 遥感学报, 28(8): 1955-1967

Tu Q S, Qin K and Lu Fan. 2024. Research progress on Collaborative Carbon Column Observing Network (COCCON) and prospects of its methane monitoring application in China. National Remote Sensing Bulletin, 28(8): 1955-1967 [DOI:10.11834/jrs.20243296]

1 引言

政府间气候变化专门委员会(IPCC)的第五次评估报告指出, 在20年尺度范围内, 甲烷(CH_4)的全球增温潜势(GWP, 即在地球大气中捕获热量的能力)是二氧化碳(CO_2)的84倍, 是全球第二大温室气体。甲烷的寿命仅有8—11年(约为 CO_2 的十分之一)。这意味着相较二氧化碳减排, 甲烷的减排能在短期内起到较好控制温度升高的效果, 是减缓温室效应的有力杠杆。此外, 甲烷还是对流层臭氧(O_3)的前体物(Abernethy等, 2021; Francoeur等, 2021), 其减排举措的实施也有利于降低空气污染。

从前工业时代到2020年, 全球大气中 CH_4 的平均含量增加了262%, 达到 (1889 ± 2) ppb (WMO,

2022)。由人类活动引起的甲烷来源包括化石燃料的生产和使用(如煤矿、天然气/石油开采)以及废物处理和农业, 总共约占 CH_4 总排放量的60% (Saunois等, 2020)。在实施“双碳”战略中重视甲烷排放问题, 将有助于提高中国的减排效果, 减少减排压力。2021年1月, 生态环境部印发《关于统筹和加强应对气候变化与生态环境保护相关工作的指导意见》, 提出在石油天然气、煤炭开采等重点行业试点开展甲烷排放监测。同年发布的“十四五”规划进一步明确表示, 要加大甲烷等其他非二氧化碳温室气体管控力度, 其中包括加强重点领域(如煤炭开采、农业、城市固体废弃物等)甲烷排放的监测、核算, 推动甲烷排放数据的收集和分析。

大气甲烷浓度观测方法主要分为直接探测和

收稿日期: 2023-07-12; 预印本: 2023-10-20

基金项目: 国家自然科学基金(编号:42305138); 山西省科技重大专项计划揭榜挂帅项目(编号:202101090301013)

第一作者简介: 涂倩思, 研究方向为温室气体观测和排放估计。E-mail: tuqiansi@tongji.edu.cn

通信作者简介: 秦凯, 研究方向为大气环境遥感与应用。E-mail: qinkai@cumt.edu.cn

遥感探测。其中直接探测又称为原位探测, 气体采样后利用气体分析仪器获得采样点的高精度测量数据, 提供小范围内的近地面或一定高度的甲烷气体浓度(车轲等, 2021)。卫星和地基遥感观测, 能够提供全球、区域及点源尺度的大气甲烷三维空间信息(陈泽青等, 2019; 刘毅等, 2021)。相较卫星遥感而言, 地基遥感的大气甲烷观测反演结果精度更好, 可用于校准和验证卫星观测反演, 特别是在点源及局域排放研究中具有优势(Wunch等, 2011a, 2011b; Buschmann等, 2016; Sha等, 2020)。

国际上可监测大气甲烷浓度的地基遥感网络主要是基于高分辨率傅里叶变换红外 FTIR (Fourier transform infrared) 光谱仪的大气成分变化观测网—红外工作组 NDACC-IRWG (Infrared Working Group of the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change, <https://www2.acom.ucar.edu/irwg>[2023-10-13]) 和碳柱总量观测网 TCCON (Total Carbon Column Observing Network, <http://www.tccon.caltech.edu/>[2023-10-13], Wunch等, 2011a)。两个观测网所使用的 FTIR 光谱仪, 体积庞大、价格昂贵、系统复杂, 建设和维护成本高, 使得其在全球分布稀少, 中国目前仅有合肥和香河两个 TCCON 站点(Liu等, 2023; Yang等, 2020)。近几年新兴的碳柱观测合作网络 COCCON 观测网络 (Collaborative Carbon Column Observing Network), 主要利用便携式 FTIR 光谱仪 (EM27/SUN) 对大气中温室气体浓度和排放展开研究(Frey等, 2019)。EM27/SUN 便携和低成本的优势使得其可以作为 TCCON 站点的有效补充, 特别是可通过联合使用多台仪器对区域温室气体排放进行观测研究, 如城市、畜牧业或煤矿区的甲烷排放(Hase等, 2015; Chen等, 2016; Viatte等, 2017; Vogel等, 2019; Luther等, 2019; Tu等, 2022)。

鉴于国内对 COCCON 的研究和报道较少, 本文在介绍 COCCON 的硬件构成、反演算法基础上, 基于 SCI 数据库, 以 EM27/SUN 和 COCCON 为关键词, 检索温室气体观测和排放估计等相关研究领域的文献, 重点梳理总结国际上使用 COCCON 在甲烷监测中的研究进展, 并介绍了 COCCON 在中国甲烷监测中的初步应用。

2 便携式 FTIR 光谱仪 EM27/SUN 与 COCCON 网络

2.1 便携式 FTIR 光谱仪

EM27/SUN 光谱仪是由德国卡尔斯鲁厄理工学院 KIT (Karlsruhe Institute of Technology) 与布鲁克光学公司 (Bruker Optics GmbH, Ettlingen, Germany) 合作开发的一款便携式 FTIR 光谱仪, 并于 2014 年春季正式推向市场。该仪器由尺寸 35 cm×40 cm×27 cm 的干涉仪和由成像反馈系统 (CamTracker) 控制的太阳追踪器 (Gisi等, 2011, 2012) 组成, 整体重量大约为 25 kg。EM27/SUN 采用 Bruker 公司的 RockSolid™ 摆式干涉仪, 带有两个独立的立体角镜耦合形成的双单摆和一个 CaF₂ 分光器。该干涉仪有效降低了热效应和机械振动带来的不利影响, 使其具有高信噪比和高稳定性的优势。

EM27/SUN 的光谱分辨率为 0.5 cm⁻¹ (对应的最大光程差为 1.8 cm), 近似于搭载在欧洲“哨兵 5 号”卫星上的 TROPOMI (TROPOspheric Monitoring Instrument) 传感器的光谱分辨率。光谱采集时间约为 58 s (以 10 KHz 扫描速度进行 10 次扫描的平均时间)。其使用直流耦合 InGaAs (indium gallium arsenide) 探测器和一个扩展的 InGaAs 探测器 (Hase等, 2016) 在 4000—11000 cm⁻¹ 波段范围对多种气体分子进行同期观测, 如 CO₂、CH₄、CO、H₂O、O₂、N₂O、HDO 等气体。双通道观测模式涵盖了 TCCON 和 TROPOMI 在反演 CO 和 CH₄ 的短波段所使用的相同光谱范围。正常情况下, EM27/SUN 可在 -20—40 °C 范围进行正常观测。

2.2 COCCON 网络

KIT 于 2016 年开始搭建基于便携式 FTIR 光谱仪 EM27/SUN 的碳柱观测合作网络 COCCON (Collaborative Carbon Column Observing Network, <https://www.imk-asf.kit.edu/english/COCCON.php> [2023-10-13]) (Frey等, 2019)。目前已有将近 100 台 EM27/SUN 被世界各地的研究团队用于温室气体研究, 如固定站点浓度观测、外场实验排放估算等, 部分信息见表 1 (相关信息和公开数据见: <https://www.imk-asf.kit.edu/english/3884.php> [2023-10-13])。目前, 研究区域主要集中在欧洲

和北美地区。从长期观测数据来看（如德国 Karlsruhe，希腊 Thessaloniki），XCH₄呈现逐年升高的趋势，且显示出明显的季节变化。北半球中纬度地区的甲烷浓度普遍比高纬度地区高，且亚洲都市（日本 Tsukuba）高于欧洲城市。

EM27/SUN（以下也称为 COCCON）在交付使

用前，均须在 KIT 进行严格、标准化的检查和校准（包括光学校准，仪器线型函数测量实验，与作为参考的一号 COCCON 结果进行交叉对比实验），从而提供近似于 TCCON 精度和准确度的气体柱浓度数据集（Alberti 等，2022a）。

表 1 部分 COCCON 站点进行连续观测及外场实验的相关信息

Table 1 Measurements on selected COCCON sites with continuous observations or field campaigns

