

基于 DOAS 技术的电厂及城区二氧化碳排放遥测研究

张华荣^{1,2}, 谢品华^{1,2,3*}, 徐晋^{1**}, 吕寅生^{1,2}, 李友涛¹, 张之栋^{1,2}

¹中国科学院合肥物质科学研究院安徽光学精密机械研究所, 安徽 合肥 230031;

²中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026;

³中国科学院大学, 北京 100049

摘要 针对快速、高分辨获取 CO₂ 排放量并有效识别 CO₂ 排放源分布的需求, 集成了近红外差分吸收光谱遥测系统, 研究了反演 CO₂ 浓度信息的近红外差分光学吸收光谱算法, 并结合通量算法估算了典型排放源的排放通量。分别选取电厂和合肥市科学岛为观测点, 开展了对典型点排放源和复杂背景下面排放源的 CO₂ 浓度分布研究, 分析了参考光谱的选择对于结果反演的影响, 选择背景光谱为参考谱, 获取了 CO₂ 柱浓度信息, 柱浓度反演误差可达到 0.79%, 并利用双三次插值算法得到了高空间分辨的 CO₂ 柱浓度二维浓度分布结果, 结合浓度分布结果和观测参数计算了电厂 CO₂ 的排放通量为 1925 kg, 其中测量距离估算误差为主要误差源。初步开展了对合肥市边界层 CO₂ 浓度分布的研究, 获得了合肥市大气边界层郊区、电厂区和城市区的 CO₂ 浓度分布特点, 该研究对下一步开展城市温室气体排放的评估具有重要意义, 为城市碳排放遥测提供了一种可靠的技术和方法。

关键词 光谱学; 近红外差分吸收光谱; 光学遥测; 二氧化碳浓度分布; 排放通量

中图分类号 O433.1 文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS230762

1 引言

二氧化碳(CO₂)、甲烷(CH₄)和水汽(H₂O)等温室气体能够吸收地球向外发出的长波辐射进而导致温室效应, 不断增强的温室效应会引起一系列的气候和环境恶化问题^[1]。据政府间气候变化专门委员会(IPCC)第六次评估报告报道^[2]: 2019年二氧化碳排放总量为(45±5.5) Gt, 当前大气中的 CO₂ 浓度是近 200 万年来的最高值, 同时增加的 CO₂ 总量中超过 75% 的排放来源于化石燃料的燃烧。全球经济社会发展的绿色转型正遭遇前所未有的挑战, 温室气体排放控制已经成为全球性的经济和政治问题。因此, 精确测量 CO₂ 气体浓度并估算排放源排放的 CO₂ 强度对控制温室气体排放具有重要意义。

目前, 温室气体测量技术主要有傅里叶变换光谱技术(FTIR)^[3-4]、可调谐半导体激光吸收光谱技术(TDLAS)、腔衰荡光谱技术(CRDS)^[5]、非分散红外光谱技术(NDIR)^[6]、差分吸收激光雷达(DIAL)技术、激光外差光谱(LHS)技术^[7-10]和差分光学吸收光谱(DOAS)技术等。基于被动 DOAS 技术的遥测方法可

实时测量多组分气体浓度, 测量精度较高, 且可实现大范围的气体浓度变化的测量。国际上, 德国不来梅大学 Burrows 等^[11]利用红外 DOAS 算法将大气层扫描成像光谱仪(SCIAMACHY)测得的光谱进行反演, 得到的 H₂O、CO₂ 和 CH₄ 总柱浓度的反演精度优于 1%^[12]。随后, 该大学又与相关研究机构联合开发了机载红外 DOAS 系统 MAMAP(Methane Airborne MAPper), 将其用于反演地表排放源的 CO₂ 和 CH₄ 柱浓度及混合比, 反演精度约为 1%^[13], 基于机载平台量化了煤矿通风井和发电厂等排放源的 CH₄ 排放量, 排放通量的估算误差在 15%~59% 之间^[14-16]。Borchardt 等^[17]将红外 DOAS 算法应用于机载可见红外成像光谱仪(AVRIS-NG)的测量数据, 并估算了煤矿通风井的 CH₄ 排放通量, 约为 1220 kg/h, 得出风速是不确定性的重要来源。国内相关研究小组也开展了基于被动 DOAS 技术的温室气体遥测研究。孙友文等^[18-19]利用红外 DOAS 技术实现对环境大气中 H₂O 和 CO₂ 的测量, CO₂ 的反演误差小于 3%, 王汝雯等^[20-21]搭建机载遥测系统, 结合红外 DOAS 技术实现对 H₂O 和 CO₂ 的浓度测量, 其中 CO₂ 的相对反演误差小于 1.5%, 并研

收稿日期: 2023-03-31; 修回日期: 2023-05-15; 录用日期: 2023-05-19; 网络首发日期: 2023-06-28

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(41975037)、国家自然科学基金区域联合基金项目(U19A2044)、安徽省重点研发计划项目(202004i07020013)、安徽省科技重大专项(202203a07020003)、中国科学院合肥物质科学研究院院长基金(YZJJQY202205)

通信作者: *phxie@aiofm.ac.cn; **jxu@aiofm.ac.cn;

究了华北平原 CO₂ 的分布特征。

以上研究在卫星和机载平台上针对温室气体浓度测量和排放源的排放通量方面取得了相应的进展,但是在地基平台利用 DOAS 遥测方法对于典型排放源排放通量的估算研究相对较少,同时在地基平台对城市边界层的 CO₂ 浓度分布的研究较为缺乏。为此,本文以典型排放源(发电厂)和城市区域(合肥市)为研究目标,利用地基近红外光谱遥测系统获得了目标区域光谱信息,结合差分吸收光谱技术反演得到了 CO₂ 柱浓度二维分布结果,并在此基础上对典型排放源的排放通量进行了估算。

2 原理与实验系统

2.1 被动差分吸收光谱技术原理

被动 DOAS 技术的光源主要是太阳散射光,该技术基于朗伯-比尔定律,根据气体分子对太阳辐射光的特征进行吸收,对经过气体吸收后的光谱进行滤波处理,去除光谱中的宽带结构,提取分子吸收的高频信息,获取差分光学厚度,再与气体的截面进行最小二乘拟合,来反演气体的浓度。差分光学厚度表达式^[22]为

$$D' = \sum_i^N \sigma_i(\lambda, P, T) \cdot c_i \cdot L, \quad (1)$$

式中: $\sigma_i(\lambda, P, T)$ 是第 i 种气体分子的差分吸收截面; N 表示在某一波段光谱内要同时测量的气体组分的数量; λ 为波长; P 为大气压强; T 为温度; c_i 是第 i 种气体分子的浓度; L 为光程长度。

