

引用格式: LIU Dan-dan, HUANG Yin-bo, CAO Zhen-song, *et al.* Analysis of Total Columns of Greenhouse Gas Based on Direct Observation and Comparison with Satellite Data in Hefei[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, **49**(3):0301002  
刘丹丹, 黄印博, 曹振松, 等. 合肥地区温室气体柱浓度直接观测与卫星数据对比分析[J]. *光子学报*, 2020, **49**(3):0301002

# 合肥地区温室气体柱浓度直接观测与卫星数据对比分析

刘丹丹<sup>1,2,3</sup>, 黄印博<sup>1</sup>, 曹振松<sup>1</sup>, 卢兴吉<sup>1</sup>, 孙宇松<sup>1,2</sup>, 涂倩思<sup>4</sup>

(1 中国科学院安徽光学精密机械研究所 大气光学重点实验室, 合肥 230031)

(2 中国科学技术大学 研究生院科学岛分院, 合肥 230026)

(3 皖西学院 电气与光电工程学院, 安徽 六安 237012)

(4 卡尔斯鲁厄理工学院, 德国 卡尔斯鲁厄 76131)

**摘要:**利用地基傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 观测了合肥地区 H<sub>2</sub>O、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> 及 CO 四种气体分子的柱浓度, 观测结果表明: 合肥地区 XH<sub>2</sub>O、XCO<sub>2</sub> 在测量期间变化较大, H<sub>2</sub>O 和 CO<sub>2</sub> 的变化幅度分别为 1 353.17~5 289.43 ppm 及 409.22~415.05 ppm; XCH<sub>4</sub> 和 XCO 两种气体分子的变化较小, 其标准差均在 10<sup>-2</sup> 数量级; XH<sub>2</sub>O、XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 和 XCO 的平均值分别为 2 109.10 ppm、411.59 ppm、1.87 ppm 及 0.13 ppm. 将地基观测数据 XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 分别与 WACCM 模式、GOSAT 卫星数据进行了对比分析, 结果表明, WACCM 模式计算 XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 的浓度比较稳定, 仅在平均值附近有微幅变化, GOSAT 卫星观测值略低于地基 EM27/SUN 的观测值, XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 相对偏差分别为 0.45% 和 0.34%. 利用 GOSAT 卫星数据分析了 2010~2018 年春季 XCO<sub>2</sub> 与 XCH<sub>4</sub> 的变化趋势, 发现 XCO<sub>2</sub> 值从 390.83 ppm 增加到 410.30 ppm, 相对增长率为 4.9%; XCH<sub>4</sub> 值从 1.802 ppm 增加到 1.869 ppm, 相对增长率为 3.7%. 其结果可为追踪合肥及周边地区温室气体的源与汇提供科学依据.

**关键词:**傅里叶变换光谱技术; EM27/SUN; 温室气体; 柱总量; WACCM; GOSAT 卫星数据

中图分类号: X131.1

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20204903.0301002

## Analysis of Total Columns of Greenhouse Gas Based on Direct Observation and Comparison with Satellite Data in Hefei

LIU Dan-dan<sup>1,2,3</sup>, HUANG Yin-bo<sup>1</sup>, CAO Zhen-song<sup>1</sup>, LU Xing-ji<sup>1</sup>, SUN Yu-song<sup>1,2</sup>, TU Qian-si<sup>4</sup>

(1 Key Laboratory of Atmospheric Optics, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(2 Science Island Branch of Graduate School, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(3 College of Electrical and Optoelectronic Engineering, West Anhui University, Luan, Anhui 237012, China)

(4 Karlsruhe Institute of Technology, Karlsruhe 76131, Germany)

**Abstract:** Observation of the total columns of H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and CO in Hefei is presented based on ground-based Fourier transform infrared spectrometer (EM27/SUN). The results show that, the XH<sub>2</sub>O and XCO<sub>2</sub> vary greatly during the measurement period while the XCH<sub>4</sub> and XCO vary slightly. The range of H<sub>2</sub>O and CO<sub>2</sub> are 1 353.17~5 289.43 ppm and 409.22~415.05 ppm, at the same time, the standard deviation of XCH<sub>4</sub> and XCO are in the order of 10<sup>-2</sup>. The average values of XH<sub>2</sub>O, XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub> and XCO are 2 109.10 ppm, 411.59 ppm, 1.87 ppm and 0.13 ppm respectively. The measured XCO<sub>2</sub> and XCH<sub>4</sub> are compared with the WACCM model and GOSAT satellite data, respectively. The comparison