站点	单位	EM27/SUN 序列号	经度/(°)	纬度/ (°)	观测时段	平均值±标准差/ ppm	观测方式
Gobabeb Namibia	GNRI	SN051	-23.56	15.04	2017-01-09—2021-04-21	1.82±0.02	连续观测
Karlsruhe Germany	KIT	SN037	49.10	8.44	2017-02-07—2021-09-25	1.85±0.02	连续观测
Kiruna Sweden	KIT/IRF	SN032	67.85	20.23	2017-03-09—2020-04-21	1.83±0.01	连续观测
Sodankylä Finland	FMI/KIT	SN039	67.42	26.59	2017-03-06—2020-06-02	1.83±0.01	连续观测
Thessaloniki Greece	AUTH	SN052	40.63	22.97	2019-02-14—2022-01-17	1.87±0.02	连续观测
Tsukuba Japan	NIES	SN063	36.05	140.12	2020-01-31—2020-12-25	1.88±0.01	连续观测
Arrival Heights Antarctica	NIWA	SN053	-77.83	166.66	2019-11-05—2020-03-09	1.74±0.01	外场实验
St.Petersburg Russia (EMME Campaign, Verify)	SPBU KIT	SN080 SN084	59.88	29.91	2019-03-21—2019-04-30	1.84±0.01	外场实验
St.Petersburg Russia	SPBU KIT	SN084	60.88	29.91	2019-01-22—2020-03-17	1.84±0.01	外场实验
Yekaterinburg (Sverdlovsk) Russia	SPBU KIT	SN080	56.83	60.61	2019-10-05—2020-04-17	1.86±0.01	外场实验

2.2.1 仪器线型函数和开放路径测量方法

仪器线性函数 ILS（Instrumental Line Shape）是评估仪器性能的一个重要指标。由于干涉测量偏差、光学畸变、不均匀照明或探测元件灵敏度等因素，造成 ILS 的实际值偏离理想值（Hase 等，1999）。使用错误的 ILS 值会增加反演结果中的系统误差，因此需要对其有精确的了解才能从观测结果中获得正确信息（Frey 等，2015）。ILS 参数主要包括调制效率振幅 MEA（Modulation Efficiency Amplitude）和相位误差 PE（Phase Error）。两个参数用于描述 ILS 与理想函数在形状上的偏差，其中 ME 表征 ILS 的宽度偏差，PE 量化 ILS 对称程度（Hase 等，1999）。ME 在反演结果不确定性上为最主要影响因子，ME 增加 0.5% 可使 XCO₂ 减少 0.025%，XCH₄ 增加 0.1%（Tu，2019；Alberti

等，2022a）。

不同于 TCCON 和 NDACC 采用的低压气室获得 ILS 的方法，COCCON 采用一种更加简单易行的开放路径测量方法。该方法借助外置光源（卤素灯），测量 7000—7400 cm⁻¹ 光谱波段内的水汽吸收谱线（Frey 等，2015），利用 LINEFIT 软件分析得到 ILS 参数（Hase 等，1999）。Alberti 等（2022a）将原有的开放路径测量法进行细化，扩展到用于观测 CO 的第二个观测通道，同时更新了水汽谱线列表，修订用于分析光谱的实验室气压测量。此外新设计了 C₂H₂ 气室测量方法，用于 ILS 校准。该文章中更新了 83 台 COCCON 仪器的 ILS 参数值，COCCON 网站也会对 ILS 参数进行更新（<https://amt.copernicus.org/articles/15/2433/2022/amt-15-2433-2022-supplement.pdf> [2023-10-13]）。

2.2.2 反演算法(PRE-PROCESS+PROFFSAST)

为了获得大气柱浓度,需要对FTIR光谱仪观测得到的干涉图进行预处理以生成光谱,其次对吸收光谱进行定量分析,反演得到目标气体总柱浓度。KIT在欧洲航天局(ESA)COCCON-PROCEEDS项目框架下,开发了预处理软件PRE-PROCESS,对从OPUS文件中读取出的干涉光谱(IFG)进行预处理。具体步骤如下:(1)首先计算出太阳位置,再对IFG进行直流DC(Direct Current)订正,以减少由于大量气溶胶或云遮盖导致的光源亮度波动SBF(Source Brightness Fluctuation)对IFG的影响(Keppel-Aleks等,2007);(2)但SBF校正不能完全抵消DC变化,特别是当IFG信号太弱,或是一次扫描中信号变化幅度过大时。因此需要对IFG进行质量控制,即滤去最低强度低于最大信号5%和强度波动超过10%的IFG;(3)利用Norton-Beer-Medium(NBM)切趾函数将DC订正后的IFG进行截取,以减少靠近每条谱线的旁瓣,得到可接受的分辨率(0.5 cm^{-1});(4)最后利用包括相位误差校正和重采样在内的快速傅立叶变换,将IFG转化为光谱数据。

KIT同时也开发了非线性最小二乘反演算法PROFFAST,是定量分析大气痕量气体的一款性能优化、用户界面友好的反演程序,与PRE-PROCESS共同构成COCCON数据处理链。PROFFAST反演程序包含两个部分:一是前向模型,是以最优估计算法为基础,利用大气辐射传输模式结合ILS、先验廓线、初始先验廓线缩放因子获得模拟光谱;二是后向反演,利用非线性最小二乘法通过迭代使得模拟光谱与实际测量光谱达到最优拟合,获得目标气体的廓线缩放因子,将缩放因子乘以先验廓线,再对廓线积分得到最终的气体总柱浓度。将目标气体的柱浓度除以干空气柱浓度即可转换为柱平均干空气摩尔分数(X_{gas})。 X_{gas} 也可借助同光谱反演得到的 O_2 柱浓度计算获得(Wunch等,2011a),具体计算公式如下:

$$X_{\text{gas}} = 0.2095 \times \frac{\text{column}_{\text{gas}}}{\text{column}_{\text{O}_2}} \quad (1)$$

式中,0.2095系数代表氧气的干空气摩尔混合比,并假定在空间和时间上是恒定的。 $\text{column}_{\text{gas}}$ 和 $\text{column}_{\text{O}_2}$ 代表目标气体和 O_2 的垂直柱浓度。该方法

可以抵消同时在目标气体和 O_2 中存在的仪器系统误差和反演相关的误差,提高 X_{gas} 反演精度,同时对地表压强依赖性降低,增加了不同地点间的可比性(Wunch等,2011a; Klappenbach等,2015; Frey等,2019,2021)。

PRE-PROCESS和PROFFAST代码均开源,且KIT对其进行不定期更新,目前已更新到PROFFASTv2.3版本(<https://www.imk-asf.kit.edu/english/3225.php>[2023-10-13])。KIT同时开发了基于python语言的自动化批量处理程序包proffastPylot(<https://gitlab.eudat.eu/coccon-kit/proffastpylot>[2023-10-13]),为COCCON数据处理提供更为快速简明的处理方式。

为了提升反演结果的准确度,还需要针对每台COCCON的反演结果(X_{CO_2} 、 X_{CH_4} 、 X_{CO})进行校准。理想情况下,不同仪器的性能一致,其观测的结果是相同的。然而仪器本身存在固有误差,同时ILS测量的不确定性和其他未能识别的影响因素,使得校准系数与理想值1相比会有微小偏差。COCCON网络使用固定的一台EM27/SUN(序列号:SN37)作为参照标准,通过同时同地观测(side-by-side measurement),对其他所有仪器的反演结果进行校准,获得对应气体的校准系数($K_{\text{gas}}^{\text{SN}}$):

$$X_{\text{gas}}^{\text{corr}} = K_{\text{gas}}^{\text{SN}} \times X_{\text{gas}}^{\text{unc}} \quad (2)$$

该系数在未来将会直接内嵌于数据处理程序中,无须额外对反演结果进行后期校准。

除了针对不同COCCON仪器的特定校准系数,还需要考虑全球范围内的校准,即COCCON数据结果校准达到TCCON尺度。TCCON数据结果已经通过大量的机载原位廓线观测实验,校准到世界气象组织尺度(Wunch等,2011a)。因此,COCCON数据后处理中使用一个由天顶角依赖订正因子ADCF(Airmass Dependent Correction Factor)和非天顶角依赖订正因子AICF(Airmass Independent Correction Factor)的组合经验公式对反演结果进行校准(详见:https://www.imk-asf.kit.edu/downloads/Coccon/2021-04-30_Instrument-Calibration.pdf[2023-10-13])。该校准已包含于COCCON反演程序的后处理中。