在被动 DOAS 中,由于太阳散射光到观测目标的距离无法精确得出,因此将气体浓度沿光学吸收路径积分所得的结果定义为气体的斜柱浓度(SCD),则斜柱浓度 $D_{\text{SC}i}$ 为

$$D_{\text{SC}i} = \frac{D'}{\sum_i^N \sigma_i(\lambda, P, T)}. \quad (2)$$

在红外波段,针对反演截面对温度和压力敏感性等问题,需要利用 WFM-DOAS 算法修正,具体理论公式^[12]为

$$\ln I_j^{\text{meas}}(V^t) = \ln I_j^{\text{ref}}(\bar{V}) + \sum_i \frac{\partial \ln I_j^{\text{ref}}}{\partial \bar{V}_i} \cdot (\widehat{V}_i - \bar{V}_i) + P_j(a_m) + R_{\text{res}j}, \quad (3)$$

式中: I_j^{meas} 为测量谱; I_j^{ref} 为参考谱; 下标 j 表示中心波长 λ_j 的每个探测器像元; \bar{V} 为先验状态参量; V^t 、 \bar{V}_i 、 \widehat{V}_i 分别为第 i 种气体的实际的柱浓度、模型模拟的柱浓度和反演所得的柱浓度; \widehat{V}_i 是要反演的目标参数; 多项式 $P_j(a_m)$ (包含相关系数 a_0, a_1, a_2) 表示光谱中的宽带结构、光谱散射等的存在对反演结果的影响; $R_{\text{res}j}$ 为拟合残差。

2.2 通量计算原理

通量用于表征某属性的输送强度,即某属性在单位时间内通过单位面积的量,根据定义可得计算公式如图 1 所示,图中, c 为扩散气体的浓度, v 为扩散方向的速度, $\Delta L \cdot \Delta z$ 为垂直于扩散方向的截面积。

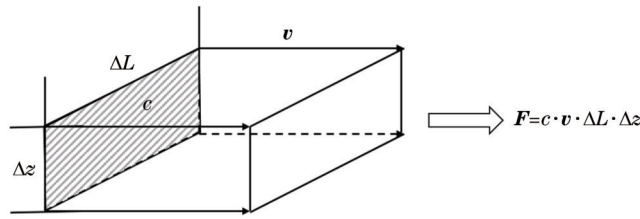


图 1 排放通量定义

Fig. 1 Definition of emission flux

利用遥测系统对污染源测量时,排放通量是指一段时间内某排放源排放的气体的量,由于被动 DOAS 技术获得的是柱浓度,即单位面积内的气体浓度,因此只需得到气团的扩散面积就可以计算排放通量。

为计算电厂的 CO₂ 排放通量,测量系统的观测方向垂直于污染源的烟羽扩散面,以研究烟羽扩散方向的排放信息。假定在测量的短时间内,大气环境稳定,风速风向恒定,则在时间 t 内 CO₂ 的排放通量 F_{CO_2} 可以变形为

$$F_{\text{CO}_2} = \int \Delta D_{\text{VC}} \cdot |v| \cdot t \cdot dl, \quad (4)$$

式中: ΔD_{VC} 为 CO₂ 垂直柱浓度(VCD)相对于背景值的变化量; $|v|$ 为风矢量在烟羽扩散面上的绝对值大小; l 为垂直与烟羽扩散方向的路径长度。本实验所测得的

斜柱浓度中每一行数据均减去该行最右边的浓度值,获得的差分斜柱浓度(DSCD, D_{SCD})可看作气体的 ΔD_{VC} 。

在风速较小、气体扩散趋势主导因素为流速时,可改用观测区域内柱浓度乘以面积 S 来估算电厂排放的 CO₂ 通量,表示为

$$F_{\text{CO}_2} = \sum \Delta D_{\text{VC}} \cdot S. \quad (5)$$

2.3 实验系统

图 2 为地基遥测系统的示意图,该系统由望远镜(透镜焦距为 40 mm,视场角约为 1.12°)、光纤束(纤芯直径为 200 μm)、光谱仪(1570~1670 nm,光谱分辨率约为 0.52 nm,CCD 像元个数 1024)、二维转台、数据采集控制处理系统等组成。太阳光经大气吸收和散射

后进入望远镜,望远镜会聚光束后由光纤耦合至光谱仪系统,后由 CCD 转换为电信号,再送入计算机进行

光谱处理得到气体浓度信息。望远镜加装滤光片滤除紫外和可见波段的光。

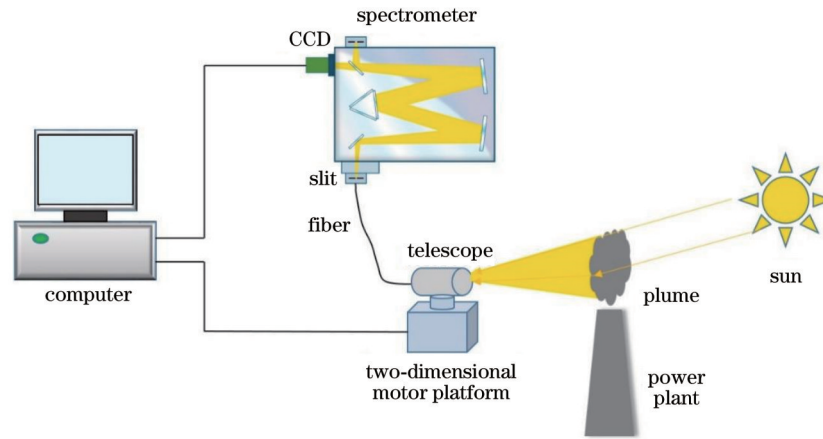


图 2 近红外光谱遥测系统示意图

Fig. 2 Schematic of near-infrared spectral telemetry system

3 数据处理方法

3.1 气体吸收截面的获取

在近红外波段,根据 CO_2 气体吸收峰的主要分布区域选择其反演波段为 1590~1620 nm。考虑此波段内存在的其他气体吸收干扰,从 HITRAN 数据库中获取了温度为 296 K、压强为 101325 Pa 条件下,该波段存在吸收的气体的吸收线强,选择吸收线强大于 10^{-25} cm/molecule 的气体,其余气体忽略,结果如图 3 所示,可以看出,在此波段存在 CH_4 、 H_2O 、 CO 和 CO_2 的吸收。 CO_2 的反演过程中存在其余三种气体的干扰,干扰水平取决于吸收线强和浓度,以及吸收线强的分布疏密程度。 H_2O 吸收强度虽然低,但是,大气中其浓度通常比 CO_2 高约 30 倍, CH_4 和 CO 吸收强度较高,但是 CO 浓度远低于 CO_2 ,因此综合上述特性,在 1590~1620 nm 波段反演 CO_2 时,光谱处理时将 H_2O 和 CH_4 气体的吸收干扰考虑在内。

