

引用格式: Che Ke, Liu Yi, Cai Zhaonan, *et al.* Review of Atmospheric Greenhouse Gas Observation and Application based on Portable Fourier Transform Infrared Spectrometer [J]. Remote Sensing Technology and Application, 2021, 36(1): 44-54. [车轲, 刘毅, 蔡兆男, 等. 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 [J]. 遥感技术与应用, 2021, 36(1): 44-54.]

doi: 10.11873/j.issn.1004-0323.2021.1.0044

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

车轲^{1,2}, 刘毅^{1,2}, 蔡兆男^{1,2}, 杨东旭^{1,2}, 王海波^{1,2}, 朱思虹^{1,2}

(1. 中国科学院大气物理研究所, 中层大气与全球环境探测重点实验室, 北京 100029;

2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 大气温室气体柱浓度地基遥感观测是碳监测卫星验证和校正的有效手段, 目前主要依赖于昂贵且移动困难的高分辨率傅里叶变换红外光谱仪(120/125 HR)。采用便携式较低光谱分辨率(0.5cm⁻¹)傅里叶变换红外光谱仪(EM27/SUN)进行温室气体柱浓度的监测提供了一种新型的便捷手段。EM27/SUN通过自带的太阳跟踪器记录太阳直射辐射光谱, 根据温室气体在短波红外波段存在明显吸收线的原理, 利用非线性最小二乘算法PROFFIT和GGG反演柱气体平均干空气摩尔分数 X_{gas} 。通过高精度反演算法反演后得到的数据具有较高精度和高稳定性, 具备进行科学应用的条件。EM27/SUN在国际上的科学应用主要总结为3类: 烟羽成分浓度测量、卫星验证以及城市尺度源汇估算。重点讨论了EM27/SUN相比于其他观测手段的优势及带来的创新性结果。展望了未来EM27/SUN可以用于国内外各种特殊点的气体羽流分析、卫星数据验证和城市源汇分析工作, 还可以用于不同TCCON站点的传递定标。

关键词: 温室气体柱浓度; 傅里叶变换红外光谱仪; 科学应用

中图分类号: P407 **文献标志码:** A **文章编号:** 1004-0323(2021)01-0044-11

1 引言

2018年10月, IPCC发布的《全球升温1.5℃特别报告》指出将全球变暖限制在1.5℃以内, 可以避免一系列气候变化影响^[1]。人类排放的直接温室气体(如CO₂、CH₄、N₂O等)和间接温室气体(如CO等)是导致全球变暖和气候变化的主要原因之一。温室气体浓度的监测方法主要分为本底原位测量、地基和空基遥感观测。

原位测量主要是利用置于载体(如高塔、飞机、无人机等)上的气体采样设备(如Flask瓶^[2]、Aircore长管下投探空设备^[3]等)收集气体, 利用气体分析仪

(Picarro分析仪^[4]、Li-cor红外分析仪^[5-6]等)分析所收集气体, 得到高精度碳浓度数据。该方法可以长时间连续记录高精度数据, 并可以通过垂直气体采样实现廓线探测。但是, 原位测量结果仅能代表采样处小范围的温室气体浓度, 且易受到大气垂直运动和近地面动力传输的影响。

遥感探测手段记录的整层大气的气体平均干空气摩尔分数(X_{gas}), X_{gas} 虽然对大气垂直及近地面传输不敏感, 可以代表相对较大区域的温室气体浓度, 且 X_{gas} 的水平梯度与区域尺度通量有更直接的关系, 是源汇分布研究的重要约束^[7]。

遥感探测手段主要分为卫星观测和地基观测。

收稿日期: 2019-11-01; 修订日期: 2020-12-25

基金项目: 中国科学院战略性先导科技专项(XDA17010102), 国家自然科学基金项目(41875043), 中国科学院青年创新促进会项目。

作者简介: 车轲(1995-), 女, 江西南昌人, 硕士研究生, 主要从事地基大气温室气体遥感方面的研究。E-mail: cheke@mail.iap.ac.cn

通讯作者: 蔡兆男(1983-), 男, 吉林榆树人, 副研究员, 主要从事大气成分遥感和原位探测研究。E-mail: caizhaonan@mail.iap.ac.cn

卫星观测自上而下利用短波红外和热红外波段探测由地面反射到卫星探测器辐射能量,耦合地表模式及云气溶胶探测,定量反演 X_{gas} 。地基遥感观测自下而上探测经过大气后测得的太阳直射光谱,利用大量温室气体在短波红外光谱区域有特征吸收线求测量光谱与已知的参考太阳光谱差值计算 X_{gas} ,可以直接与卫星观测反演结果对比。大气成分变化探测网络—红外工作组 NDACC-IRWG (the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change - the Infrared Working Group)^[8] 和全球碳柱浓度观测网 TCCON (the Total Carbon Column Observing Network)^[9-10] 是国际上两种主要地基傅里叶变换红外光谱仪 (FTS, Fourier Transform Infrared Spectrometer) 网络,是卫星观测和其他地基观测定标的参考以及碳源汇研究的可靠数据来源。表 1 就主要监测气体、FTS 仪器、反演算法以及先验廓线的选择方面总结了 NDACC-IRWG 和 TCCON 的差异,并展示了二者对 CH_4 和 CO 采用的不同反演波段。NDACC-IRWG 在全球有 33 个站点,主要利用阳光直射测量中红外 (MIR, Mid-Infrared) 以及紫外和可见光吸收光谱监测 O_3 、 HNO_3 、 HF 、 HCl 、 CO 、 CH_4 、 N_2O 、 $ClONO_2$ 、 HCN 、 C_2H_6 等气体浓度。TCCON 由加州理工学院 2004 年开始建立,目前全球分布 26 个站点。所有 TCCON 站点都使用由德国著名的 FTS 制造公司 Bruker Optics 制造的高分辨率 (小于 0.02 cm^{-1}) Bruker 光学 TM 红外傅里叶变换光谱仪 (IFS) 120/125 HR 为主的观测设备。120/125 HR 利用太阳短波红外吸收光谱反演 CO_2 、 CH_4 、 H_2O 、 O_2 、 HDO 、 HF 、 CO 、 N_2O 等气体的柱浓度,并利用原位测量校准, CO_2 探测精度可达 0.25% (小于 1 ppmv)^[11]。但是 TCCON 站在全球分布稀少、价格昂贵且维护复杂,于是 Thorlab 公司光谱分析仪 OSA (0.16 cm^{-1})^[12]、光纤法布里—珀罗干涉仪 (Fiber Fabry-Perot interferometer)^[13]、Bruker Optics™ 公司 IFS 66 (0.11 cm^{-1})^[14]、125 M (0.02 cm^{-1})^[15]、Vertex 70 (0.16 cm^{-1})^[16]、RAL 公司 Mini-LHR (Laser Heterodyne Radiometer) (0.002 cm^{-1})^[17] 等其他小型温室气柱浓度测量仪上市并用于温室气体监测的科学研究。但是上述仪器都在实验室中工作,都需要配合外接前置光学系统才可接收分析太阳光谱,这大大增加了安装和移动难度。