柱平均干空气量 X_{air} (column-averaged amount of dry air)是另外一个衡量仪器稳定性的重要指标。不同于 X_{gas} , X_{air} 的计算方式并没有把仪器的系

统误差进行抵消, 因此 X_{air} 的突然变化可以作为仪器操作或反演流程上有错误行为的表现, 例如, 太阳追踪器指向错误、仪器光学对准错误、地表压强观测错误或观测时间错误等(Wunch 等, 2015; Frey 等, 2021)。短期外场试验中, X_{air} 可以直接用作仪器性能指标参数, 不需额外进行ILS测量实验。

$$X_{\text{air}} = \frac{0.2095}{\text{column}_{\text{O}_2} \times \bar{\mu}} \times \left(\frac{P_s}{g} - \text{column}_{\text{H}_2\text{O}} \times \mu_{\text{H}_2\text{O}} \right) \quad (3)$$

式中, g 为柱平均重力加速度, P_s 为地表压强, $\bar{\mu}$ 和 $\mu_{\text{H}_2\text{O}}$ 分别为干空气和水汽相对分子质量, $\text{column}_{\text{O}_2}$ 和 $\text{column}_{\text{H}_2\text{O}}$ 分别为氧气和水汽柱浓度。

2.2.3 高稳定性和高精度特征

ILS作为表征COCCON仪器性能重要参数, 当ILS参数偏离理想值较大时, 需要对仪器进行重新检测, 如校准、更换光学或机械元件等。在一定时间内测量ILS参数, 或是当COCCON仪器用于外场试验时, 会经过长途运输, 同时在试验期间也会多次移动, 通过比较运输前和运输后的ILS值, 可以判断仪器性能是否正常。Frey 等(2019)展示了参考EM27/SUN (SN37)在4年内的MEA变化(0.9862 ± 0.0015), 检验过的30台仪器的ILS平均值为0.9851 (标准偏差=0.0078), 均显示出很好的稳定性。

Hedelius 等(2016)利用TCCON作为观测参照, 定量研究了COCCON反演结果在长时间内的鲁棒性, XCO_2 的 1σ 精度为0.075%, XCH_4 的 1σ 精度为0.057%, 此外该仪器在频繁搬运和运输后仍保持了良好的光学对准和稳定性。基于COCCON仪器便携、稳定的特点, Hedelius 等(2017)借助两台COCCON仪器, 进一步分析研究了美国4个TCCON站点间反演结果 X_{gas} 的误差范围及其原因, 并提出相应的误差减少方案。Frey 等(2019)通过对COCCON与TCCON的4年长期交叉对比分析, 虽然存在微小漂移, 但COCCON仪器仍具有长期高稳定性和高准确度的优势。Sha 等(2020)分析比较了4种不同便携式光谱仪的反演结果与TCCON的全年差异, 露天观测的COCCON显示出高稳定性, 其反演结果仅有微小的偏差。此外通过COCCON与TCCON对比, 检测出TCCON探测器反应的非线性问题, 显示出COCCON具备作为TCCON的旅行标准校验的潜力。Tu 等研究发

现(2020), 使用精确的先验廓线, 可以提升COCCON反演结果准确度, 也显示出COCCON与TCCON结果的差异主要来自于不同仪器的光谱分辨率。Ohyama 等(2020)对比了COCCON与飞机廓线(下降过程)观测实验结果, XCO_2 和 XCH_4 都显示出非常好的相关性, 同时长途运输对反演结果的影响与其不确定范围相当。

3 COCCON 甲烷监测研究进展

基于COCCON的移动便携性、高稳定性, 以及反演结果精确度高的特点, 已有许多学者将其用于研究不同区域范围内的大气温室气体浓度时空变化和定量排放(图1)。本文重点关注COCCON在甲烷监测中的应用。

3.1 卫星遥感甲烷反演验证

Klappenbach 等(2015)对COCCON太阳追踪器的软件和硬件进行调整改进后, 将其搭载于德国研究船Polarstern上, 从2014年3月开始在大西洋上开展为期6周的观测实验, 反演得到的 XCH_4 与GOSAT卫星产品和CAMS模型数据的偏差大部分情况下低于0.02 ppm。2015年COCCON在Namibia Gobabeb开始为期5年的长期观测实验, 是非洲地区首个FTIR观测站, 为非洲、特别是具备高反照率特征的沙漠地区的温室气体研究提供了非常重要的研究基础和数据库; 同时通过对比在不同高反照率地区(砾石平原和沙漠)GOSAT卫星不同增益通道的反演结果与COCCON的差异性, 显示出COCCON适用于不同高反照率地区的卫星校准(Frey 等, 2021)。基于近北极圈内2017年—2019年的长期观测, 本文作者将COCCON与TROPOMI反演产品以及模型数据进行对比, 显示出COCCON可用于研究区域甲烷源汇以及校验卫星观测结果的能力(Tu 等, 2020)。从2019年1月起, 在希腊第二大城市Thessaloniki建立了COCCON固定观测站点, 基于两年的观测结果, TROPOMI产品与COCCON有-0.07%偏差(Mermigkas 等, 2021)。Alberti 等(2022b)对比了俄罗斯高纬度区两个城市的COCCON和多个卫星(TROPOMI、OCO-2、GOSAT及MUSICA IASI)观测结果以及模型数据, 提出了基于模型数据的插值法以提高COCCON数据集的时间分辨率。2021年6月, Wei 等(2022)在中国敦煌戈壁沙漠地区开展了为期