反演 CO_2 浓度时,考虑 CH_4 和 H_2O 吸收的干扰,从

HITRAN 数据库提取这三种气体在 1590~1620 nm 波段的吸收线强参数,考虑谱线的展宽效应,用 Voigt 函数对三种气体的吸收谱线进行展宽,再与光谱仪的狭缝函数进行卷积,得到 CO_2 、 CH_4 和 H_2O 的吸收截面,如图 4 所示。

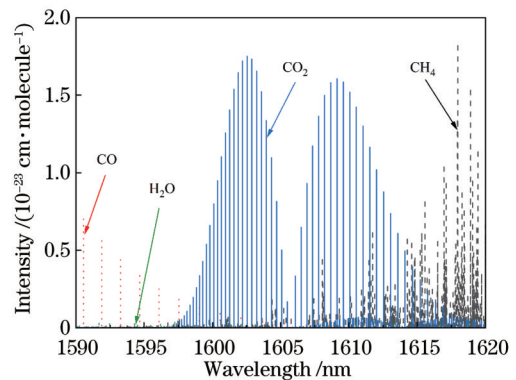


图 3 1590~1620 nm 四种气体吸收线强

Fig. 3 Four gas absorption lines intensity at 1590-1620 nm

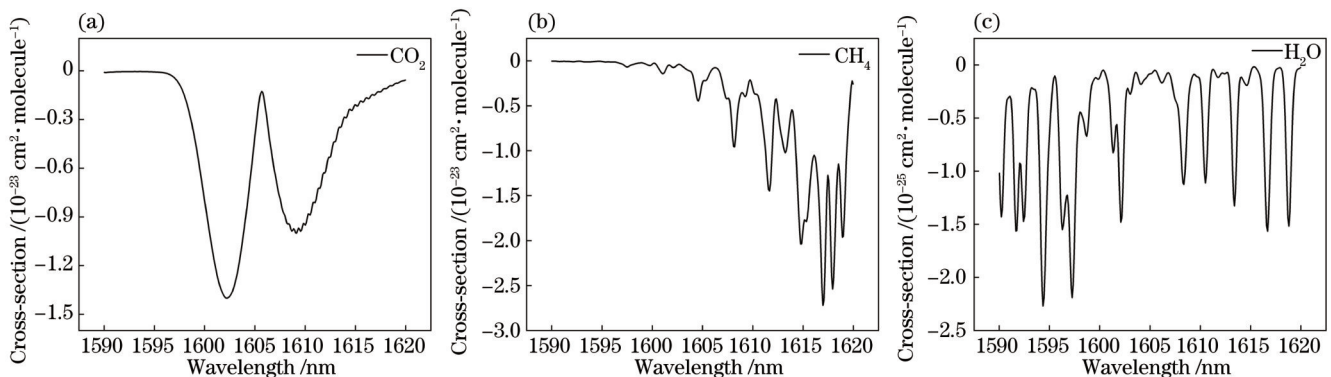


图 4 三种气体的吸收截面。(a) CO_2 ; (b) CH_4 ; (c) H_2O

Fig. 4 Absorption cross section of three gases. (a) CO_2 ; (b) CH_4 ; (c) H_2O

3.2 参考光谱的选取

在被动 DOAS 技术中,通常选择“相对洁净”区域的背景光谱作为参考谱来反演目标区域气体浓度,如上风向或天顶方向相对洁净的光谱。

如图 5 所示,分别研究了选择这两种参考光谱对 CO₂ 浓度反演结果的影响。图 5(a)和(c)是选择天顶方向(即仪器仰角为 90°)的光谱为参考谱的反演结果,图 5(b)和(d)是选择观测区域上风向光谱为参考

谱的反演结果,可以明显看出,选天顶方向光谱作为参考光谱时,测量结果与计算的 CO₂ 截面结果较为吻合,且其残余误差均方根小于上风向作为参考谱的对应值,而上风向参考光谱的反演结果较差。因此本研究选取天顶方向的光谱为参考谱,在反演出气体浓度二维分布信息后,将二维分布中每列气体浓度减去上风向第一列气体浓度,获得目标区域浓度信息。

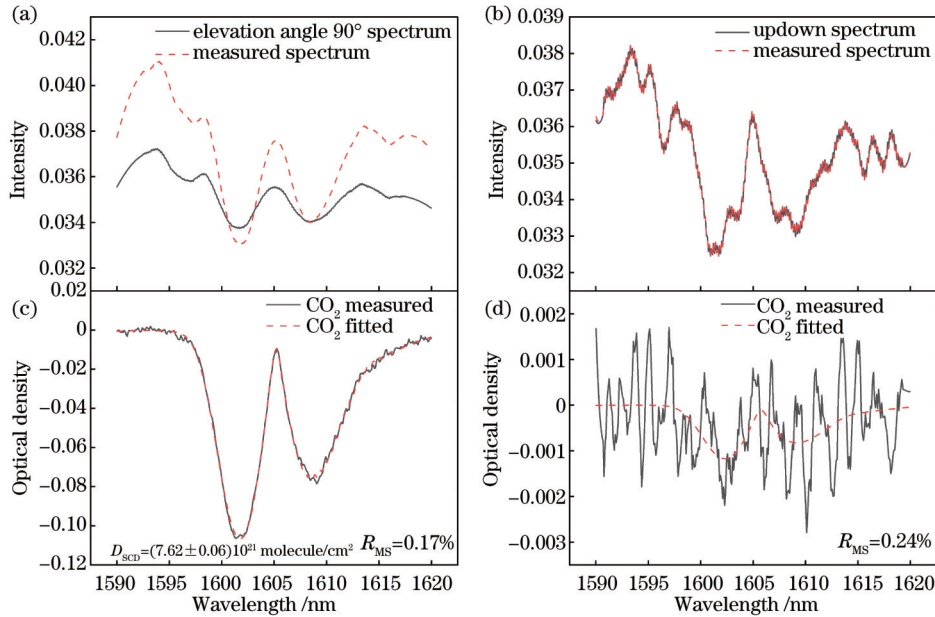


图 5 选择不同参考谱反演 CO₂ 的光谱拟合结果。(a)天顶 90°方向的参考光谱和目标区域的测量光谱;(b)上风向的参考光谱和目标区域测量光谱;(c)选择天顶方向参考谱的 CO₂ 拟合效果;(d)选择上风向参考谱的 CO₂ 拟合效果

Fig. 5 Selected different reference spectrum and spectrum fitting results of CO₂ retrieval. (a) Reference spectrum in the zenith direction (90°) and measured spectrum in the target area; (b) reference spectrum in the upwind direction and measured spectrum in the target area; (c) CO₂ fitting effect of selecting the reference spectrum in the zenith direction; (d) CO₂ fitting effect of selecting the reference spectrum in the upwind direction