2014 年 KIT 和 Bruker Optics 公司共同推出了

表 1 NDACC-IRWG 和 TCCON 的区别

特性	NDACC	TCCON
主要监测气体	O_3 , HNO_3 , HF , HCl , CO , CH_4 , N_2O , $ClONO_2$, HCN , C_2H_6 等	CO_2 、 CH_4 、 H_2O 、 O_2 、 HDO 、 HF 、 CO 、 N_2O 等
主要 FTS	Bruker 120/125 HR; Bruker 120M; Bomen DA8; 气体垂直廓线; 气体柱浓度	Bruker 120/125 HR 气体柱浓度
反演算法	SFIT/PROFFIT	GGG
先验廓线	WACCM	TCCON 先验廓线生成程序
CH_4 反演波段 (cm^{-1})	2 611.6~2 613.35 2 613.7~2 615.4 2 835.55~2 835.8 2 903.82~2 903.925 2 941.51~2 942.22	5 872.0~5 988.0 5 996.45~6 007.55 6 007.0~6 145.0
CO 反演波段 (cm^{-1})	2 057.7~2 058.0 2 069.56~2 069.76 2 157.5~2 159.15	4 208.7~4 257.3 4 262.0~4 318.8

一种自带太阳跟踪器^[18]的便携式红外傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN, 以下简称 EM27。EM27 光谱分辨率小于 0.5 cm^{-1} (对应最大光程差 1.8 cm), 是利用 InGaAs (Indium Gallium Arsenide) 和一个扩展的 InGaAs 探测器^[19] 稳定探测 $4\ 000\sim 11\ 000\text{ cm}^{-1}$ 波段光谱信息以精确反演 CO_2 、 CH_4 、 H_2O 、 O_2 、 CO 、 N_2O 、 HDO 等气体的柱浓度。另外, EM27 还可以反演气溶胶的光学厚度^[20]。由于 TCCON 站在全球分布稀少、价格昂贵且维护困难, 于是经济的便携式光谱仪 EM27 成为其有效的补充。但是同时, EM27 也有其自身的局限性。其一是 EM27 无法实现自动化观测, 易受风雨天气影响。针对这一缺点, 一种新型的太阳跟踪自动保护外壳被设计用来保护 EM27, 使其在各种天气条件下成功进行了无人监管的观测^[21-22]。其二是太阳跟踪器上金制反射镜随着时间的衰减会致其对太阳光谱的反射效果减弱, 长期维护这一易耗品会增加经常性的成本和工作量^[23]。其三是 EM27 的光谱分辨率和覆盖波段有限, 因此无法实现廓线遥感探测且可监测气体种类受限。

本文首先总结了 EM27 基本原理和反演算法。EM27 的高精度、高稳度特性使其具有进一步科学应用的条件, 再进一步概述了 EM27 在烟羽成分测量、卫星验证及区域尺度温室气体排放估计的

应用。

2 EM27的高精度和高稳定性

2.1 EM27观测原理

Gisi等^[24]对EM27的构造及基本应用做了详细整体的介绍。EM27是在晴天条件下连续采集太阳吸收光谱,为避免遮挡而多放置于楼顶(见图1)。在PC端利用CamTracker软件控制太阳跟踪器,OPUS软件记录并查看测量光谱。EM27所接受的辐射可以由比尔朗博定律表示:

$$I_{EM27} = I_0 e^{-\tau} \quad (1)$$

其中: I_0 为大气顶太阳光谱, τ 为大气光学厚度, I_{EM27} 为经过大气传输后到达EM27观测点的太阳光谱。温室气体在红外波段有明显吸收线,反演 CO_2 、 CH_4 、 H_2O 、 CO 的光谱窗口分别是6 183.0~6 390.0、5 897.0~6 145.0、8 353.4~8 463.1、4 208.7~4 318.8 cm^{-1} 。



图1 北京EM27光谱仪观测

Fig.1 The EM27 observation in Beijing

2.2 反演算法

图3展示了对EM27采用的反演算法的流程图。首先,对干涉图预处理:①质量控制;②DC(Direct Current)订正;③切趾、快速傅里叶变换、相函数订正。质量控制是滤去强度波动超过10%和强度低于最大信号范围的10%的干涉图。DC订正是一种对傅里叶红外光谱仪记录的直流干涉图进行低通滤波,使干涉图所有区域具有均匀的强度的

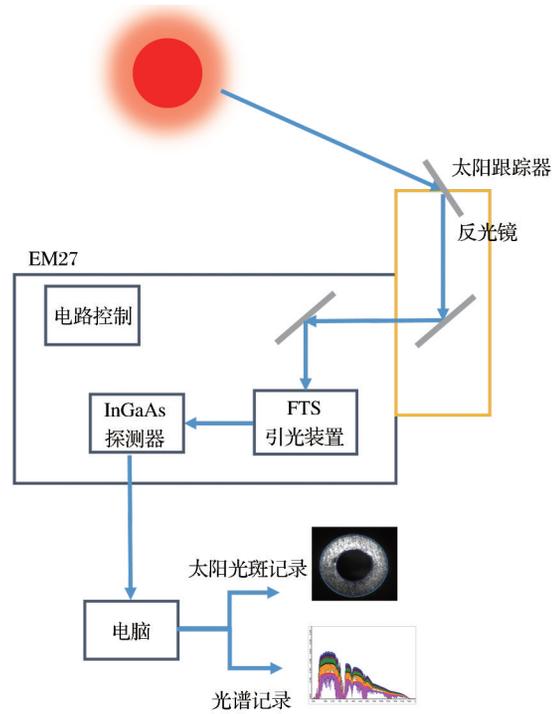


图2 EM27的光程图

Fig.2 The optical path diagram of EM27

重加权算法,可以减小由于云、气溶胶及仪器视线遮挡导致的光源亮度波动对干涉图的影响^[25]。再利用NBM(Norton-Beer Medium)切趾函数截取干涉图以减少靠近每条谱线的旁瓣^[26],最后利用快速傅里叶变换(FFT, Fast Fourier Transform)^[27]将干涉图转化为光谱数据。相位误差是光谱仪测得的干涉图经过傅里叶变换后的光谱与真实光谱图之间的相位之差,具体的相位订正方法有Mertz乘法^[28-29]、Forman卷积法^[30]等。

根据当日的气压、温度以及各种大气成分的先验廓线精确计算气体的吸收截面,具体分为5步:①获取先验廓线;②大气垂直分布离散化处理;③计算柱干空气分子数;④光路模拟、计算吸收截面。气体的先验廓线信息可来自CIRA-86(COSPAR International Reference Atmosphere)^[31]、WACCM(Whole Atmosphere Community Climate Model)^[32-34]、GGG等经验模型或是ACE-FTS(the Atmospheric Chemistry Experiment Fourier transform spectrometer)^[12]等观测反演资料。接着将大气分层,并从先验廓线中提取对应层数的信息。为了计算干空气柱数密度,假定大气水平均匀流体静力学平衡的条件下,计算每层干空气的总分子数。光路在大气中传播会发生折射,光路通常不沿直线,而是沿着曲线,在大气光路模拟中局部曲率由大气折