3周的地基观测实验, 卫星产品 (GOSAT、GOSAT-2 和 TROPOMI) 与 COCCON 观测得到的 XCH_4 都有

很好的相关性, 偏差率约为-0.38%。

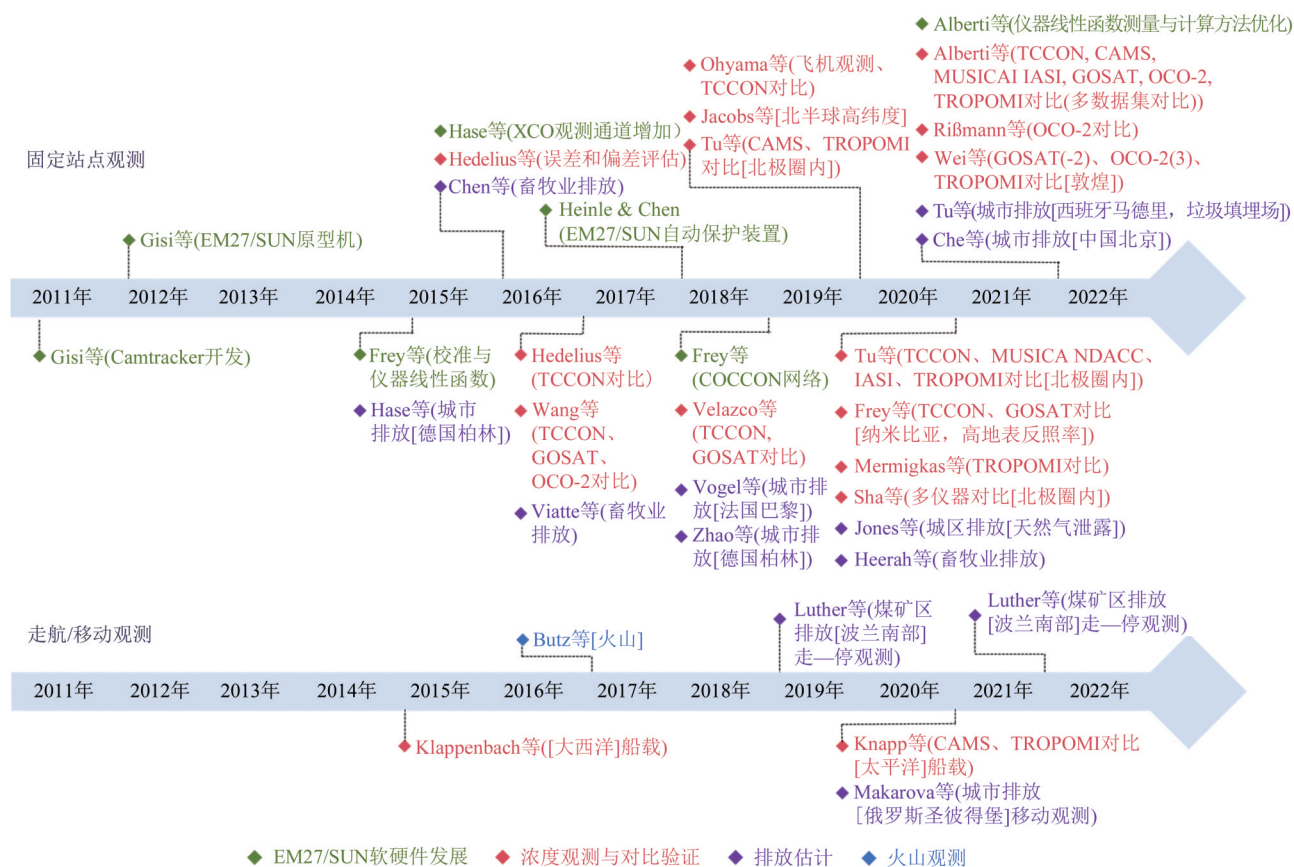


图1 检索2011年—2022年SCI数据库获得的COCCON相关文献总结

Fig. 1 COCCON related literature summary based on SCI databases in 2011–2022

3.2 城市(垃圾填埋场、点源)甲烷排放反演

2014年, COCCON被首次应用于研究城市(德国柏林)温室气体排放, 5台COCCON被放置于城市周边, 采用了一种简单的扩散模型估计城市碳排放强度(Frey等, 2015; Hase等, 2015)。Zhao等(2019)利用包含GHG模块的中尺度WRF模型(WRF-GHG), 同时结合差分柱浓度测量法(见3.4节)重新处理了柏林观测数据, 以1 km的高分辨率模拟柏林城市 CH_4 的吸收、排放和传输。

Makarova等(2021)根据每日风向, 将两台COCCON分别放置于上风向下风向区域, 使用质量守恒方法, 研究了俄罗斯圣彼得堡城市区域的温室气体排放, 得到的甲烷排放量比官方数据高了一个数量级。德国慕尼黑啤酒节, 使用了大量的天然气用于做饭和取暖, Chen等(2020)利用COCCON观测结果与高斯烟羽扩散模型相结合的方式, 表明啤酒节的 CH_4 排放除了人类活动的生

物排放以外, 化石燃料的 CH_4 排放(如不完全燃烧或天然气泄漏)很有可能是另外一个潜在的重要 CH_4 来源。城市垃圾填埋场也是 CH_4 排放的一个显著来源, 本文作者(Tu等, 2021)结合地基遥感(5台COCCON联合观测)和卫星遥感(TROPOMI)数据, 基于均一扩散模型, 将模拟值与实际观测值进行拟合, 估算了西班牙马德里地区3个垃圾填埋场的甲烷排放总量, 结果显示官方排放清单被低估。

3.3 煤矿区甲烷排放反演

COCCON仪器的稳定性和便携性特点使得其非常适用于走航(走停)观测。2015年, Butz等(2017)首次将一台COCCON光谱仪放置于卡车上, 与一台紫外光栅光谱仪共同组成移动观测平台, 在火山口下风向几公里处进行为期3周的走航观测, 从COCCON观测光谱中反演得到羽流成分中的氟化氢(HF)和氯化氢(HCL)浓度。Luther

等(2019)同样将一台 COCCON 置于卡车上, 在波兰南部的煤矿产区, 位于排放井下风向 1—3 km 处的羽流进行走航观测。通过观测羽流横断面方向上 XCH_4 的浓度变化, 结合多谱勒测风雷达获得大气边界层中的风场和湍流的时空变化信息, 借助横截面通量方法估算该煤矿区的甲烷排放。除了走航观测, 在实验阶段, 4 台 COCCON 仪器被放置于研究区域外围, 距离中心大概 50 km 的 4 个方位上, 作为固定观测站。Luther 等(2022)进一步研究该区域的甲烷排放, 首先利用 3 台多谱勒测风雷达观测的垂直风廓信息对数值天气预报和大气研究工具 WRF (Weather Research and Forecasting) 得到的模型数据进行同化。通过研究位于上下风向两台 COCCON 的实际观测差值 ΔXCH_4 与基于拉格朗日离子扩散模型 (FLEXPART) 模拟出的从排放井释放的粒子轨迹的差异性, 利用 Phillips-Tikhonov 正则化的逆向估计方法估算出甲烷排放量。

3.4 畜牧业甲烷排放反演

Chen 等(2016)首次提出差分柱浓度测量法 DCM (Differential Column Methodology), 并将其应用在美国加利福尼亚农村排放。该方法基于研究

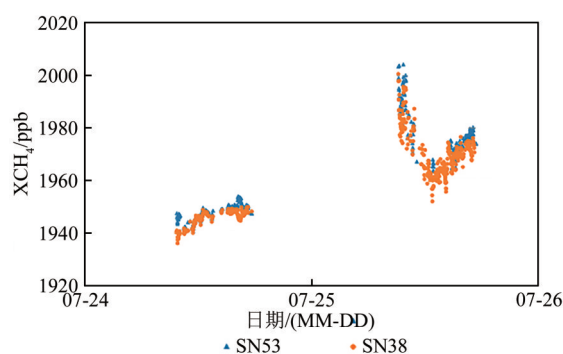
区域内 XCH_4 在上下风向的差值, 估测出该区域的 CH_4 排放, 其结果与其他自下而上源排放估计结果相一致。Viatte 等(2017)将 4 台 COCCON 放置在美国洛杉矶盆地农村周边, 结合 $13/12\text{CH}_4$ 同位素原位观测 (Picarro), 利用高分辨率大气传输模型和 WRF-LES (Large-Eddy Simulation) 气象场模拟估算该区域的畜牧业甲烷排放。Heerah 等(2021)同样利用 4 台 COCCON 对加利福尼亚州位于圣华金河谷的畜牧业甲烷排放进行观测, 基于 WRF-STILT 模型, 进行自上而下的排放反演, 估算该地区 CH_4 排放量。

4 COCCON 在中国甲烷监测中的初步应用

2022 年 7 月开始, 同济大学联合中国矿业大学与 KIT 在国内开展了为期半年的观测实验。为了确保 COCCON 观测结果的精确度, 两台 COCCON 首先在江苏徐州中国矿业大学文昌校区进行了两天的同时同地校准观测。两台仪器观测的 XCH_4 具有高度相似性, 平均比值为 0.9996 (图 2)。结果显示, 两台仪器在经过长途运输, 仍旧保持良好的性能, 体现出高稳定性。两日平均 XCH_4 含量分别为 (1946.6 ± 3.0) ppb, (1977.3 ± 9.7) ppb。



(a) 在徐州进行同时同地校准实验观测的两台 COCCON
(a) Side-by-side measurements for two COCCONs in Xuzhou



(b) 2022-07-24—2022-07-25, 甲烷观测日变化
(b) Diurnal XCH_4 observations during July 24–25, 2022

图 2 两台 COCCON 在徐州的观测

Fig. 2 Measurements of two COCCONs in Xuzhou

4.1 城市区域甲烷观测

大气中甲烷排放主要来自于人类活动, 城市排放几乎占据了 20%。精确观测城市甲烷含量, 是了解其季节变化和估算城市甲烷排放的重要基础。

2022 年 10 月, 两台 COCCON 被分别放置于中

国矿业大学文昌校区和潘安湖区域, 用于观测两地的大气甲烷含量 (图 3)。前者位于徐州市中心以南约 5 km。后者位于距市中心 20 km 的东北方向, 原为采煤塌陷区, 后改造为湿地公园。10 月 14 和 17 日, 两地在下午和中午都观测到 XCH_4 峰值。位于潘安湖的仪器虽然远离市区, 但靠近湿

地,湿地作为甲烷排放的一个重要自然源,使得该地的甲烷观测值与位于文昌校区的观测值接近(平均偏差:4.6 ppb),甚至在10月17日中午略高于文昌校区(2.3 ppb)。位于潘安湖的观测,在下午四点左右有显著的 XCH_4 再升高,很可能是由于白天产生的甲烷,由于水体热分层阻碍了湍流运动,被限制在水面下,当温度降低时,可以通过对流湍流混合重新释放到大气中(Godwin等,2013)。