3.3 光谱拟合

使用 DOAS 算法对目标区域的测量光谱逐条反演,加入 CH₄ 和 H₂O 的吸收截面参与反演,来扣除吸收光谱中的这些气体的干扰,最后可得到多组 CO₂ 斜柱浓度信息。由于参考光谱已含有气体吸收信息,因此 DOAS 方法计算得到的斜柱浓度为差分斜柱浓度,表示测量谱和参考谱斜柱浓度的差值。图 6 为 2022 年 11 月 10 日 15:21:29 测量光谱的反演示例,图 6(a)为目标区域的测量光谱和天顶方向的参考光谱结构,图 6(b)为 DOAS 反演得到的 CO₂ 斜柱浓度,结果为 7.62×10^{21} molecule/cm², CO₂ 反演误差为 6.01×10^{19} molecule/cm²,反演相对误差为 0.79%。图 6(c)给出了光谱拟合后的残差,残差的均方根(RMS, R_{MS})为 0.17%。本文算法对 CO₂ 斜柱浓度的反演误差可达到 0.79%。

3.4 图像插值优化

为提高遥测结果的空间分辨率,利用双三次插值算法对所得 CO₂ 浓度序列进行处理,以获得高空间分

辨率的 CO₂ 浓度二维分布信息。最近邻插值法、双线性插值法和双三次插值法均可实现图像插值。其中:最近邻插值法虽然操作简洁但是获得的插值结果会存在严重失真;双线性插值法与最近邻插值相比结果有所改善,但是插值后的细节会有部分缺失,适用于对图像质量要求不高的情况;双三次插值与其余两种插值结果相比具有更高的准确性,因此选用双三次插值法。

双三次插值算法利用待插入点周围 16 个像素点的像素值,结合计算公式来得出待插入点的像素值。本文选用的是双三次插值算法中的 16 点卷积方法,原理如图 7 所示,图中,圆形点和正方形点为低分辨率图片上的像素点,点 A 为插值数据中待插入到低分辨率图片中的某一像素点。图中的虚线构成了边长为 1 的正方形区域。设置点 P 为低分辨率图片的区域中心点,坐标设置为 (m, n) ,则根据相对位置可以确定其余像素点的坐标,其中待插入的点 A 的坐标为 $(m - u_1, n - v_1)$,中心点 P 根据以下条件来确定: $|u_1| < 0.5$,

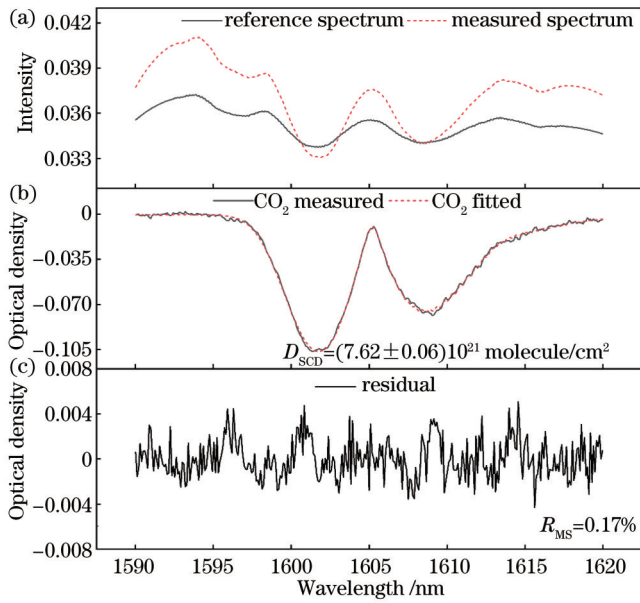


图 6 DOAS 反演 CO₂ 光谱示例。(a) 测量光谱和参考光谱；(b) CO₂ 拟合差分光学密度；(c) 拟合后残余误差
Fig. 6 Example of CO₂ retrieved by DOAS. (a) Measured spectrum and reference spectrum; (b) CO₂ fitting differential optical density; (c) residual error after fitting

且 $|v_1| < 0.5^{[23-24]}$ 。

16 点卷积双三次插值方法将计算的纬度从二维转化为 x 和 y 方向的一维计算, 插值后的 A 点的 CO₂ 浓度值 $A_{CO_2}(x, y)^{[24]}$ 表示为

$$A_{CO_2}(x, y) = \sum_{m=1}^4 \sum_{n=1}^4 u_{mn} G(x_m, y_n), \quad (6)$$

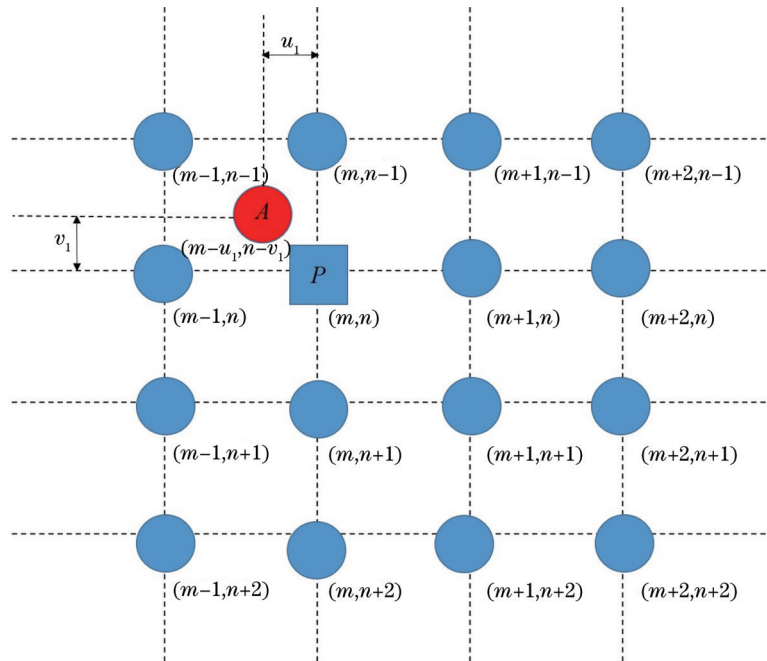


图 7 16 点卷积双三次插值法原理
Fig. 7 Principle of 16-point convolution bicubic interpolation method

式中: x 和 y 为像素 A 的坐标; $G(x_m, y_n)$ 为像素 A 在低分辨率图像中最接近的 16 个像素点的浓度值; m 和 n 为低分辨率图像中像素点的索引值; u_{mn} 表示 x 和 y 方向卷积后的系数, 即插值核函数。

该函数在 x 方向 (y 方向同理) 的表达式为

$$u(s)_{mn} = \begin{cases} (a+2)|s^3| - (a+3)|s^2| + 1, & |s| \leq 1 \\ a|s^3| - 5a|s^2| + 8a|s| - 4a, & 1 < |s| \leq 2, \\ 0, & \text{other} \end{cases} \quad (7)$$