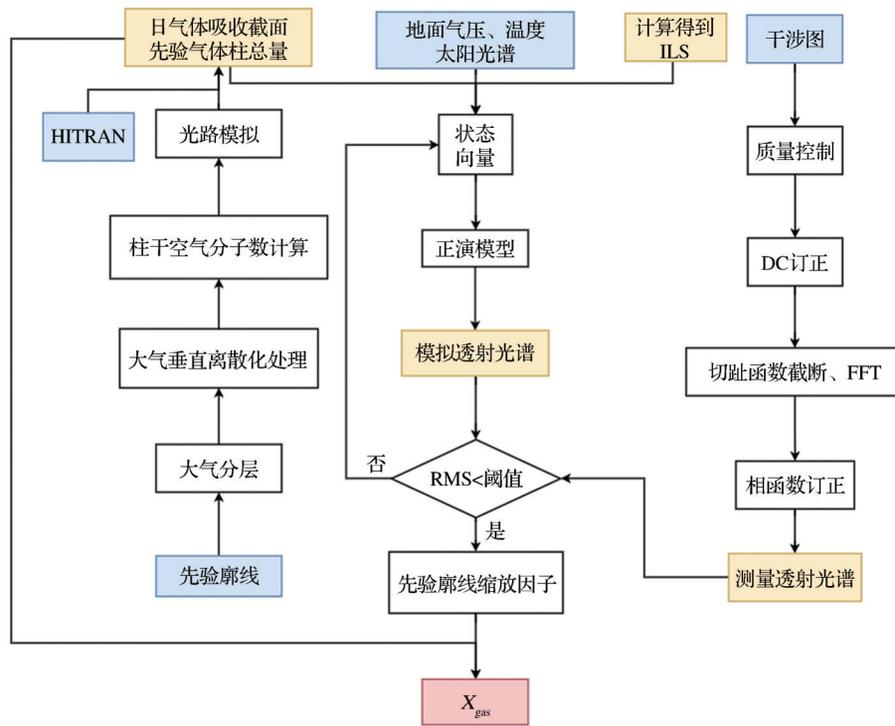


图 3 反演算法流程图

Fig.3 The flow chart of retrieval algorithm

射率的梯度决定,因此需要计算光路经过每一层大气对应的折射角和路径^[35]。使用 HITRAN 数据库提供相关分子谱线参数,并采用 Voigt 线型,利用逐线积分法计算分子的吸收截面,进而可以算出每一层每一种气体的光学厚度。在特定太阳天顶角下利用前面得到的每层折射角及路径对每层光学厚度积分,得到每种气体的柱总光学厚度。

最后一步是利用前两步得到的光谱和气体吸收截面求最终反演状态量。①计算仪器线型函数 ILS (Instrumental line shape);②太阳光谱的多普勒订正;③正演过程;④反演过程;⑤后处理。仪器测得光谱应为原始光谱与 ILS 的卷积,ILS 计算误差会带来系统偏差。当地球公转时,地球和太阳会存在相对位移,这会造成多普勒位移偏差,于是需要对太阳光谱进行多普勒订正,以保证光谱反演的准确性。正反演的流程是建立在最优估计方法论基础^[36]之上的。正演过程是利用假定的状态向量 \vec{f} (ILS、气体日吸收截面、先验廓线、初始先验廓线缩放因子等)模拟光谱 \vec{S}_m ,见公式(2)。

$$\vec{S}_m = \vec{S}(\vec{f}) \quad (2)$$

$$\vec{f}^{i+1} = \vec{f}^i + (A^i T A^i)^{-1} \quad (3)$$

反演过程则是将计 \vec{S}_m 与测量光谱对比计算残差,若残差较大,则更新开始假定的状态向量(见公

式(3))重新模拟光谱直至残差 RMS 小于某阈值(图 4)。得到先验廓线缩放因子后,再对廓线积分得到最终的气体柱总量。最后,将反演得到的气体柱总量(Column gas)和干空气柱总量(Column air)之比即为最终的 X_{gas} 。其中干空气柱总量是由中心波长在 7885 cm^{-1} 处反演的 O_2 柱总量(假定 O_2 的干空气摩尔分数恒定为 20.05%)得到(见公式(3)),通过两种气体柱总量之比这一方法计算 X_{gas} 可以降低系统误差且无需水汽柱浓度校正表面压力^[10]。最后一步则是后处理,主要分为天顶角订正和 X_{air} 计算。对大多数气体来说,由于日出或日落时光路较长,受气溶胶等因素衰减影响较大,因此中午测

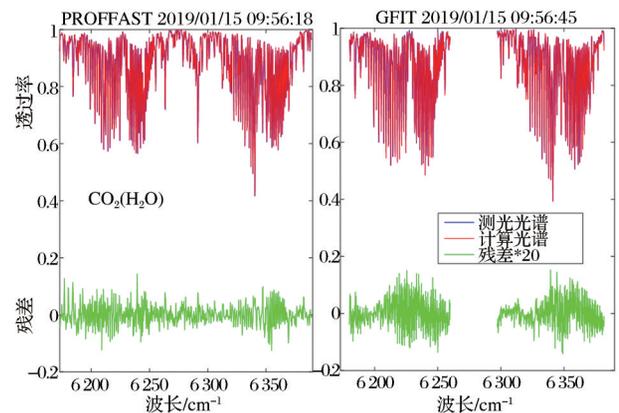


图 4 PROFFIT 和 GGG 迭代拟合结果对比图

Fig.4 The iterative fitting results of PROFFIT and GGG

得的 X_{gas} 比日出或日落时系统地偏大。针对此特点,后处理中利用一个由经验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)组成的经验公式实现天顶角订正,以减小由于光路长对反演结果的影响。 X_{air} (见公式(3))为柱平均干空气摩尔分数,理想情况下为1,是判断仪器稳定的重要指标之一^[37]。公式(4)中 P_s 为地面气压, μ_{H_2O} 为水汽相对分子质量、 $\bar{\mu}$ 为干空气相对分子质量。

$$X_{gas} = \frac{\text{Column gas}}{\text{Column air}} = 0.2095 \frac{\text{Column gas}}{\text{Column O}_2} \quad (4)$$

$$X_{air} = \frac{0.2095}{\text{Column O}_2 \cdot \bar{\mu}} \left(\frac{P_s}{g} - \text{Column H}_2\text{O} \cdot \mu_{H_2O} \right) \quad (5)$$

PROFFIT v9.6^[38-40]和GGG2014^[41]是目前主要用于处理EM27光谱数据的两种成熟的非线性最小二乘反演算法,这两种算法反演结果存在一定偏差^[42]。偏差可能源于两种算法的主要区别:①ILS计算模型(包括对非理想ILS的考虑);②光谱反演通道;③先验廓线;④HITRAN吸收线版本;⑤O₂吸收中碰撞诱导吸收效应(CIA, Collision-induced absorption)处理;⑥天顶角订正经验方法等。

2.3 EM27稳定性和精度

判断EM27在一定时间内或移动后是否稳定,主要通过检验ILS参数、 X_{air} 值、与120/125 HR交叉对比的比例系数R这3个参数是否稳定来判断。而判断EM27是否有高数据质量,则是根据其

125HR交叉对比的偏差大小及比例系数或原位测量手段校准的比例系数。一般EM27会多次移动用于野外观测,因此通过比较上述参数在试验前后的一致性,可以验证仪器在试验期间的稳定性。