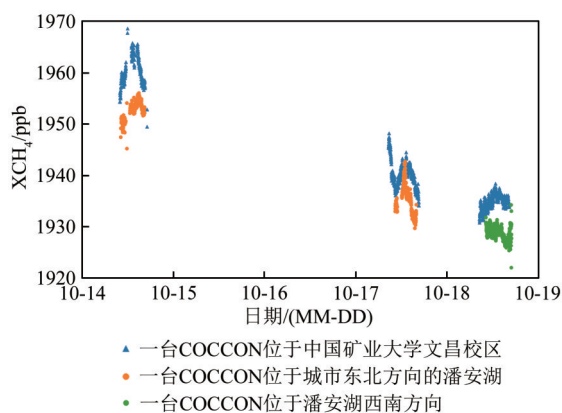


图3 徐州观测的 XCH_4 随时间变化图

Fig. 3 Temporal XCH_4 observations in Xuzhou

4.2 煤矿区甲烷观测

煤炭开采行业是中国 CH_4 排放的主要来源,因受到地质赋存、开采方式、利用情况等众多因素影响,煤矿区的 CH_4 排放时空变化性极强,为定量核算其排放带来困难(刘艳秋等,2022)。COCCON仪器具有高时间频次观测和便携式的优点,有望在中国煤矿甲烷监测中发挥重要作用。为此,本文作者团队于2022年8—9月份在山西长治煤矿区使用两台COCCON仪器开展了煤矿甲烷观测实验,并与涡度协方差通量观测系统、高光谱成像仪、便携式温室气体分析仪等仪器开展了对比分析。初步分析表明:与欧洲同类观测相比,本实验所在的煤矿区的甲烷浓度显著偏高且与不同煤矿的开采差异性密切相关,进一步的研究结果正在准备发表中。

5 结 语

当前,基于便携式傅里叶光谱仪EM27/SUN构建的碳柱观测合作网络(COCCON)已在全球范围内被用于甲烷浓度观测、排放估算和卫星遥感验证。本文主要介绍了COCCON的仪器线型函

数ILS、开放路径测量方法及高精度反演算法PROFFAST,呈现了COCCON仪器在中国城市及煤矿区甲烷监测的初步应用。

相较于固定的TCCON观测网络,COCCON在具有可比拟的观测精度,且可以便携地用于点源甲烷排放监测,可以在中国的高分五号02星高光谱成像仪(李飞等,2023)及未来准备发射的星载甲烷传感器(姚璐等,2022)的验证中发挥重要作用。同时,相较于地面原位观测技术(Shi等,2023),EM27/SUN通过观测地面到大气层顶的甲烷柱总浓度,可以更真实地反演中国煤炭开采、油气开采、垃圾填埋和污水处理等行业的甲烷排放。

鉴于当前COCCON网络主要应用在欧美地区,针对我国的复杂排放源、高浓度污染场景,亟需发展本土化的EM27/SUN甲烷排放地基遥感反演技术,重点需要考虑排放溯源模型中的扩散与传输双重效应(例如多个煤矿排放之间的相互扩散影响)及气溶胶—大气边界层相互作用下的复杂大气边界层变化影响(Huang等,2023)。

志 谢 感谢卡尔斯鲁厄理工学院(KIT)地基遥感团队(BOD)提供相关数据以及对实验的指导与支持。

参考文献(References)

- Abernethy S, O'Connor F M, Jones C D and Jackson R B. 2021. Methane removal and the proportional reductions in surface temperature and ozone. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 379(2210): 20210104 [DOI: 10.1098/rsta.2021.0104]
- Alberti C, Hase F, Frey M, Dubravica D, Blumenstock T, Dehn A, Castrocane P, Surawicz G, Harig R, Baier B C, Bès C, Bi J R, Boesch H, Butz A, Cai Z N, Chen J, Crowell S M, Deutscher N M, Ene D, Franklin J E, García O, Griffith D, Grouiez B, Grutter M, Hamdouni A, Houweling S, Humpage N, Jacobs N, Jeong S, Joly L, Jones N B, Jouglet D, Kivi R, Kleinschek R, Lopez M, Medeiros D J, Morino I, Mostafavipak N, Müller A, Ohyama H, Palmer P I, Pathakoti M, Pollard D F, Raffalski U, Ramonet M, Ramsay R, Sha M K, Shiomi K, Simpson W, Stremme W, Sun Y W, Tanimoto H, Té Y, Tsidu G M, Velazco V A, Vogel F, Watanabe M, Wei C, Wunch D, Yamasoe M, Zhang L and Orphal J. 2022a. Improved calibration procedures for the EM27/SUN spectrometers of the COllaborative Carbon Column Observing Network (COCCON). *Atmospheric Measurement Techniques*, 15(8): 2433-2463

- [DOI: 10.5194/amt-15-2433-2022]
- Alberti C, Tu Q S, Hase F, Makarova M V, Gribanov K, Foka S C, Zakharov V, Blumenstock T, Buchwitz M, Diekmann C, Ertl B, Frey M M, Imhasin H K, Ionov D V, Khosrawi F, Osipov S I, Reuter M, Schneider M and Warneke T. 2022b. Investigation of spaceborne trace gas products over St Petersburg and Yekaterinburg, Russia, by using COllaborative Column Carbon Observing Network (COCCON) observations. *Atmospheric Measurement Techniques*, 15(7): 2199-2229 [DOI: 10.5194/amt-15-2199-2022]
- Buschmann M, Deutscher N M, Sherlock V, Palm M, Warneke T and Notholt J. 2016. Retrieval of xCO₂ from ground-based mid-infrared (NDACC) solar absorption spectra and comparison to TC-CO₂. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(2): 577-585 [DOI: 10.5194/amt-9-577-2016]
- Butz A, Dinger A S, Bobrowski N, Kostinek J, Fieber L, Fischerkeller C, Giuffrida G B, Hase F, Klappenbach F, Kuhn J, Lübcke P, Timpitz L and Tu Q S. 2017. Remote sensing of volcanic CO₂, HF, HCl, SO₂, and BrO in the downwind plume of Mt. Etna. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10(1): 1-14 [DOI: 10.5194/amt-10-1-2017]
- Che K, Cai Z N, Liu Y, Wu L, Yang D X, Chen Y C, Meng X Y, Zhou M Q, Wang J, Yao L and Wang P C. 2022. Lagrangian inversion of anthropogenic CO₂ emissions from Beijing using differential column measurements. *Environmental Research Letters*, 17(7): 075001 [DOI: 10.1088/1748-9326/ac7477]
- Che K, Liu Y, Cai Z N, Yang D X, Wang H B and Zhu S H. 2021. Review of atmospheric greenhouse gas observation and application based on portable Fourier transform infrared spectrometer. *Remote Sensing Technology and Application*, 36(1): 44-54 (车轲, 刘毅, 蔡兆男, 杨东旭, 王海波, 朱思虹. 2021. 便携式傅里叶变换红外光谱仪在大气温室气体观测中的应用进展. 遥感技术与应用, 36(1): 44-54) [DOI: 10.11873/j.issn.1004-0323.2021.1.0044]
- Chen J, Dietrich F, Maazallahi H, Forstmaier A, Winkler D, Hofmann M E G, Denier van der Gon H and Röckmann T. 2020. Methane emissions from the Munich Oktoberfest. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(6): 3683-3696 [DOI: 10.5194/acp-20-3683-2020]
- Chen J, Viatte C, Hedelius J K, Jones T, Franklin J E, Parker H, Gottlieb E W, Wennberg P O, Dubey M K and Wofsy S C. 2016. Differential column measurements using compact solar-tracking spectrometers. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(13): 8479-8498 [DOI: 10.5194/acp-16-8479-2016]
- Chen Z Q, Liu C, Hu Q H, Hong Q Q, Liu H R, Xing C Z and Su W J. 2019. Remote sensing monitoring methods and applications of atmospheric constituents. *Advances in Earth Science*, 34(3): 255-264 (陈泽青, 刘诚, 胡启后, 洪茜茜, 刘浩然, 邢成志, 苏文静. 2019. 大气成分的遥感监测方法与应用. 地球科学进展, 34(3): 255-264) [DOI: 10.11867/j.issn.1001-8166.2019.03.0255]
- Francoeur C B, McDonald B C, Gilman J B, Zarzana K J, Dix B, Brown S S, de Gouw J A, Frost G J, Li M, McKeen S A, Peischl J, Pollack I B, Ryerson T B, Thompson C, Warneke C and Trainer M. 2021. Quantifying methane and ozone precursor emissions from oil and gas production regions across the contiguous US. *Environmental Science and Technology*, 55(13): 9129-9139 [DOI: 10.1021/acs.est.0c07352]
- Frey M, Hase F, Blumenstock T, Groß J, Kiel M, Mengistu Tsidu G, Schäfer K, Sha M K and Orphal J. 2015. Calibration and instrumental line shape characterization of a set of portable FTIR spectrometers for detecting greenhouse gas emissions. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8(7): 3047-3057 [DOI: 10.5194/amt-83047-2015]
- Frey M, Sha M K, Hase F, Kiel M, Blumenstock T, Harig R, Surawicz G, Deutscher N M, Shiomi K, Franklin J E, Bösch H, Chen J, Grutter M, Ohyama H, Sun Y W, Butz A, Mengistu Tsidu G, Ene D, Wunch D, Cao Z S, Garcia O, Ramonet M, Vogel F and Orphal J. 2019. Building the COllaborative Carbon Column Observing Network (COCCON): long-term stability and ensemble performance of the EM27/SUN Fourier transform spectrometer. *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(3): 1513-1530 [DOI: 10.5194/amt-12-1513-2019]
- Frey M M, Hase F, Blumenstock T, Dubravica D, Groß J, Götsche F, Handjaba M, Amadhila P, Mushi R, Morino I, Shiomi K, Sha M K, de Mazière M and Pollard D F. 2021. Long-term column-averaged greenhouse gas observations using a COCCON spectrometer at the high-surface-albedo site in Gobabeb, Namibia. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(9): 5887-5911 [DOI: 10.5194/amt-14-5887-2021]
- Gisi M, Hase F, Dohe S and Blumenstock T. 2011. Camtracker: a new camera controlled high precision solar tracker system for FTIR-spectrometers. *Atmospheric Measurement Techniques*, 4(1): 47-54 [DOI: 10.5194/amt-4-47-2011]
- Gisi M, Hase F, Dohe S, Blumenstock T, Simon A and Keens A. 2012. XCO₂-measurements with a tabletop FTS using solar absorption spectroscopy. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(11): 2969-2980 [DOI: 10.5194/amt-5-2969-2012]
- Godwin C M, McNamara P J and Markfort C D. 2013. Evening methane emission pulses from a boreal wetland correspond to convective mixing in hollows. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 118(3): 994-1005 [DOI: 10.1002/jgrg.20082]
- Hase F, Blumenstock T and Paton-Walsh C. 1999. Analysis of the instrumental line shape of high-resolution Fourier transform IR spectrometers with gas cell measurements and new retrieval software. *Applied Optics*, 38(15): 3417-3422 [DOI: 10.1364/AO.38.003417]
- Hase F, Frey M, Blumenstock T, Groß J, Kiel M, Kohlhepp R, Mengistu Tsidu G, Schäfer K, Sha M K and Orphal J. 2015. Application of portable FTIR spectrometers for detecting greenhouse gas emissions of the major city Berlin. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8(7): 3059-3068 [DOI: 10.5194/amt-8-3059-2015]
- Hase F, Frey M, Kiel M, Blumenstock T, Harig R, Keens A and Orphal J. 2016. Addition of a channel for XCO observations to a portable