式中: s 表示低分辨率图像中选定的 16 个像素点到像素 A 的距离; a 表示插值核, 为保证插值核函数及偏导函数的连续性, a 设定为 -0.5 。

4 结果与分析

利用该遥测系统分别开展了点源和面源的观测研究, 点源的观测对象为合肥市肥东县某电厂, 面源观测的观测对象选取合肥市。

4.1 电厂 CO₂ 排放观测

为开展针对典型排放源的遥测评估研究, 选取合肥市肥东县某电厂烟囱进行遥测, 实地观测图如图 8 所示, 观测参数如表 1 所示。观测期间天气晴朗, 风向为西南风, 风速为 1 m/s。测量时, 仪器测量方向与烟羽扩散面垂直, 光谱采集时, 利用望远镜测量系统对目标区域进行逐点扫描, 电机扫描水平间隔为 0.5° , 垂直扫描间隔为 0.5° , 依次采集不同方位角和仰角的光谱, 获得测量光谱的二维分布信息。

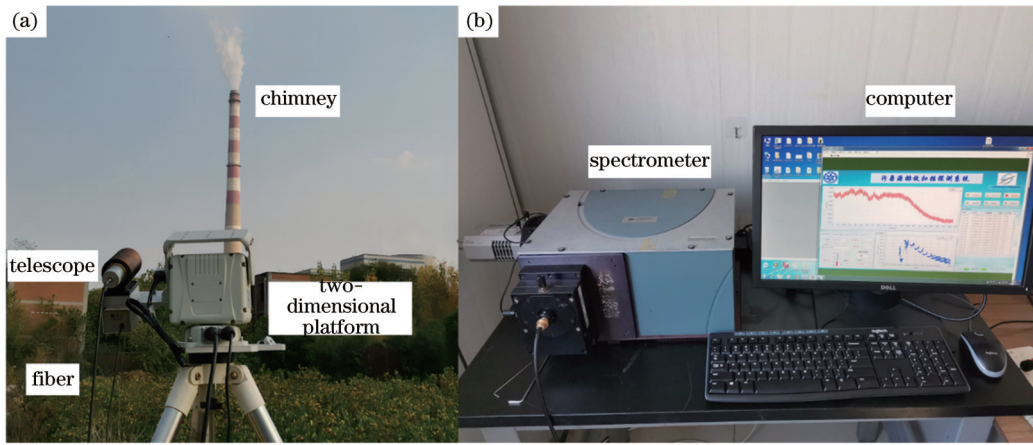


图 8 肥东某电厂实地观测图。(a)二维转台、望远镜和光纤;(b)光谱仪和计算机

Fig. 8 Field observation map of a power plant in Feidong. (a) Two-dimensional motor platform, telescope, and fiber; (b) spectrometer and computer

表 1 肥东某电厂观测参数

Table 1 Observation parameters of a power plant in Feidong

Parameter	Value
Date	2022-11-10
Observation distance /m	600
Wind speed /($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	1
Wind direction	Southwest
Horizontal scanning range /($^{\circ}$)	19.0-25.0
Vertical scanning range /($^{\circ}$)	10.0-20.0
Rotation angle interval /($^{\circ}$)	0.5
Time resolution /s	4

根据观测距离和角度计算了系统的水平和垂直空间分辨率,计算公式为

$$R = 2d \tan(\alpha/2), \quad (8)$$

式中: R 为水平或垂直空间分辨率; d 为观测点到目标的直线距离; α 为每次观测时电机转动的水平或垂直角度间隔。依据实验条件,计算得到空间分辨率为 5 m(水平) \times 5 m(垂直)。

以烟囱口为零点位置建立坐标系,水平方向向左为负向右为正,向下为负向上为正,将角度值转化为距离值,与所测光谱反演后得到的浓度信息进行匹配,得到电厂烟羽中 CO_2 的二维浓度分布图。为获取目标排放源的排放信息,将每列浓度值减去上风向第一列浓度值,即可近似得到电厂烟囱净排放的 CO_2 浓度。将浓度二维分布图与可见摄像头拍摄的可视化图像进行匹配,可以明显看出烟囱口与浓度高值点位置重合,如图 9 所示。所测浓度分布为电厂烟囱净排放的 CO_2 浓度分布结果,从图 9 可以看出, CO_2 浓度高值集中于烟囱口上方,排放最强处 CO_2 斜柱浓度比背景浓度值高出约 $3.36 \times 10^{21} \text{ molecule}/\text{cm}^2$ 。

为研究排放口不同距离处排放的特征,以烟囱口为零点,选取烟囱口上方不同高度,来获取 CO_2 浓度随水平距离的变化曲线,如图 10 所示。可以看出:在烟

囱口上方 0 m 和 5 m 处,浓度变化曲线近似为高斯分布曲线,说明此高度范围内浓度尚未扩散,集中在排放口;从上方 10 m 开始,烟羽逐渐扩散,浓度高值向左偏移了 20 m;从 35 m 往上,测量值接近于 0,即浓度接近背景浓度值,说明电厂烟囱排放的 CO_2 浓度高值基本分布在烟囱口上方 35 m 高度范围内。

为获得高空间分辨的烟羽 CO_2 排放分布,利用双三次插值算法对测量结果进行插值优化,将观测结果数据点数量提高到原来的 4 倍,浓度分布图的空间分辨率由 5 m \times 5 m 提高到 1.25 m \times 1.25 m,结果如图 11 所示。

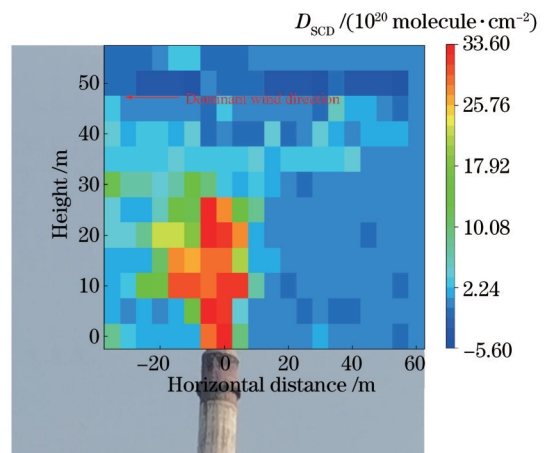


图 9 肥东某电厂烟囱周围 CO_2 斜柱浓度分布(扣除背景)
Fig. 9 DSCD distribution of CO_2 around the power plant in Feidong (deducted the background)

结合电厂烟囱排放的 CO_2 浓度二维分布结果,估算了电厂排放的 CO_2 量。已知浓度分布图像的空间分辨率,即图片中单个网格点的长和宽,将扫描区域的单个网格点的气体柱浓度与网格面积相乘并累加,即可得到这次测量得到的电厂排放的 CO_2 量,计算结果为 1925 kg。由于完成一次扫描的时间较长(约 30 min),