ILS参数指的是调制解调效率(ME, Modulation Efficiency)以及相函数误差(PE, Phase Error),它们的改变会使反演结果产生系统偏差,二者的稳定代表仪器的稳定。国际上主要采用Frey等^[43]方法测量ILS参数。这种方法具体是利用一个稳定标准的卤素光源作为EM27输入,测量空气中强水汽吸收带(7 000~7 400 cm⁻¹),再使用LINEFIT^[44-45]反演ILS参数。2.1节中已提到 X_{air} 是判断仪器稳定的指标之一, X_{air} 的不稳定通常表现为在仪器操作或反演流程上有错误行为。120/125 HR是TCCON站采用的高光谱分辨率FTS,表2详细阐述了两种仪器之间的差别。利用与120/125 HR交叉对比可以同时验证EM27的精度和稳度。

Frey等^[37]和Velazco等^[22]通过对EM27与120/125 HR长期交叉对比分析,验证了EM27长期观测存在微小的漂移,是一台长期高度稳定的仪器。Gisi等^[24,43,46]用PROFFIT算法处理EM27数据,得到其与120/125 HR的偏差分别为0.12%、0.49%、0.43%,而Hedelius等^[22-23,47]则用GGG2014处理,偏差分别为0.03%、0.40%、0.46%。利用GGG2014处理后的EM27数据相对和120/125 HR结果偏差相对更小,可能是2.1节中提到的不同算法的差异所致。

表2 IFS125HR和EM27的区别

Table 2 Comparison of 125HR and EM27

特性	120/125 HR	EM27
光谱分辨率	<0.02 cm ⁻¹	<0.5 cm ⁻¹
最大光程差	45 cm	1.8 cm
探测器	InGaAs (3 900~11 000 cm ⁻¹) Si (9 000~15 300 cm ⁻¹)	InGaAs;扩展 InGaAs (4 000~11 000 cm ⁻¹)
GPR (Ghost parent ratio)	考虑	几乎不考虑
反射器	运动的反射器上使用摩擦轴承而易产生磨损	反射器由万向架固定安装,不易产生摩擦和磨损
反演算法	GGG2014	GGG2014;PROFFIT v9.6

3 EM27的科学应用

3.1 羽流成分测量

EM27原本为在实验室中用于气体成分分析的FTS,加了太阳跟踪器后便可开展外场试验,因此根据收集太阳光谱进行羽流成分柱浓度测量是EM27最为基本的应用。

Luther等^[48]将一台EM27置于卡车上对煤矿进行顺风或逆风采样,探测煤矿羽流中XCH₄的浓度以估测该煤矿排放。Butz等^[49]将红外EM27傅里叶光谱仪和紫外(UV, Ultraviolet)光栅光谱仪组装放在卡车上组装成一个移动观测站,放置距离火山口几公里的下风方处,其中EM27用来测量火山羽流

成分中的 HF 和 HCl 浓度,而 UV 光谱仪则用来测量羽流中 SO₂ 和 BrO 浓度。这种结合风速风向,利用光谱仪协同观测的测火山羽流成分柱浓度方法,推进了火山羽流监测和火山排放估测的研究。

大多数 EM27 都采用 InGaAs 探测器,因为 InGaAs 探测器比 InSb 探测器的精度更高,信噪比更低,探测光谱范围更广^[47]。内置碲化镉汞(MCT, Mercury Cadmium Telluride)和铟化铟(InSb, an Indium Antimonide)探测器的中红外 EM27 可以用来探测 700~5 000 cm⁻¹ 的光谱信息。Kille 等^[50]将这种中红外 EM27 和一个 0.55 nm 分辨率的紫外—可见光(UV-vis)光栅光谱仪组装成一个科罗拉多州移动太阳掩星通量仪(CU SOF, Colorado mobile Solar Occultation Flux instrument),可以测量在 UV-vis-IR 波段有特殊吸收线的气体柱浓度。中红外 EM27 可以探测 NH₃、C₂H₆ 等,UV-vis 光谱仪可以测量 SO₂、NO、NO₂、HONO、HCN、C₂H₂、CH₃OH、HCOOH、HCHO、C₂H₂O₂、O₃ 等气体柱浓度。

3.2 卫星验证

日本温室气体监测卫星 GOSAT^[51] (The Greenhouse Gases Observing Satellite) 卫星于 2009 年 1 月发射,是第一颗成功发射的专门用于温室气体监测的卫星,它利用 TANSO-FTS 在近红外和热红外波段探测 CO₂ 和 CH₄ 的全球分布。TANSO-FTS 针对不同地表反射率地表有不同的数据处理方式:亮地表采用 G-M (Gain-Medium) 模式,暗地表则采用 G-H (Gain-High) 模式。NIES (National Institute for Environmental Studies) 算法^[52, 53] 目前已经发展到 v2.81 版,二级产品数据有短波红外和热红外波段反演的 XCO₂ 和 XCH₄。极轨碳监测卫星 OCO-2 (Orbiting Carbon Observatory-2) 于 2014 年 7 月发射,它利用成像光栅光谱仪探测短波红外光谱的 3 个波段,通过 ACOS (Atmospheric CO₂ Observations from Space) 算法^[54-55] 得到二级 XCO₂ 产品数据,目前已经发展到 OCO2_L2_Lite F 9r。我国全球 CO₂ 监测科学实验卫星 TanSat (Chinese Carbon Dioxide Observation Satellite Mission) 于 2016 年 12 月发射,利用高光谱二氧化碳探测器监测二氧化碳的吸收光谱和 IAPCAS (Institute of Atmospheric Physics Carbon dioxide retrieval Algorithm for Satellite) 算法^[56] 获取二氧化碳的浓度。哨兵 5 号前体卫星 S5P (the Sentinel-5 Precursor) 于 2017 年 10 月发射,它利用对流层监测光栅光谱仪

(TROPOMI, Tropospheric Monitoring Instrument) 探测紫外到短波红外波段光谱,基于 SICOR (the Shortwave Infrared Carbon Monoxide Retrieval) 算法^[57] 和 SRFP (the SRON/KIT RemoTeC Full Physics) 算法^[58] 得到 CO Column、XCH₄、NO₂、SO₂、HCHO、O₃ 等数据产品。上述几颗卫星是国际上利用短波红外波段监测温室气体浓度的主要卫星。虽然卫星观测有高空间覆盖率的优点,但是由于在每个单位立体角内地基观测接收的太阳直射光比卫星观测接收的反射光大 5~6 个量级且地基观测数据处理不考虑散射、气溶胶及地表模型,这使地基观测的结果精度大大高于卫星观测,因此卫星观测需要地基观测的验证。TCCON 站点主要用于验证碳卫星数据,但是由于 TCCON 站点稀少,尤其是在沙漠、海洋等地区严重缺乏,EM27 的便携和稳定精确特性可以弥补这些地区的卫星验证空缺。