- FTIR spectrometer for greenhouse gas measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(5): 2303-2313 [DOI: 10.5194/amt-2303-2016]
- Hedelius J K, Parker H, Wunch D, Roehl C M, Viatte C, Newman S, Toon G C, Podolske J R, Hillyard P W, Iraci L T, Dubey M K and Wennberg P O. 2017. Intercomparability of XCO₂ and XCH₄ from the United States TCCON sites. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10(4): 1481-1493 [DOI: 10.5194/amt-10-1481-2017]
- Hedelius J K, Viatte C, Wunch D, Roehl C M, Toon G C, Chen J, Jones T, Wofsy S C, Franklin J E, Parker H, Dubey M K and Wennberg P O. 2016. Assessment of errors and biases in retrievals of XCO₂, XCH₄, XCO, and XN₂O from a 0.5 cm⁻¹ resolution solar-viewing spectrometer. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(8): 3527-3546 [DOI: 10.5194/amt-9-3527-2016]
- Heerah S, Frausto-Vicencio I, Jeong S, Marklein A R, Ding Y F, Meyer A G, Parker H A, Fischer M L, Franklin J E, Hopkins F M and Dubey M. 2021. Dairy methane emissions in California's San Joaquin valley inferred with ground-based remote sensing observations in the summer and winter. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 126(24): e2021JD034785 [DOI: 10.1029/2021JD034785]
- Huang X, Ding K, Liu J Y, Wang Z L, Tang R, Xue L, Wang H K, Zhang Q, Tan Z M, Fu C B, Davis S J, Andreae M O and Ding A J. 2023. Smoke-weather interaction affects extreme wildfires in diverse coastal regions. *Science*, 379(6631): 457-461 [DOI: 10.1126/science.add9843]
- Jacobs N, Simpson W R, Wunch D, O'Dell C W, Osterman G B, Hase F, Blumenstock T, Tu Q S, Frey M, Dubey M K, Parker H A, Kivi R and Heikkinen P. 2020. Quality controls, bias, and seasonality of CO₂ columns in the boreal forest with Orbiting Carbon Observatory-2, Total Carbon Column Observing Network, and EM27/SUN measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 13(9): 5033-5063 [DOI: 10.5194/amt-13-5033-2020]
- Jones T S, Franklin J E, Chen J, Dietrich F, Hajny K D, Paetzold J C, Wenzel A, Gately C, Gottlieb E, Parker H, Dubey M, Hase F, Shepson P B, Mielke L H and Wofsy S C. 2021. Assessing urban methane emissions using column-observing portable Fourier transform infrared (FTIR) spectrometers and a novel Bayesian inversion framework. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(17): 13131-13147 [DOI: 10.5194/acp-21-13131-2021]
- Keppel-Aleks G, Toon G C, Wennberg P O and Deutscher N M. 2007. Reducing the impact of source brightness fluctuations on spectra obtained by Fourier-transform spectrometry. *Applied Optics*, 46(21): 4774-4779 [DOI: 10.1364/AO.46.004774]
- Kille N, Chiu R, Frey M, Hase F, Sha M K, Blumenstock T, Hannigan J W, Orphal J, Bon D and Volkamer R. 2019. Separation of methane emissions from agricultural and natural gas sources in the Colorado front range. *Geophysical Research Letters*, 46(7): 3990-3998 [DOI: 10.1029/2019GL082132]
- Klappenbach F, Bertleff M, Kostinek J, Hase F, Blumenstock T, Agustí-Panareda A, Razinger M and Butz A. 2015. Accurate mobile remote sensing of XCO₂ and XCH₄ latitudinal transects from aboard a research vessel. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8(12): 5023-5038 [DOI: 10.5194/amt-8-5023-2015]
- Knapp M, Kleinschek R, Hase F, Agustí-Panareda A, Inness A, Barré J, Landgraf J, Borsdorff T, Kinne S and Butz A. 2021. Shipborne measurements of XCO₂, XCH₄, and XCO above the Pacific Ocean and comparison to CAMS atmospheric analyses and S5P/TROPOMI. *Earth System Science Data*, 13(1): 199-211 [DOI: 10.5194/essd-13-199-2021]
- Kumar P, Broquet G, Yver-Kwok C, Laurent O, Gichuki S, Caldow C, Cropley F, Lauvaux T, Ramonet M, Berthe G, Martin F, Duclaux O, Juery C, Bouchet C and Ciais P. 2021. Mobile atmospheric measurements and local-scale inverse estimation of the location and rates of brief CH₄ and CO₂ releases from point sources. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(9): 5987-6003 [DOI: 10.5194/amt-14-5987-2021]
- Li F, Sun S W, Zhang Y G, Feng C X, Chen C H, Mao H Q and Liu Y N. Mapping methane super-emitters in China and United States with GF5-02 hyperspectral imaging spectrometer. *National Remote Sensing Bulletin* (李飞, 孙世玮, 张永光, 封晨曦, 陈翠红, 毛慧琴, 刘银年. 高分五号02星高光谱成像仪中美典型甲烷超级排放源遥感反演与分析. 遥感学报) [DOI: 10.11834/jrs.20232453]
- Liu C, Sun Y W, Shan C G, Wang W, Notholt J, Palm M, Yin H, Tian Y, Gao J X and Mao H Q. 2023. Long-term observations of atmospheric constituents at the first ground-based high-resolution Fourier-transform spectrometry observation station in China. *Engineering*, 22: 201-214 [DOI: 10.1016/j.eng.2021.11.022]
- Liu Y, Wang J, Che K, Cai Z N, Yang D X and Wu L. 2021. Satellite remote sensing of greenhouse gases: progress and trends. *National Remote Sensing Bulletin*, 25(1): 53-64 (刘毅, 王婧, 车轲, 蔡兆男, 杨东旭, 吴林. 温室气体的卫星遥感—进展与趋势. 遥感学报, 25(1): 53-64) [DOI: 10.11834/jrs.20210081]
- Liu Y Q, Qin K, Cohen B J, Kang H S, Hu W, Lu F, Wu X H and Yang C L. 2022. Analysis of the characteristics of methane in the coal mining area of southeastern Shanxi with eddy and mobile observation. *Journal of China Coal Society*, 47(12): 4395-4402 (刘艳秋, 秦凯, Cohen B J, 康涵书, 胡玮, 鹿凡, 武晓晖, 杨成立. 2022. 基于涡动及走航观测的晋东南煤矿区甲烷分布特征. 煤炭学报, 47(12): 4396-4402) [DOI: 10.13225/j.cnki.jccs.PE22.1241]
- Luther A, Kleinschek R, Scheidweiler L, Defratyka S, Stanisavljevic M, Forstmaier A, Dandoci A, Wolff S, Dubravica D, Wildmann N, Kostinek J, Jöckel P, Nickl A L, Klausner T, Hase F, Frey M, Chen J, Dietrich F, Nęcki J, Swolkień J, Fix A, Roiger A and Butz A. 2019. Quantifying CH₄ emissions from hard coal mines using mobile sun-viewing Fourier transform spectrometry. *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(10): 5217-5230 [DOI: 10.5194/amt-12-5217-2019]
- Luther A., Kostinek J., Kleinschek R., Defratyka S., Stanisavljević M.,