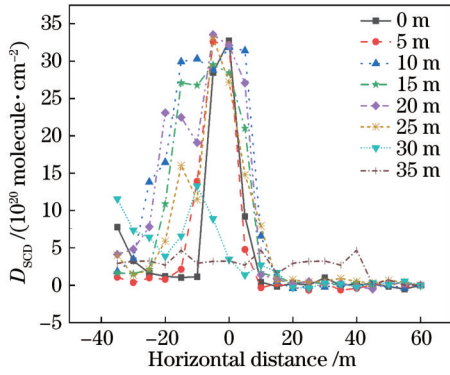


图 10 烟囱口上方不同高度, CO₂ 浓度随水平距离的变化曲线
Fig. 10 Variation of CO₂ concentration with horizontal distance at different heights above the chimney

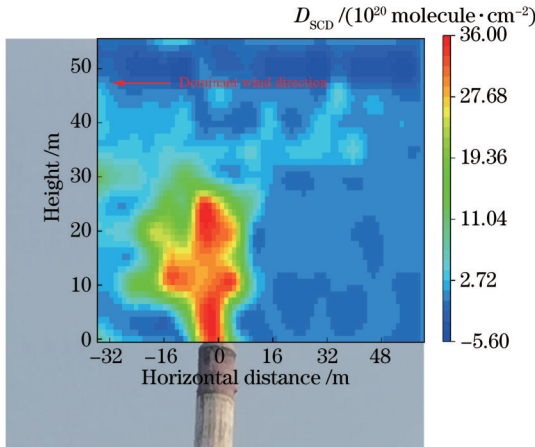


图 11 肥东某电厂 CO₂ 斜柱浓度插值后二维分布图 (扣除背景)
Fig. 11 Two-dimensional distribution of CO₂ DSCD interpolation in the power plant in Feidong (deducted the background)

计算得到的是排口附近 CO₂ 累计总量, 下一步拟通过减少扫描时间、增加扫描次数等方法, 评估烟羽排口的排放量。

电厂 CO₂ 排放通量的测量误差主要有以下几个来源: 浓度测量误差、风场误差和测量距离估算误差。

基于 DOAS 算法拟合得到的柱浓度的误差包含两方面: 拟合误差和吸收截面误差。本文示例的光谱的拟合误差为 0.79%, 总体所测光谱的拟合误差最大为 3%。DOAS 算法中气体吸收截面由 HITRAN 数据库的吸收线强处理所得, 数据库的吸收线强的误差在 6% 以内^[25], 吸收截面的误差也是 6%, 吸收截面误差对浓度反演的误差属于系统误差^[26]。

测量距离的估算也存在一定的误差, 本文利用谷歌卫星地图来测量观测距离值, 距离估算的误差约为 40 m^[27]。观测距离的误差会对空间分辨率计算产生误差, 进而影响通量计算公式中垂直路径的计算。

排放通量的总误差 ΔF ^[28] 可表示为

$$\Delta F = \sqrt{\Delta F_{\text{cro}}^2 + \Delta F_{\text{fit}}^2 + \Delta F_{\text{d}}^2}, \quad (9)$$

式中: ΔF_{cro} 为气体吸收截面误差引入的通量误差; ΔF_{fit} 为拟合误差引入的通量误差; ΔF_{d} 为距离误差引入的通量误差。

利用下式表示误差占比为

$$R_i^2 = \frac{\Delta F_i^2}{\Delta F^2}, \quad (10)$$

式中: ΔF_i 为表示上述四类误差; ΔF 为总的通量误差; $\sum_i R_i^2 = 1$ 。利用上述信息可计算得到不同误差源对通量测量的误差占比, 分别为气体吸收截面误差占总误差的 40%、拟合误差占总误差的 10%、距离误差占总误差的 50%。这表明距离估算误差是本次通量测量的最主要误差来源。

4.2 合肥市大气边界层 CO₂ 浓度分布观测

除了典型排放源, 城市区域也是非常重要的二氧化碳排放来源。为研究城市边界层 CO₂ 的分布特征, 在合肥市科学岛利用近红外光谱遥测系统对合肥市边界层开展观测实验, 覆盖范围由北到南, 可分为三个区域, 分别为郊区、电厂区和城市区, 实地观测图如图 12 所示, 观测参数如表 2 所示。



图 12 合肥市边界层观测图
Fig. 12 Observation map of Hefei boundary layer

表 2 合肥市边界层观测参数

Table 2 Observation parameters of Hefei boundary layer

Parameter	Value
Date	2022-09-21
Observation distance / m	8000
Time resolution / s	5
Horizontal scanning range / (°)	0.0–50.0
Vertical scanning range / (°)	1.0–10.0
Rotation angle interval / (°)	1.0

测量中, 根据观测距离和扫描角度计算得到空间分辨率为 139.6 m × 139.6 m。将反演得到的每列斜柱浓度值减去郊区背景的斜柱浓度, 即可得到城市排放的 CO₂ 的斜柱浓度二维分布, 如图 13 所示。

初步观测结果表明, CO₂ 浓度高值主要集中在近

地面区域。在近地面,不同类型区域 CO₂浓度存在较大差异,从图中可以看出,郊区浓度最低,电厂区域和城市区域的浓度均高于郊区,扣除复杂背景后城市区

域的最高浓度可达 2.58×10^{21} molecule/cm²,电厂区域浓度高值层厚度约 $139.6 \times 2 = 279.2$ m,城市区域浓度高值达到的层厚为 $139.6 \times 3 = 418.8$ m。

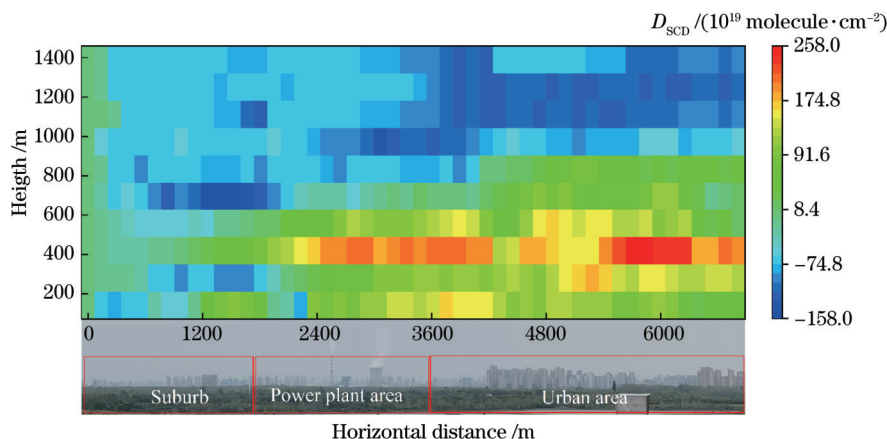


图 13 合肥市 CO₂斜柱浓度二维分布图(扣除复杂背景)

Fig. 13 Two-dimensional distribution of CO₂ DSCD of Hefei (deducted the complex background)