EM27 可用于对 TanSat、GOSAT、OCO-2 等碳监测卫星进行验证。2014 年 3 月, Klappenbach 等^[46] 调整了 EM27 的太阳跟踪装置,使其置于德国研究船极星号上,随船在大西洋上进行了为期 6 周的观测,观测反演结果与 GOSAT 卫星反演结果相差在 2 ppmv 以内。2015 年, Shiomi 等^[59-60] 将 EM27 放在 3 处无人活动处(洛杉矶郊区、洛杉矶的奶牛农场以及内达华州的沙漠)以验证 GOSAT 和 OCO-2 卫星的数据质量。2016 年 Velazco 等^[22] 将 EM27/SUN 运输至澳洲半干旱地区 Alice Springs 进行了为期两周的观测实验,用不同版本(v2.6、v2.72)的 NIES 反演算法和不同地表反照率处理模式(G-M、G-H)对 6 次过境 GOSAT 卫星结果进行对比分析,结果验证了使用 G-M 模式处理亮地表和新版本的反演算法可以提高 GOSAT 反演的精度。2016 年, Jacobs 等^[61] 将 EM27/SUN 置于高纬度地区,以优化 OCO-2 在高纬地区的 XCO₂ 数据产品质量控制方式。

2016 年 EM27 加入了可以对 CO 吸收波段敏感的探测器,这使 EM27 也具备在无 TCCON 站处验证 TROPOMI 的 CO 产品的能力。2019 年 Knapp 等^[62] 将加入 CO 波段后的 EM27 置于船上获取太平洋上空的 XCO₂、XCH₄、XCO 数据,并验证了 TROPOMI 卫星 XCO 在海上的探测精度。

利用 EM27 也可以对国际上于 2018 年 10 月和 2019 年 5 月新发射的 GOSAT-2^[63] 和 OCO-3^[64] 开展验证工作。另外,同时利用多个 TCCON 站点数据是国际上应用最广泛的验证卫星精度的方法。

但是,由于120/125 HR不易运输,不同TCCON站点间的偏差不易测量,因此便携的EM27还可以用于不同TCCON站点的传递定标。这种方法可以有效减小站点间的内部偏差,间接对卫星验证、算法改进起优化作用。

3.3 多台EM27联合观测区域碳源汇

卫星数据的反演精度、时间采样频率低加大了其反演二氧化碳排放通量的难度,而地基FTS可以全天候连续高精度地获得 X_{CO_2} 。TCCON站精度高,可以长期获取固定点的温室气体浓度数据。通过TCCON站点的120/125 HR可以结合模型估计区域尺度碳通量排放^[65]。结合多处TCCON站点数据结合高精度碳排放清单可以估算更大尺度的碳排放,如Wunch等^[66]结合5处TCCON站估测了欧洲的甲烷排放。但是TCCON站相隔较远,维护昂贵,无法在城市尺度范围内放置多台。而EM27的便携式刚好可以弥补这一缺陷,多台EM27可以增加城市尺度内高空间时间分辨率地基观测资料,有助于我们更好地理解工业区能源碳排放现状以及时空变化特征。

同时对某试验区域的上下风向进行气体测量,两地点之间的浓度梯度受两点间局部净通量强度和大气混合的影响(见公式(5))。

$$\Delta X_G = X_G^d - X_G^u = \frac{D}{\bar{U}} \times \frac{E_G}{\text{Column dry air}} \quad (6)$$

其中: ΔX_G 是指上下风方试验点的柱浓度梯度, X_G^d 指下风方的气体柱平均值, X_G^u 上风方的气体柱平均值, D 是两试验点间的距离, \bar{U} 是平均风速, E_G 是所要估测的排放通量($\text{molec} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), Column dry air 是干空气柱浓度(molec/cm^2)。将几台EM27根据风速风向放置在一片区域的几个试验点同时观测,通过几台仪器之间的梯度结合大气传输模型及天气模型可以估测区域性的碳排放。而这种利用EM27观测梯度估测碳排放的方法,最大的优势是在确定几台EM27互相间的比例系数后求梯度,可以有效降低系统误差对结果的影响。

2014年,Hase等^[67]在德国首都柏林周边放置了5台EM27进行了为期3周的观测实验,并采用了一种简单的扩散模型估测城市柏林的碳排放强度。2015年,Vogel等^[68]利用5台EM27置于巴黎的郊区,同时利用CHIMERE-CAMS与ECMWF气象场模拟出5个地点的日变化及梯度变化,将观测与模拟结果对比,得出了很好的一致性。2015年,Chen等^[69]首次提出可以将EM27置于顺风方和逆

风方同时观测,通过差分柱浓度测量法(DCM, Differential Column Methodology)估测一个加利福尼亚农场的排放,验证了这种自下而上源排放估计法的准确性。随后,Zhao等^[70]将WRF-GHG中尺度模拟框架与DCM法相结合重新处理2014年Hase等在柏林测得的实验数据,精确模拟了柏林城市排放源以追踪城市排放。同年,Kille等^[71]利用集成EM27与紫外一可见光光谱仪的CU SOF分别置于Denver-Julesburg盆地的背景区与污染区,通过测量的 $X_{C_2H_6}$ 与 X_{NH_3} 区分观测 X_{CH_4} 中的人为与自然信号。2016年,Viatte等^[72]将4台EM27分布放置在洛杉矶盆地农场周边,结合Picarro分析仪,利用高分辨率大气传输模型和WRF-LES(Large-Eddy Simulation)气象场模拟此大农场的甲烷排放。2017年,Chen等^[73]再次利用DCM法分析5台分布在Munich城市的EM27数据,发现了啤酒节是一个潜在的重要甲烷来源,可能是天然气泄漏和不完全燃烧造成的。利用EM27结合天气、扩散模型估计碳排放的方法成为了区域尺度碳源汇监测的重要方法之一。

4 结 语

本文主要总结了利用配备了太阳跟踪器的便携式傅里叶光谱仪EM27进行大气温室气体观测的基本原理,反演算法及最新应用进展。首先总结了EM27的高精度科学的反演算法和EM27精度、稳定度的探究,结果表明在EM27的长期测量中虽然会存在微小漂移,但是EM27仍是一台长期高稳定度、高精度的光谱仪。在介绍了EM27具备科学应用的条件后,重点总结了目前EM27的羽流气体浓度测量、卫星验证以及区域尺度源汇测量方面的科学进展。EM27小巧、便携,可以运送至污染排放处测污染羽流的成分浓度,也可以与其他光谱仪组装协同观测分析羽流成分。此外,EM27可以被运送至卫星轨迹下方,直接验证卫星的精度,这对无TCCON站的特殊地区的卫星精度验证起着极大的作用,也推动了卫星反演算法的研究。增加了扩展探测器的EM27可以验证TROPOMI等。便携的EM27还可以用于不同TCCON站点的传递定标,间接对卫星验证、算法改进起优化作用。TCCON站点相隔较远,而卫星观测又无法连续定点精准观测,于是利用多台EM27协同观测成为了小尺度碳源汇监测的重要方法之一。

综合目前的研究进展,EM27是具有科学应用前景的仪器,对温室气体监测是一个极大的补充,为分析气体成分、卫星算法的发展与验证以及城市小尺度碳源汇有更深刻地理解。由此对EM27科学应用做出如下展望:①EM27可以与其他波段的光谱仪结合分析各种试验地气体污染气体成分含量,以供分析污染物间时空变化特征间的关系;②EM27还可以应用于更多国内外的碳卫星验证和城市碳排放源汇分析工作;③TCCON站点间的一致性目前仅靠飞机等原位测量手段估测,便携稳定的EM27也可以用于TCCON间的传递定标。