**基金项目:**中国科学院战略性先导科技专项(A类)(No.XDA17010104), 皖西学院自然科学研究一般项目(No.KJ103762015B22)

**第一作者:**刘丹丹(1986-), 女, 博士研究生, 主要研究方向为大气痕量气体观测. Email: baobaoldd@126.com

**导师:**黄印博(1976-), 男, 研究员, 博士, 主要研究方向为激光与红外大气传输. Email: ybhuang@aiofm.ac.cn

**通讯作者:**曹振松(1979-), 男, 副研究员, 博士, 主要研究方向为红外高分辨率高灵敏度激光吸收光谱技术. Email: zscsao@aiofm.ac.cn

**收稿日期:**2019-10-23; **录用日期:**2019-12-12

<http://www.photon.ac.cn>

results show that the  $XCO_2$  and  $XCH_4$  calculated by WACCM model are relatively stable, with only slight changes near the average value. The GOSAT observations are slightly lower than those of EM27/SUN observations, with the relative deviations of  $XCO_2$  and  $XCH_4$  are 0.45% and 0.34%, respectively. The time series of the total column of  $XCO_2$  and  $XCH_4$  from 2010 to 2018 are analyzed by the GOSAT satellite data. It is found that the value of  $XCO_2$  increases from 390.83 ppm to 410.30 ppm, with a relative growth rate of 4.9%; the value of  $XCH_4$  increases from 1.802 ppm to 1.869 ppm, with a relative growth rate of 3.7%. The results may provide the theoretical basis for tracking the sources and sinks of greenhouse gases in Hefei and its surrounding areas.

**Key words:** Fourier transform infrared spectroscopy; EM27/SUN; Greenhouse gases; Total column; WACCM; Satellite data

**OCIS Codes:** 010.1300; 010.1030; 280.0280; 280.1120; 280.1545

## 0 引言

大气辐射传输必须考虑大气分子的吸收作用,主要吸收分子包含  $H_2O$ 、 $CO_2$ 、 $O_3$ 、 $N_2O$ 、 $CO$ 、 $O_2$  及  $CH_4$  等气体分子<sup>[1]</sup>.其中, $H_2O$ 、 $CO_2$ 、 $CH_4$ 、 $CO$  及  $N_2O$  等气体吸收长波辐射,统称为“温室气体”.其浓度增加不仅影响辐射传输效率,也是导致全球变暖的最主要原因,如何降低全球变暖的速度以及监测温室气体浓度变化趋势已成为全球密切关注的课题.目前对温室气体最直观最有效的监测手段是地基监测,通过测量太阳吸收光谱,利用反演算法获取温室气体的信息,相比卫星监测,精度和准确度更高,对温室气体浓度的变化也更为敏感<sup>[2]</sup>.

全球基于地基傅里叶变换光谱法遥测温室气体柱浓度的观测网主要有总碳柱观测网(Total Carbon Column Observing Network, TCCON)和大气成分变化观测网(Network for the Detection of Atmospheric Composition Change, NDACC)等, TCCON 观测网隶属于大气成分变化观测网,主要利用地基近红外光谱仪(Bruker IFS125 HR)获得温室气体的柱浓度信息,观测气体包括  $CO_2$ 、 $CH_4$ 、 $N_2O$ 、 $HF$ 、 $CO$ 、 $H_2O$  及  $HDO$  等,其主要目标是研究全球碳循环机制,并应用于卫星监测产品的验证,如 GOSAT(The Greenhouse gases Observing Satellite)卫星产品的验证,其站点接近 70 个(国内仅有合肥一个观测站点)<sup>[3-6]</sup>; NDACC 观测网是世界气象组织全球大气监测计划的主要贡献者,也是全球大气化学综合观测计划的重要组成部分,主要利用地基中红外高分辨率光谱仪获得温室气体的柱浓度信息,其关注的气体主要包括  $O_3$ 、 $HNO_3$ 、 $HF$ 、 $CO$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ 、 $HCN$  及  $C_2H_6$  等,全球观测站点约 25 个左右(我国不在此范围之内)<sup>[7]</sup>.两个观测网所使用的设备均是高分辨傅里叶变换光谱仪,该设备体积庞大、价格昂贵,需要大量的基础设备支持和定期维护,不能随意移动.而傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 克服了上述缺点,具有轻便、紧凑、稳定等特点,仅需要较少的基础设备支持,且反演柱浓度的精度已达到与 TCCON 相当的精度<sup>[8-11]</sup>,如 EM27/SUN 观测  $XCO_2$  平均偏差 0.2 ppm,  $XCH_4$  平均偏差为 0.8 ppb(与 TCCON 网的数据比较)<sup>[12]</sup>.国外利用 EM27/SUN 对温室气体的柱浓度反演也进行了一系列的研究,如:HASE F 等利用多台 EM27/SUN 对城市温室气体排放进行了监测,获得了温室气体通量信息<sup>[13]</sup>, KLAPPENBACH 等将 EM27/SUN 放置在船上验证其稳定性,并获得不同纬度  $XCO_2$ 、 $XCH_4$  浓度的分布<sup>[14]</sup>.国内谢品华等利用高分辨率傅里叶变换光谱仪(Bruker IFS125 HR)观测了合肥地区温室气体,并将其结果与 EM27/SUN 观测的  $XCO_2$  做了对比分析,两者之间的相关性达到了 0.996<sup>[15-17]</sup>.