5 结 论

本文介绍了一种用于 CO₂分布及排放通量测量的近红外光谱遥测系统及估算方法,开展了典型排放源和城市排放源的 CO₂分布特征研究。选取电厂进行点排放源的排放研究,在垂直于电厂烟羽扩散方向进行扫描测量,CO₂浓度反演误差可达到 0.79%,结合实景图片和插值算法获取了电厂的 CO₂的二维浓度分布图,浓度分布基本与烟羽扩散方向一致,浓度高值基本在烟囱口上方 0~35 m 范围内。计算了电厂的 CO₂排放通量为 1925 kg,分析了误差来源,对误差源的误差占比进行了计算评估,结果表明,距离估算误差是本次通量测量的最主要误差来源。开展了针对合肥市区大气边界层 CO₂分布特征的观测研究,初步结果表明,大气边界层的浓度高值基本分布于近地面,电厂和城市区域浓度明显高于郊区,城市区域的最高浓度可达 2.58×10^{21} molecule/cm²,说明电厂工作的燃料燃烧和城市区域交通运输和制造业等排放对大气 CO₂的浓度和分布起主要贡献作用。该研究为碳排放的估算提供了有效的技术和方法,下一步可以利用三维建模对烟羽进行三维立体分布特征研究,并结合风速精确测量仪器对其排放通量进行更精确的估算。

参 考 文 献

- [1] 季红程,谢品华,徐晋,等.基于可调谐法布里-珀罗干涉仪的大气二氧化碳测量方法研究[J].光学学报,2021,41(18):1812004.
Ji H C, Xie P H, Xu J, et al. Measuring method of atmospheric carbon dioxide based on tunable Fabry-Perot interferometer[J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(18): 1812004.
- [2] IPCC. Climate change 2022: mitigation of climate change[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2022.
- [3] 吕永雪,张天舒,范广强,等.傅里叶红外系统监测大气中温

室气体的污染特征[J].中国激光,2023,50(6):0611001.

Lü Y X, Zhang T S, Fan G Q, et al. Monitoring of pollution characteristics of atmospheric greenhouse gases using Fourier infrared system[J]. Chinese Journal of Lasers, 2023, 50(6): 0611001.

- [4] 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.
- [5] 刘文清,王兴平,马国盛,等.高灵敏腔衰荡光谱技术及其应用研究[J].光学学报,2021,41(1):0130003.
Liu W Q, Wang X P, Ma G S, et al. Research of high sensitivity cavity ring-down spectroscopy technology and its application[J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(1): 0130003.
- [6] 董和磊,刘灿,靳长明,等.双通道非分光红外 CO₂气体传感器设计与测试[J].中国激光,2023,50(2):0210003.
Dong H L, Liu C, Jin C M, et al. Design and test of dual-channel non-dispersive infrared CO₂ gas sensor[J]. Chinese Journal of Lasers, 2023, 50(2): 0210003.
- [7] 刘文清.“双碳”目标下大气环境光学监测技术发展机遇[J].光学学报,2022,42(6):0600001.
Liu W Q. Opportunities and challenges for development of atmospheric environmental optics monitoring technique under “double carbon” goal[J]. Acta Optica Sinica, 2022, 42(6): 0600001.
- [8] Wang J, Wang G, Tan T, et al. Mid-infrared laser heterodyne radiometer (LHR) based on a 3.53 μm room-temperature interband cascade laser[J]. Optics Express, 2019, 27(7): 9610-9619.
- [9] Deng H, Yang C G, Wang W, et al. Near infrared heterodyne radiometer for continuous measurements of atmospheric CO₂ column concentration[J]. Infrared Physics & Technology, 2019, 101: 39-44.
- [10] Deng H, Yang C G, Xu Z Y, et al. Development of a laser heterodyne spectroradiometer for high-resolution measurements of CO₂, CH₄, H₂O and O₂ in the atmospheric column[J]. Optics Express, 2021, 29(2): 2003-2013.
- [11] Burrows J P, Hölzle E, Goede A P H, et al. SCIAMACHY—scanning imaging absorption spectrometer for atmospheric cartography[J]. Acta Astronautica, 1995, 35(7): 445-451.
- [12] Buchwitz M, Rozanov V V, Burrows J P. A near-infrared

- optimized DOAS method for the fast global retrieval of atmospheric CH₄, CO, CO₂, H₂O, and N₂O total column amounts from SCIAMACHY Envisat-1 nadir radiances[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2000, 105 (D12): 15231-15245.
- [13] Gerilowski K, Tretner A, Krings T, et al. MAMAP – a new spectrometer system for column-averaged methane and carbon dioxide observations from aircraft: instrument description and performance analysis[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2011, 4(2): 215-243.
- [14] Krings T, Gerilowski K, Buchwitz M, et al. Quantification of methane emission rates from coal mine ventilation shafts using airborne remote sensing data[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2013, 6(1): 151-166.
- [15] Krautwurst S, Gerilowski K, Jonsson H H, et al. Methane emissions from a Californian landfill, determined from airborne remote sensing and *in situ* measurements[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2017, 10(9): 3429-3452.
- [16] Krautwurst S, Gerilowski K, Borchardt J, et al. Quantification of CH₄ coal mining emissions in Upper Silesia by passive airborne remote sensing observations with the Methane Airborne MAPper (MAMAP) instrument during the CO₂ and Methane (CoMet) campaign[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, 21(23): 17345-17371.
- [17] Borchardt J, Gerilowski K, Krautwurst S, et al. Detection and quantification of CH₄ plumes using the WFM-DOAS retrieval on AVIRIS-NG hyperspectral data[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2021, 14(2): 1267-1291.
- [18] 孙友文, 刘文清, 谢品华, 等. 红外差分光学吸收光谱技术测量环境大气中的水汽[J]. *物理学报*, 2012, 61(14): 140705.
Sun Y W, Liu W Q, Xie P H, et al. Measurement of atmospheric water vapor using infrared differential optical absorption spectroscopy[J]. *Acta Physica Sinica*, 2012, 61(14): 140705.
- [19] 孙友文, 谢品华, 徐晋, 等. 采用加权函数修正的差分光学吸收光谱反演环境大气中的 CO₂ 垂直柱浓度[J]. *物理学报*, 2013, 62(13): 130703.
Sun Y W, Xie P H, Xu J, et al. Measurement of atmospheric CO₂ vertical column density using weighting function modified differential optical absorption spectroscopy[J]. *Acta Physica Sinica*, 2013, 62(13): 130703.
- [20] 王汝雯, 谢品华, 徐晋, 等. 基于近红外差分吸收光谱技术的大气中水汽柱浓度反演[J]. *光学学报*, 2019, 39(2): 0201001.
Wang R W, Xie P H, Xu J, et al. Retrieve of water vapor column density in atmosphere based on near infrared differential optical absorption spectroscopy[J]. *Acta Optica Sinica*, 2019, 39 (2): 0201001.
- [21] 王汝雯. 基于 WFM-DOAS 温室气体柱浓度反演方法及应用研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2019.
Wang R W. Research on inversion method and application of greenhouse gas column concentration based on WFM-DOAS [D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2019.
- [22] Platt U, Stutz J. *Differential absorption spectroscopy[M]// Differential optical absorption spectroscopy. Physics of earth and space environments*. Berlin: Springer, 2008: 135-174.
- [23] Keys R. Cubic convolution interpolation for digital image processing[J]. *IEEE Transactions on Acoustics, Speech, and Signal Processing*, 1981, 29(6): 1153-1160.
- [24] Xiang R, Yang H, Yan Z J, et al. Super-resolution reconstruction of GOSAT CO₂ products using bicubic interpolation[J]. *Geocarto International*, 2022, 37(27): 15187-15211.
- [25] Gordon I E, Rothman L S, Hargreaves R J, et al. The HITRAN2020 molecular spectroscopic database[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2022, 277: 107949.
- [26] Huang Y Y, Li A, Wagner T, et al. The quantification of NO_x and SO₂ point source emission flux errors of mobile differential optical absorption spectroscopy on the basis of the Gaussian dispersion model: a simulation study[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2020, 13(11): 6025-6051.
- [27] Potere D. Horizontal positional accuracy of google earth's high-resolution imagery archive[J]. *Sensors*, 2008, 8(12): 7973-7981.
- [28] 黄业园, 李昂, 秦敏, 等. 基于车载多轴差分吸收光谱技术的武汉氮氧化物分布及排放研究[J]. *光学学报*, 2021, 41(10): 1030002.
Huang Y Y, Li A, Qin M, et al. Nitrogen oxides spatial distribution and emissions with mobile multi-axis differential optical absorption spectroscopy in Wuhan city[J]. *Acta Optica Sinica*, 2021, 41(10): 1030002.