参考文献(Reference):

- [1] Jiang Kejun. IPCC Special Report on 1.5°C Warming: A Starting of New Era of Global Mitigation[J]. Climate Change Research, 2018, 14(6): 640-642. [姜克隽. IPCC 1.5 °C特别报告发布,温室气体减排新时代的标志[J]. 气候变化研究进展, 2018, 14(6): 640-642.]
- [2] Running S W, Baldocchi D D, Turner D P, *et al.* A Global Terrestrial Monitoring Network Integrating Tower Fluxes, Flask Sampling, Ecosystem Modeling and EOS Satellite Data [J]. Remote Sensing of Environment, 1999, 70(1): 108-127. doi: 10.1016/S0034-4257(99)00061-9.
- [3] Karion A, Sweeney C, Tans P, *et al.* AirCore: An Innovative Atmospheric Sampling System[J]. Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, 2010, 27(11): 1839-1853. doi: 10.1175/2010JTECHA1448.1.
- [4] Miles N L, Martins D K, Richardson S J, *et al.* Calibration and Field Testing of Cavity Ring-down Laser Spectrometers Measuring CH₄, CO₂, and Δ13 CH₄ Deployed on Towers in The Marcellus Shale Region[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2018, 11(3): 1273-1295. doi: 10.5194/amt-2017-364.
- [5] Alvarez-Salgado X A, Miller A E J. Simultaneous Determination of Dissolved Organic Carbon and Total Dissolved Nitrogen in Seawater by High Temperature Catalytic Oxidation: Conditions for Precise Shipboard Measurements [J]. Marine Chemistry, 1998, 62(3-4): 325-333. doi: 10.1016/S0304-4203(98)00037-1.
- [6] Akagi S K, Craven J S, Taylor J W, *et al.* Evolution of Trace Gases and Particles Emitted by a Chaparral Fire in California[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(3): 1397-1421. doi: 10.5194/acp-12-1397-2012.
- [7] Yang Z, Washenfelder R A, Keppel-Aleks G, *et al.* New Constraints on Northern Hemisphere Growing Season Net Flux[J]. Geophysical Research Letters, 2007, 34(12): 1-23. doi: 10.1029/2007GL029742.
- [8] Buschmann M, Deutscher N. M., Sherlock V, *et al.* Retrieval of XCO₂ from Ground-based Mid-infrared (NDACC) Solar Absorption Spectra and Comparison to TCCON [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2016, 8(10): 10523-10548. doi: 10.5194/amt-9-577-2016.
- [9] David F P, Vanessa S, John R, *et al.* The Total Carbon Column Observing Network Site Description for Lauder, New Zealand[J]. Earth System Science Data, 2017, 9(2): 977-992. doi: 10.5194/essd-9-977-2017.
- [10] Wunch D, Toon G C, Blavier J F L, *et al.* The Total Carbon Column Observing Network[J]. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 2011, 369(1943): 2087-2112. doi: 10.1098/rsta.2010.0240.
- [11] Wunch D, Toon G C, Wennberg P O, *et al.* Calibration of the Total Carbon Column Observing Network Using Aircraft Profile Data [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2010, 3(5): 1351-1362. doi: 10.5194/amt-3-1351-2010.
- [12] Foucher P Y, Chedin A, Armante R, *et al.* Carbon Dioxide Atmospheric Vertical Profiles Retrieved from Space Observation Using ACE-FTS Solar Occultation Instrument[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011, 11(6): 2455-2470. doi: 10.5194/acp-11-2455-2011.
- [13] Kobayashi N, Inoue G, Kawasaki M, *et al.* Remotely Operable Compact Instruments for Measuring Atmospheric CO₂ and CH₄ Column Densities at Surface Monitoring Sites[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2010, 3(4): 1103-1112. doi: 10.5194/amt-3-1103-2010.
- [14] Mullens J, Carleer R, Reggers G, *et al.* Coupling between FTIR (Bruker IFS 66) and TG (Du Pont TGA 951 - 2000) [J]. Thermochimica Acta, 1992, 212(92): 219-225. doi: 10.1016/0040-6031(92)80237-Q.
- [15] Makarova M V, Serdyukov V I, Arshinov M Y, *et al.* First Results of Ground-based Fourier Transform Infrared Measurements of the H₂O Total Column in the Atmosphere over West Siberia[J]. International Journal of Remote Sensing, 2014, 35(15): 5637-5650. doi: 10.1080/01431161.2014.945016.
- [16] Flores E, Viallon J, Moussay P, *et al.* Calibration Strategies for FT-IR and Other Isotope Ratio Infrared Spectrometer Instruments for Accurate Delta C-13 and Delta O-18 Measurements of CO₂ in Air[J]. Analytical Chemistry, 2017, 89(6): 3648-3655. doi: 10.1021/acs.analchem.6b05063.
- [17] Melroy H R, Wilson E L, Clarke G B, *et al.* Autonomous Field Measurements of CO₂ in the Atmospheric Column with the Miniaturized Laser Heterodyne Radiometer (Mini-LHR) [J]. Applied Physics B-Lasers and Optics, 2015, 120(4): 609-615. doi: 10.1007/s00340-015-6172-3.
- [18] Gisi M, Hase F, Dohe S, *et al.* Camtracker: A New Camera Controlled High Precision Solar Tracker System for FTIR-spectrometers [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2011, 4(1): 47-54. doi: 10.5194/amt-4-47-2011.
- [19] Hase F, Frey M, Kiel M, *et al.* Addition of a Channel for XCO Observations to a Portable FTIR Spectrometer for Greenhouse Gas Measurements [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2016, 9(5): 2303-2313. doi: 10.5194/