本文利用傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 观测了合肥地区温室气体的柱浓度,测量了该光谱仪的仪器线型函数(Instrument Line Shape, ILS),首次同时获得  $H_2O$ 、 $CO_2$ 、 $CH_4$  及  $CO$  四种温室气体的垂直柱浓度,分析了测量期间四种温室气体的平均值,并与 Whole Atmosphere Community Climate Model(WACCM)模式计算值及 GOSAT 卫星数据进行了对比分析,利用 GOSAT 卫星数据分析了 2010~2018 年合肥春季  $CO_2$ 、 $CH_4$  的浓度变化趋势.

## 1 测量仪器及反演方法

### 1.1 测量仪器 EM27/SUN

利用傅里叶变换光谱仪(EM27/SUN)进行观测,如图 1.观测点位于合肥市西郊科学岛(经度 117.17°E,

纬度 31.9°N), 站点海拔高度 0.031 km, 距离市中心约 10 km. EM27/SUN 的主要器件包含干涉仪和太阳跟踪器两个部分, 光谱波段为 4 000~120 000  $\text{cm}^{-1}$ , 光谱分辨率为 0.5  $\text{cm}^{-1}$  (最大光程差为 1.8 cm), 太阳跟踪精度为 0.25 ms, 光谱采集时间为 58 s (10 次扫描平均). 该光谱仪可以实现多种气体分子的同时监测, 如  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{O}_2$  及  $\text{CH}_4$  等气体, 本文重点围绕水汽和含碳分子进行了观测与分析.

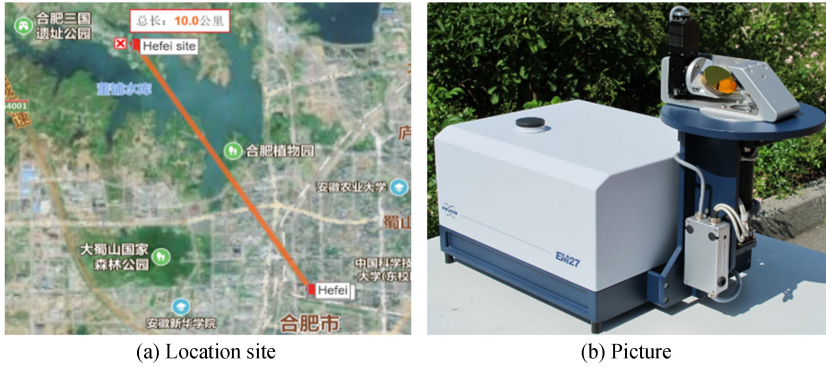


图 1 EM27/SUN 傅立叶变换光谱仪所在观测站点与实物图

Fig.1 Location site and the picture of Fourier transform infrared spectrometer based EM27/SUN

## 1.2 反演方法

地基傅里叶变换光谱仪采集太阳光谱, 利用算法对太阳光谱进行反演获得痕量气体浓度. 目前, 痕量气体反演算法主要有美国喷气推进实验室开发的 GFIT 反演算法<sup>[3]</sup>, 卡尔鲁斯厄大气实验室 HASE F 等开发的 PROFFIT 算法<sup>[18]</sup>以及 RINSLAND C 等开发的 SFIT 算法<sup>[18]</sup>. GFIT 算法共有 GFIT2009、GFIT2012 以及 GFIT2014 三个版本; 基于最优估算法的 PROFFIT 和 SFIT 算法, 也不断更新完善, 如 SFIT 从 SFIT1、SFIT2 到目前的最新版本 SFIT4, 其中 PROFFIT、GFIT 两种反演算法适用于近红外波段气体浓度的反演, SFIT 反演算法适用于中红外波段气体浓度的反演. 本文采用 PROFFIT 反演算法, 利用 Tikhonov-Phillips 约束条件, 在对数尺度上进行反演, 其优点是避免结果出现负值, 同时减少运算时间. 反演算法 PROFFIT 主要包含前向模型和后向反演两个部分. 将先验参数代入到前向模型计算大气透过率获得模拟光谱  $S_{in}$