Remote Sensing on Carbon Dioxide Emissions in Power Plants and Urban Areas Based on DOAS Technology

Zhang Huarong^{1,2}, Xie Pinhua^{1,2,3*}, Xu Jin^{1**}, Lü Yinsheng^{1,2}, Li Youtao¹, Zhang Zhidong^{1,2}

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

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

³University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract

Objective Carbon dioxide (CO₂), methane (CH₄), water vapor (H₂O), and other greenhouse gases have the ability to absorb longwave radiation emitted by the earth to cause the greenhouse effect. The escalating greenhouse effect has resulted in a series of climate and environmental degradation issues. Accurate measurement of CO₂ gas concentration and estimation of CO₂ emission intensity from emission sources are of significance for controlling greenhouse gas emissions. Remote sensing methods based on passive differential optical absorption spectroscopy (DOAS) technology can measure the

concentration of multiple gas components in real-time with high precision and can capture a wide range of gas concentration variations. Currently, researchers both domestically and internationally have made corresponding progress in measuring greenhouse gas concentrations and emission fluxes from emission sources using DOAS technology, mainly focusing on satellite and airborne platforms. However, there is relatively less research on emission flux estimation from typical emission sources using DOAS remote sensing methods on ground-based platforms. Focusing on typical emission sources and urban areas as the research targets, we employ a ground-based near-infrared spectroscopy remote sensing system coupled with differential absorption spectroscopy technology to retrieve the two-dimensional distribution of CO₂ column concentration. Based on these results, the emission fluxes from typical emission sources are estimated to provide a reliable technique and method for remote sensing of carbon emissions.

Methods The near-infrared DOAS algorithm for retrieving CO₂ concentration information is first studied, and the spectral range and interfering gases for CO₂ inversion are selected by analyzing the distribution of gas absorption line intensity in the HITRAN database. Meanwhile, we calculate the effective absorption cross-sections of the gases in the measurement environment through line broadening and convolution. The absorption cross-sections of CH₄ and H₂O are included in the retrieval to account for their interference in the absorption spectra. The influence of reference spectrum selection on the retrieval results is analyzed, and ultimately the zenith direction spectrum is chosen as the reference spectrum. The CO₂ column concentration information is obtained using least-squares fitting. By subtracting the gas concentration in the first column upwind from the obtained CO₂ column concentration and considering the angular information of the remote sensing system, the two-dimensional concentration distribution of CO₂ columns in the vicinity of the power plant and the boundary layer of Hefei is obtained. The bicubic interpolation algorithm is applied to achieve high spatial resolution for the two-dimensional distribution of CO₂ column concentrations. Furthermore, the CO₂ emission flux from the power plant is calculated, and the error sources are analyzed.

Results and Discussions We choose the background spectrum as the reference spectrum, and employ the DOAS algorithm to retrieve CO₂ column density. The retrieval error can reach 0.79%. The remote sensing results of a chimney in a power plant in Hefei show that high concentrations of CO₂ are concentrated above the chimney outlet, and the slant column density of CO₂ at the emission hotspot is approximately 3.36×10^{21} molecule/cm² higher than the background concentration (Fig. 9). The high concentrations of CO₂ emitted from the power plant are mainly distributed within a height range of 35 m above the chimney outlet (Fig. 10). By utilizing the bicubic interpolation algorithm, the spatial resolution of the power plant's CO₂ concentration distribution map is improved from 5 m × 5 m to 1.25 m × 1.25 m (Fig. 11). The emission flux from the power plant is about 1925 kg and the distance estimation error is the largest error source in the flux measurement. The remote sensing results in the boundary layer of Hefei indicate that both the power plant and the urban area have higher concentrations compared to the suburban area. After subtracting the complex background, the highest concentration in the urban area reaches up to 2.58×10^{21} molecule/cm². The thickness of the high-concentration layer in the power plant is approximately 279.2 m, while it is 418.8 m in the urban area (Fig. 13).

Conclusions We introduce a near-infrared spectroscopy remote sensing system and estimation method for measuring CO₂ column density distribution and emission fluxes, and investigate the distribution characteristics of CO₂ from typical point sources and urban emissions. A power plant is selected as a point source for emission research. Scanning measurements are conducted in the vertical direction of the power plant plume dispersion to obtain a two-dimensional concentration distribution map of CO₂ emissions from the power plant. The CO₂ emission flux is calculated as about 1925 kg, and observations and research on the CO₂ distribution characteristics in the atmospheric boundary layer of Hefei are also conducted. Preliminary results show that the high concentration values in the boundary layer are primarily distributed near the ground level, and the concentrations in the power plant and urban areas are significantly higher than those in the suburbs. This suggests that the fuel combustion in the power plant and emissions from transportation and manufacturing activities in urban areas play a major role in atmospheric CO₂ concentration and distribution. Finally, we provide effective techniques and methods for estimating carbon emissions. The next step will involve adopting three-dimensional modeling to investigate the three-dimensional spatial distribution characteristics of the plume and combining precise wind speed measurement instruments for more accurate emission flux estimation.

Key words spectroscopy; near-infrared differential optical absorption spectroscopy; optical remote sensing; CO₂ concentration distribution; emission flux