- amt-9-2303-2016.
- [20] Hedelius J K. What Can We Infer About the Atmospheric Composition within the South Coast Air Basin from Remote Sensing[D]. Pasadena, CA: California Institute of Technology, 2017. doi: 10.7907/Z9862DGR.
- [21] Heinle L, Chen J. Automated Enclosure and Protection System for Compact Solar-tracking Spectrometers [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2018, 11(4): 2173-2185. doi: 10.5194/amt-11-2173-2018.
- [22] Velazco V, Deutscher N, Morino I, *et al.* Satellite and Ground-based Measurements of XCO₂ in a Remote Semi-arid Region of Australia[J]. Earth System Science Data, 2019, 11(3): 935-946. doi: 10.5194/essd-11-935-2019.
- [23] Hedelius J K, Viatte C, Wunch D, *et al.* Assessment of Errors and Biases in Retrievals of XCO₂, XCH₄, XCO, and XN₂O from a 0.5 cm⁻¹ Resolution Solar-viewing Spectrometer[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2016, 9(8): 3527-3546. doi: 10.5194/amt-9-3527-2016.
- [24] Gisi M, Hase F, Dohe S, *et al.* XCO₂-measurements with a Tabletop FTS Using Solar Absorption Spectroscopy[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2012, 5(11): 2969-2980. doi: 10.5194/amt-5-2969-2012.
- [25] Keppel-Aleks G, Toon G C, Wennberg P O, *et al.* Reducing the Impact of Source Brightness Fluctuations on Spectra Obtained by Fourier-transform Spectrometry[J]. Applied Optics, 2007, 46(21): 4774-4779. doi: 10.1364/AO.46.004774.
- [26] Naylor D A, Tahic M K. Apodizing Functions for Fourier Transform Spectroscopy[J]. Journal of the Optical Society of America A, 2007, 24(11): 3644-3648. doi: 10.1364/JOSA.24.003644.
- [27] Bergland G. A Radix-eight Fast Fourier Transform Subroutine for Real-valued Series[J]. IEEE Transactions on Audio and Electroacoustics, 1969, 17(2): 138-144. doi: 10.1109/TAU.1969.1162043.
- [28] Mertz L. Correction of Phase Errors in Interferograms[J]. Applied Optics, 1963, 2(12): 1332-1332. doi: /10.1364/AO.2.001332.
- [29] Mertz L. Auxiliary Computation for Fourier Spectrometry[J]. Infrared Physics, 1967, 7(1): 17-23. doi: 10.1016/0020-0891(67)90026-7.
- [30] Forman M L, Steel W H, Vanasse G A. Correction of Asymmetric Interferograms Obtained in Fourier Spectroscopy [J]. Journal of the Optical Society of America, 1966, 56(1): 59-63. doi: 10.1364/JOSA.56.000059.
- [31] Chandra S, Fleming E L, Schoeberl M R, *et al.* Monthly Mean Global Climatology of Temperature, Wind, Geopotential Height and Pressure for 0~120 km[J]. Advances in Space Research, 1990, 10(6): 3-12. doi: 10.1016/0273-1177(90)90230-W.
- [32] Manuel L, Funke B, Jurado-Navarro Á A, *et al.* Validation of the MIPAS CO₂ Volume Mixing Ratio in the Mesosphere and Lower Thermosphere and Comparison with WACCM Simulations: Validation of the MIPAS CO₂ [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 2017, 122(15): 8345-8366. doi: 10.1002/2017JD026805.
- [33] Garcia R R, Solomon S. A Numerical-model of the Zonally Averaged Dynamical and Chemical-structure of the Middle Atmosphere[J]. Journal of Geophysical Research-oceans, 1983, 88(NC2): 1379-1400. doi: 10.1029/JC088iC02p01379.
- [34] Garcia R R, Solomon S. The Effect of Breaking Gravity-Waves on the Dynamics and Chemical-composition of the Mesosphere and Lower Thermosphere [J]. Journal of Geophysical Research-atmospheres, 1985, 90(ND2): 3850-3868. doi: 10.1029/JD090iD02p03850.
- [35] Hase F, Höpfner M. Atmospheric Ray Path Modeling for Radiative Transfer Algorithms [J]. Applied Optics, 1999, 38(15): 3129-3133. doi: 10.1364/AO.38.003129.
- [36] Rodgers C D. Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice[M]. Singapore: World Scientific, 2000. doi: 10.1142/3171.
- [37] Frey M, Sha M K, Hase F, *et al.* Building the Collaborative Carbon Column Observing Network (COCCON): Long-term Stability and Ensemble Performance of the EM27/SUN Fourier Transform Spectrometer [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2019, 12(3): 1513-1530. doi: 10.5194/amt-12-1513-2019.
- [38] Hase F, Hannigan J W, Coffey M T, *et al.* Intercomparison of Retrieval Codes Used for the Analysis of High-resolution, Ground-based FTIR Measurements [J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2004, 87(1): 25-52. doi: 10.1016/j.jqsrt.2003.12.008.
- [39] Sepulveda E, Schneider M, Hase F, *et al.* Long-term Validation of Tropospheric Column-averaged CH₄ Mole Fractions Obtained by Mid-infrared Ground-based FTIR Spectrometry [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2012, 5(6): 1425-1441. doi: 10.5194/amt-5-1425-2012.
- [40] Sepúlveda E, Schneider M, Hase F, *et al.* Tropospheric CH₄ Signals as Observed by NDACC FTIR at Globally Distributed Sites and Comparison to GAW Surface In situ Measurements [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2014, 7(7): 2337-2360. doi: 10.5194/amt-7-2337-2014.
- [41] Wunch D, Toon G C, Sherlock V, *et al.* The Total Carbon Column Observing Network's GGG2014 Data Version [DB/OL]. doi: 10.14291/tcon. ggg2014. documentation. R0/1221662, 2015, 2019.
- [42] Dohe S. Measurements of Atmospheric CO₂ Columns Using Ground-based FTIR Spectra[D]. Karlsruhe: Karlsruher Institute für Technologie, 2013.
- [43] Frey M, Hase F, Blumenstock T, *et al.* Calibration and Instrumental Line Shape Characterization of a Set of Portable FTIR Spectrometers for Detecting Greenhouse Gas Emissions [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2015, 8(7): 3047-3057. doi: 10.5194/amt-8-3047-2015.
- [44] Hase F. Improved Instrumental Line Shape Monitoring for the