- Forstmaier A., Dandoci A., Scheidweiler L., Dubravica D., Wildmann N., Hase F., Frey M. M., Chen J., Dietrich F., Nęcki J., Swolkień J., Knot C., Vardag S. N., Roiger A., and Butz A. 2022. Observational constraints on methane emissions from Polish coal mines using a ground-based remote sensing network, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22, 5859-5876 [https://doi.org/10.5194/acp-22-5859-2022, 2022]
- Makarova M V, Alberti C, Ionov D V, Hase F, Foka S C, Blumenstock T, Warneke T, Virolainen Y A, Kostsov V S, Frey M, Poberovskii A V, Timofeyev Y M, Paramonova N N, Volkova K A, Zaitsev N A, Biryukov E Y, Osipov S I, Makarov B K, Polyakov A V, Ivakhov V M, Imhasin H K and Mikhailov E F. 2021. Emission Monitoring Mobile Experiment (EMME): an overview and first results of the St. Petersburg megacity campaign 2019. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(2): 1047-1073 [DOI: 10.5194/amt-14-1047-2021]
- Mermigkas M, Topaloglou C, Balis D, Koukouli M E, Hase F, Dubravica D, Borsdorff T and Lorente A. 2021. FTIR measurements of greenhouse gases over Thessaloniki, Greece in the framework of COCCON and comparison with S5P/TROPOMI observations. *Remote Sensing*, 13(17): 3395 [DOI: 10.3390/rs13173395]
- Ohyama H, Morino I, Velasco V A, Klausner T, Bagtasa G, Kiel M, Frey M, Hori A, Uchino O, Matsunaga T, Deutscher N M, DiGangi J P, Choi Y, Diskin G S, Pusede S E, Fiehn A, Roiger A, Lichtenstern M, Schlager H, Wang P K, Chou C C K, Andrés-Hernández M D and Burrows J P. 2020. Validation of XCO₂ and XCH₄ retrieved from a portable Fourier transform spectrometer with those from in situ profiles from aircraft-borne instruments. *Atmospheric Measurement Techniques*, 13(10): 5149-5163 [DOI: 10.5194/amt-13-5149-2020]
- Rißmann M, Chen J, Osterman G, Dietrich F, Makowski M, Zhao X X, Hase F and Kiel M. 2022. Comparison of OCO-2 target observations to MUCCnet – Is it possible to capture urban XCO₂ gradients from space?. *Atmospheric Measurement Techniques*, 15 (22): 6605-6623 [DOI: 10.5194/amt-15-6605-2022]
- Saunio M, Stavert A R, Poulter B, Bousquet P, Canadell J G, Jackson R B, Raymond P A, Dlugokencky E J, Houweling S, Patra P K, Ciais P, Arora V K, Bastviken D, Bergamaschi P, Blake D R, Brailsford G, Bruhwiler L, Carlson K M, Carrol M, Castaldi S, Chandra N, Crevoisier C, Crill P M, Covey K, Curry C L, Etiope G, Frankenberg C, Gedney N, Hegglin M I, Höglund-Isaksson L, Hugelius G, Ishizawa M, Ito A, Janssens-Maenhout G, Jensen K M, Joos F, Kleinen T, Krummel P B, Langenfelds R L, Laruelle G G, Liu L C, Machida T, Maksyutov S, McDonald K C, McNorton J, Miller P A, Melton J R, Morino I, Müller J, Murguía-Flores F, Naik V, Niwa Y, Noce S, O'Doherty S, Parker R J, Peng C H, Peng S S, Peters G P, Prigent C, Prinn R, Ramonet M, Regnier P, Riley W J, Rosentreter J A, Segers A, Simpson I J, Shi H, Smith S J, Steele L P, Thornton B F, Tian H Q, Tohjima Y, Tubiello F N, Tsuruta A, Viovy N, Voulgarakis A, Weber T S, van Weele M, van der Werf G R, Weiss R F, Worthy D, Wunch D, Yin Y, Yoshida Y, Zhang W X, Zhang Z, Zhao Y H, Zheng B, Zhu Q, Zhu Q A and Zhuang Q L. 2020. The global methane budget 2000-2017. *Earth System Science Data*, 12(3): 1561-1623 [DOI: 10.5194/essd-12-1561-2020]
- Sha M K, De Mazière M, Notholt J, Blumenstock T, Chen H L, Dehn A, Griffith D W T, Hase F, Heikkinen P, Hermans C, Hoffmann A, Huebner M, Jones N, Kivi R, Langerock B, Petri C, Scolas F, Tu Q S and Weidmann D. 2020. Intercomparison of low- and high-resolution infrared spectrometers for groundbased solar remote sensing measurements of total column concentrations of CO₂, CH₄, and CO. *Atmospheric Measurement Techniques*, 13(9): 4791-4839 [DOI: 10.5194/amt-13-4791-2020]
- Shi T Q, Han G, Ma X, Mao H Q, Chen C H, Han Z Y, Pei Z P, Zhang H W, Li S W and Gong W. 2023. Quantifying factory-scale CO₂/CH₄ emission based on mobile measurements and EMISSION-PARTITION model: cases in China. *Environmental Research Letters*, 18(3): 034028 [DOI: 10.1088/1748-9326/acbce7]
- Tu Q S. 2019. Observation of Atmospheric Greenhouse Gas Abundances on Regional Scales in Boreal Areas Using Portable FTIR Spectrometers. Karlsruhe: Karlsruher Institut für Technologie (KIT) [DOI: 10.5445/IR/1000095901]
- Tu Q S, Hase F, Blumenstock T, Kivi R, Heikkinen P, Sha M K, Raffalski U, Landgraf J, Lorente A, Borsdorff T, Chen H L, Dietrich F and Chen J. 2020. Intercomparison of atmospheric CO₂ and CH₄ abundances on regional scales in boreal areas using Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) analysis, Collaborative Carbon Column Observing Network (COCCON) spectrometers, and Sentinel-5 Precursor satellite observations. *Atmospheric Measurement Techniques*, 13(9): 4751-4771 [DOI: 10.5194/amt-13-4751-2020]
- Tu Q S, Hase F, Blumenstock T, Schneider M, Schneider A, Kivi R, Heikkinen P, Ertl B, Diekmann C, Khosrawi F, Sommer M, Borsdorff T and Raffalski U. 2021. Intercomparison of arctic XH₂O observations from three ground-based Fourier transform infrared networks and application for satellite validation. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(3): 1993-2011 [DOI: 10.5194/amt-14-1993-2021]
- Tu Q S, Hase F, Schneider M, García O, Blumenstock T, Borsdorff T, Frey M, Khosrawi F, Lorente A, Alberti C, Bustos J J, Butz A, Carreño V, Cuevas E, Curcoll R, Diekmann C J, Dubravica D, Ertl B, Estruch C, León-Luis S F, Marrero C, Morgui J A, Ramos R, Scharun C, Schneider C, Sepúlveda E, Toledano C and Torres C. 2022. Quantification of CH₄ emissions from waste disposal sites near the city of Madrid using ground- and space-based observations of COCCON, TROPOMI and IASI. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(1): 295-317 [DOI: 10.5194/acp-22-295-2022]
- Viatte C, Lauvaux T, Hedelius J K, Parker H, Chen J, Jones T, Franklin J E, Deng A J, Gaudet B, Verhulst K, Duren R, Wunch D, Roehl C, Dubey M K, Wofsy S and Wennberg P O. 2017. Methane emis-