- Ground-based, High-resolution FTIR Spectrometers of the NDACC[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2012, 5(3):603-610. doi: 10.5194/amt-5-603-2012.
- [45] Hase F, Blumenstock T, Paton-Walsh C. Analysis of the Instrumental Line Shape of High-resolution Fourier Transform IR Spectrometers with Gas Cell Measurements and New Retrieval Software[J]. *Applied Optics*, 1999, 38(15):3417-3422. doi: 10.1364/AO.38.003417.
- [46] Klappenbach F, Bertleff M, Kostinek J, *et al.* Accurate Mobile Remote Sensing of XCO₂ and XCH₄ Latitudinal Transects from Aboard a Research Vessel[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2015, 8(12):5023-5038. doi: 10.5194/amt-8-5023-2015.
- [47] Wang W, Tian Y, Liu C, *et al.* Investigating the Performance of a Greenhouse Gas Observatory in Hefei, China[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2017, 10(7):2627-2643. doi: 10.5194/amt-10-2627-2017.
- [48] Luther A, Kleinschek R, Scheidweiler L, *et al.* Quantifying CH₄ Emissions from Hard Coal Mines Using Mobile Sun-viewing Fourier Transform Spectrometry [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2019, 12(10):5217-5230. doi: 10.5194/amt-12-5217-2019.
- [49] Butz A, Dinger A S, Bobrowski N, *et al.* Remote Sensing of Volcanic CO₂, HF, HCl, SO₂, and BrO in the Downwind Plume of Mt. Etna [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2017, 10(1):1-14. doi: 10.5194/amt-10-1-2017.
- [50] Kille N, Baidar S, Handley P, *et al.* The CU Mobile Solar Occultation Flux Instrument: Structure Functions and Emission Rates of NH₃, NO₂ and C₂H₆[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2017, 10(1):373-392. doi: 10.5194/amt-10-373-2017.
- [51] Nakajima M, Suto H, Kuze A, *et al.* On-orbit Status of TANSO Onboard GOSAT[J]. *Proceedings of SPIE- The International Society for Optical Engineering*, 2011, 8176(23):6012-6015. doi: 10.1117/12.894935.
- [52] Yoshida Y, Ota Y, Eguchi N, *et al.* Retrieval Algorithm for CO₂ and CH₄ Column Abundances from Short-wavelength Infrared Spectral Observations by the Greenhouse Gases Observing Satellite [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2011, 4(4):717-734. doi: 10.5194/amt-4-717-2011.
- [53] Yoshida Y, Kikuchi N, Morino I, *et al.* Improvement of the Retrieval Algorithm for GOSAT SWIR XCO₂ and XCH₄ and their Validation Using TCCON Data[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2013, 6(6):1533-1547. doi: 10.5194/amt-6-1533-2013.
- [54] O'Dell C W, Connor B, Boesch H, *et al.* The ACOS CO₂ Retrieval Algorithm-Part I: Description and Validation against Synthetic Observations [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2012, 5(1):99-121. doi:10.5194/amt-5-99-2012.
- [55] Crisp D, Fisher B M, O'Dell C, *et al.* The ACOS CO₂ Retrieval Algorithm - Part II: Global XCO₂ Data Characterization[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2012, 5(4):687-707. doi: 10.5194/amt-5-687-2012.
- [56] Liu Y, Yang D, Cai Z. A Retrieval Algorithm for TanSat XCO₂ Observation: Retrieval Experiments Using GOSAT Data [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2013, 58(13):1520-1523. doi: 10.1007/s11434-013-5680-y.
- [57] Landgraf J, aan de Brugh J, Scheepmaker R, *et al.* Carbon Monoxide Total Column Retrievals from TROPOMI Short-wave Infrared Measurements [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, 9(10):4955-4975. doi: 10.5194/amt-9-4955-2016.
- [58] Hu H, Hasekamp O, Butz A, *et al.* The Operational Methane Retrieval Algorithm for TROPOMI [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, 9(11):5423-5440. doi: 10.5194/amt-9-5423-2016.
- [59] Shiomi K, Kuze A, Suto H, *et al.* GOSAT CO₂ and CH₄ Validation Activity with a Portable FTS at Pasadena, Chino, and Railroad Valley [C] // American Geophysical Union Fall Meeting, San Francisco, 2015.
- [60] Kataoka F, Crisp D, Taylor T E, *et al.* The Cross-calibration of Spectral Radiances and Cross-validation of CO₂ Estimates from GOSAT and OCO-2[J]. *Remote Sensing*, 2017, 9(11):1158. doi: 10.3390/rs9111158.
- [61] Jacobs N, Simpson W R, Wunch D, *et al.* 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[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2020, 13(9):5033-5063. doi: 10.5194/amt-13-5033-2020.
- [62] Knapp M, Kleinschek R, Hase F, *et al.* Ship-borne Measurements of XCO₂, XCH₄, and XCO Above the Pacific Ocean and Comparison to CAMS Atmospheric Analyses and S5P/TROPOMI [J]. *Earth System Science Data*, 2020. doi: 10.5194/essd-2020-132.
- [63] Oishi Y, Ishida H, Nakajima T Y, *et al.* Preliminary Verification for Application of a Support Vector Machine-based Cloud Detection Method to GOSAT-2 CAI-2 [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2018, 11(5):2863-2878. doi: 10.5194/amt-11-2863-2018.
- [64] Eldering A, Taylor T E, O'Dell C W. The OCO-3 Mission: Measurement Objectives and Expected Performance based on 1 Year of Simulated Data [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2019, 12(4):2341-2370. doi: 10.5194/amt-12-2341-2019.
- [65] Babenhauserheide A, Hase F, Morino I. Net CO₂ Fossil Fuel Emissions of Tokyo Estimated Directly from Measurements of the Tsukuba TCCON Site and Radiosondes[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2020, 13(5):2697-2710. doi: 10.5194/amt-13-2697-2020.
- [66] Wunch D, Jones D B A, Toon G C, *et al.* Emissions of Methane in Europe Inferred by Total Column Measurements [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(6):3963-3980. doi: 10.5194/acp-19-3963-2019.

- [67] Hase F, Frey M, Blumenstock T, *et al.* Application of Portable FTIR Spectrometers for Detecting Greenhouse Gas Emissions of the Major City Berlin[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2015, 8 (7) : 3059-3068. doi: 10.5194/amt-8-3059-2015.
- [68] Vogel F R, Frey M, Stauer J, *et al.* XCO₂ in an Emission Hot-spot Region: the COCCON Paris Campaign 2015 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19 (5) : 3271-3285. doi: 10.5194/acp-19-3271-2019.
- [69] Chen J, Viatte C, Hedelius J K, *et al.* Differential Column Measurements Using Compact Solar-tracking Spectrometers [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16 (13) : 8479-8498. doi: 10.5194/acp-16-8479-2016.
- [70] Zhao X, Marshall J, Hachinger S, *et al.* Analysis of Total Column CO₂ and CH₄ Measurements in Berlin with WRF-GHG [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19 (17) : 11279-11302. doi: 10.5194/acp-19-11279-2019.
- [71] Kille N, Chiu R, Frey M, *et al.* Separation of Methane Emissions From Agricultural and Natural Gas Sources in the Colorado Front Range[J]. *Geophysical Research Letters*, 2019, 46 (7) : 3990-3998. doi: 10.1029/2019GL082132. doi: 10.1029/2019GL082132.
- [72] Viatte C, Lauvaux T, Hedelius J K, *et al.* Methane Emissions from Dairies in the Los Angeles Basin[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, 17 (12) : 7509-7528. doi: 10.5194/acp-17-7509-2017.
- [73] Chen J, Dietrich F, Franklin J, *et al.* Mesoscale Column Network for Assessing GHG and NO_x Emissions in Munich[C]// European Geosciences Union General Assembly Conference, Vienna, 2018.

Review of Atmospheric Greenhouse Gas Observation and Application based on Portable Fourier Transform Infrared Spectrometer

Che Ke^{1,2}, Liu Yi^{1,2}, Cai Zhaonan^{1,2}, Yang Dongxu^{1,2},
Wang Haibo^{1,2}, Zhu Sihong^{1,2}

(1. Key Laboratory of middle Atmosphere and Global Environment Observation, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China;
2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Ground-based remote sensing observation of Atmospheric greenhouse gas (GHG) column concentration has been taken great effort to support and validate satellite data. The high-resolution IFS 120/125 HR owns outstanding capabilities in its precision, but it is expensive and poor in transportability. The portable low resolution (0.5 cm⁻¹) Fourier infrared spectrometer EM27/SUN records the direct solar absorption spectra through its own solar tracker, which is a new method to provide GHG monitoring where TCCON stations are sparse. Based on the principle that GHG have obvious absorption lines in the short-wave infrared region, the non-linear least squares algorithm PROFFIT and GGG are widely used to retrieve the column gas average dry air mole fraction (X_{gas}) from the recorded spectrum. EM27/SUN data has high accuracy and stability, which is suitable for scientific application. The international applications of EM27/Sun are mainly summarized into three categories: remote sensing of the gaseous composition of plumes, satellite validation and gas emission estimation on the city scale. The unique advantages and innovative results of EM27/SUN compared with other observation methods are discussed. It is proposed that the portable EM27/SUN may help quantifying the gas components of plumes, validating satellite data from home and abroad, source distribution estimation in urban areas and quantizing station-to-station variability of different TCCON sites by using this travelling spectrometer.

Key words: Greenhouse gas column concentration; Fourier transform infrared spectrometer; Science applications