- sions from dairies in the Los Angeles Basin. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(12): 7509-7528 [DOI: 10.5194/acp-17-7509-2017]
- Vogel F R, Frey M, Stauffer J, Hase F, Broquet G, Xueref-Remy I, Chevallier F, Ciais P, Sha M K, Chelin P, Jeseck P, Janssen C, Té Y, Groß J, Blumenstock T, Tu Q S and Orphal J. 2019. XCO₂ in an emission hot-spot region: the COCCON Paris campaign 2015. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(5): 3271-3285 [DOI: 10.5194/acp-19-3271-2019]
- Wang W, Tian Y, Liu C, Sun Y W, Liu W Q, Xie P H, Liu J G, Xu J, Morino I, Velasco V A, Griffith D W T, Notholt J and Warneke T. 2017. Investigating the performance of a greenhouse gas observatory in Hefei, China. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10(7): 2627-2643 [DOI: 10.5194/amt-10-2627-2017]
- Wei C, Lyu Z, Bu L B and Liu J Q. 2022. Occurrence and discrepancy of surface and column mole fractions of CO₂ and CH₄ at a desert site in Dunhuang, Western China. *Atmosphere*, 13(4): 571 [DOI: 10.3390/atmos13040571]
- World Meteorological Organization. 2022. State of the Global Climate 2021 (WMO-No. 1290) [EB/OL] https://library.wmo.int/doc_num.php?explnum_id=11178
- Wunch D, Toon G C, Blavier J F L, Washenfelder R A, Notholt J, Connor B J, Griffith D W T, Sherlock V and Wennberg P O. 2011a. The total carbon column observing network. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 369(1943): 2087-2112 [DOI: 10.1098/rsta.2010.0240]
- Wunch D, Toon G C, Sherlock V, Deutscher N M, Liu C, Feist D G and Wennberg P O. 2015. The Total Carbon Column Observing Network's GGG 2014 Data Version. CaltechDATA. [<https://doi.org/10.14291/TCCON.GGG2014.DOCUMENTATION.R0/1221662>]
- Wunch D, Wennberg P O, Toon G C, Connor B J, Fisher B, Osterman G B, Frankenberg C, Mandrake L, O'Dell C, Ahonen P, Biraud S C, Castano R, Cressie N, Crisp D, Deutscher N M, Eldering A, Fisher M L, Griffith D W T, Gunson M, Heikkinen P, Keppel-Aleks G, Kyrö E, Lindenmaier R, Macatangay R, Mendonca J, Messerschmidt J, Miller C E, Morino I, Notholt J, Oyafuso F A, Rettinger M, Robinson J, Roehl C M, Salawitch R J, Sherlock V, Strong K, Sussmann R, Tanaka T, Thompson D R, Uchino O, Warneke T and Wofsy S C. 2011b. A method for evaluating bias in global measurements of CO₂ total columns from space. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(23): 12317-12337 [DOI: 10.5194/acp-11-12317-2011]
- Yang Y, Zhou M Q, Langerock B, Sha M K, Hermans C, Wang T, Ji D H, Vigouroux C, Kumps N, Wang G C, De Mazière M and Wang P C. 2020. New ground-based Fourier-transform near-infrared solar absorption measurements of XCO₂, XCH₄ and XCO at Xianghe, China. *Earth System Science Data*, 12(3): 1679-1696 [DOI: 10.5194/essd-12-1679-2020]
- Yao L, Yang D X, Cai Z N, Zhu S H, Liu Y, Deng J B, Tian L F, Yin Z S and Lu N M. 2022. Status and trend analysis of atmospheric methane satellite measurement for carbon neutrality and carbon peaking in China. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 46(6): 1469-1483 (姚璐, 杨东旭, 蔡兆男, 朱思虹, 刘毅, 邓剑波, 田龙飞, 尹增山, 卢乃锰. 2022. 面向我国碳中和、碳达峰的大气甲烷观测卫星现状与发展趋势分析. *大气科学*, 46(6): 1469-1483) [DOI: 10.3878/j.issn.1006-9895.2207.22096]
- Zhao X X, Marshall J, Hachinger S, Gerbig C, Frey M, Hase F and Chen J. 2019. Analysis of total column CO₂ and CH₄ measurements in Berlin with WRF-GHG. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(17): 11279-11302 [DOI: 10.5194/acp-19-11279-2019]

Research progress on Collaborative Carbon Column Observing Network (COCCON) and prospects of its methane monitoring application in China

TU Qiansi^{1,2}, QIN Kai³, LU Fan³

1. Tongji University, School of Mechanical Engineering, Shanghai 201804, China;

2. Karlsruhe Institute of Technology, Institute of Meteorology and Climate Research, Karlsruhe 76344, Germany;

3. China University of Mining and Technology, School of Environment and Spatial Informatics, Xuzhou 221116, China

Abstract: Ground-based remote sensing technology is an effective tool for monitoring atmospheric greenhouse gas column concentrations to calibrate satellites and study carbon sinks. The COllaborative Carbon Column Observing Network (COCCON) is a global network of portable Fourier transform infrared (FTIR) spectrometers EM27/SUN and is compact and mobile. The COCCON instrument is appropriate for field campaigns and for long-term deployment at a site which effectively complements the Total Carbon Column Observing Network (TCCON). In addition, its excellent robust and reliable characteristics have been demonstrated in several successful field campaigns. Karlsruhe Institute of Technology (KIT) conducts optimization by subjecting each unit to an expert performance assessment and fine-tuning. KIT also calibrates it in reference to the EM27/SUN spectrometer utilized at KIT and the TCCON site in Karlsruhe. KIT, as part of European Space Agency initiatives, has developed open-source and freely accessible codes for processing and analyzing COCCON measurement

spectra.

In this study, we introduce the Instrumental Line Shape (ILS), which is a critical factor for obtaining precise information from measurements. The ILS parameters can be derived by conducting an open-path observation of a few meters of lab air. In addition, the high-precision inversion algorithm called PROFFAST is proposed. This algorithm is designed for the retrieval of column-averaged dry-air mole fractions of gas (X_{gas}). This work also presents various studies on satellite validation and methane emission from urban areas, coal mines, and livestock using COCCON methane observations. Furthermore, we provide preliminary applications of COCCON instruments in monitoring methane levels within urban region (Xuzhou) and coal mining region (Shanxi) in China. Initial analyses have revealed that methane concentrations in the coal mines under study in China surpass those observed in European contexts. These elevated concentrations are closely related to variations in mining activities in different coal mines. Subsequent findings are currently being prepared for further publication.

Considering that the COCCON network is mainly applied in western countries, developing region-specific ground-based remote sensing inversion techniques is necessary for assessing EM27/SUN methane emissions in China. This urgency stems from the complex nature of emission sources and high-concentration pollution scenarios unique to China. Two different aspects should be considered: dual influences of diffusion and transport, such as mutual diffusion effects among multiple coal mine emissions; the effects of complex atmospheric boundary layer changes under aerosol – atmospheric boundary layer interactions.

Key words: greenhouse gases, ground-based remote sensing, fourier transform infrared spectrometer, EM27/SUN, COCCON, methane, coal mine emissions

Supported by National Natural Science Foundation of China (No. 42305138); Shanxi Provincial Science and Technology Major Special Programs Project (No. 202101090301013)