$$S_{in} = S(f) \quad (1)$$

式中,  $f$  是状态参量 (压力、温度、混合比等). 基于前向模型  $S$ , 将模拟光谱对每一个状态参量求偏导, 得到  $m \times n$  阶雅可比矩阵  $A$

$$A_{mn}(f) = \frac{dS_{in}(k_m)}{df_n} \quad (2)$$

如果  $m$  小于  $n$ , 未知量多于实测量, 此时需要约束条件求解方程; 如果  $m$  大于  $n$ , 则方程存在多个解. 测量光谱可以写成

$$S_{in}(f_0 + df) = S_{in} + A df \quad (3)$$

式中,  $df = f - f_0$ , 计算模拟光谱与测量光谱的偏差, 使得两者差异最小, 即  $\Delta S = S_{mes} - S_{in}$  最小, 由于非线性需要多次迭代, 第  $i+1$  次迭代使得  $\Delta S$  最小, 即

$$f^{i+1} = f^i + [(A^i)^T A^i]^{-1} (A^i)^T \Delta S^i = [(A^i)^T A^i]^{-1} (A^i)^T (\Delta S^i + A^i f^i) \quad (4)$$

地基反演测量值少于未知量, 因此需要附加约束条件才能获得方程的解, 反演过程中常用的两种约束条件是最优估算法和 Tikhonov-Phillips 方法. 其中, Tikhonov-Phillips 方法是一种对数尺度上的反演, 更适合低分辨率光谱柱浓度的反演, 因此本文采用 Tikhonov-Phillips 方法. 由于傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 是低分辨率光谱仪 (分辨率 0.5  $\text{cm}^{-1}$ ), 因此, 在反演过程中采用缩放先验廓线的方法进行反演. 垂直柱总量 (Vertical Column Density, VCD) 及气体柱平均摩尔分数 (column-averaged Dry air Mole Fraction, DMFs) 可以表示为

$$\begin{cases} C_{\text{gas}} = \int_0^p c_k \tau_{o,k}(p) dp \\ X_{\text{gas}} = \frac{C_{\text{gas}}}{C_{\text{dryair}}} \end{cases} \quad (5)$$

式中,  $P_s$  为地表气压,  $p$  为气压,  $g$  为重力加速度,  $m_{\text{dryair}}$  干空气分子质量,  $c_k$  为缩放因子,  $\omega_{o,k}(p)$  为先验廓线,  $C_{\text{gas}}$  为气体的柱总量,  $C_{\text{dryair}}$  为干空气柱总量, 其公式为

$$C_{\text{dryair}} = \frac{P_{\text{gr}}}{g \cdot m_{\text{dryair}}} - C_{\text{H}_2\text{O}} \frac{m_{\text{H}_2\text{O}}}{m_{\text{dryair}}} \quad (6)$$

式中,  $P_{\text{gr}}$  表示地表气压,  $m_{\text{H}_2\text{O}}$ 、 $m_{\text{dryair}}$  分别为水汽和干空气分子质量,  $C_{\text{H}_2\text{O}}$  为水汽柱总量. 在反演过程中, 地表气压的变化不仅改变压强廓线, 且影响干空气柱总量, 因此需要得到准确的地表气压值. 在反演过程中为了减少仪器误差, 常采用氧气作为内部标准反演气体柱平均摩尔分数 DMFs, 即

$$X_{\text{gas}} = 0.2095 \times \frac{C_{\text{gas}}}{C_{\text{O}_2}} \quad (7)$$

式中,  $C_{\text{gas}}$  是气体的柱总量,  $C_{\text{O}_2}$  是氧气的柱总量, 压强和温度廓线均来自美国国家环境预报中心 (National Centers Environmental Prediction, NCEP) 的分析数据.

## 2 仪器线型函数 ILS 的测量

光谱仪切趾、光学畸变等均会对太阳吸收光谱进行调制, 其调制程度用仪器线型函数 (Instrument Line Shape, ILS) 来衡量. 理想的仪器线型函数是 Sinc 函数和 Rectangular 函数的卷积, 由于光学系统存在光学相差及未校准等, 实际中的仪器线型函数 ILS 由振幅调制效率 (Amplitude Modulation Efficiency, ME) 和相位误差 (Phase Error, PE) 组成, 振幅调制效率表征 ILS 的宽度, 相位误差量化 ILS 对称程度. 因此, 需要对仪器进行定标.

图 2 是定标的照明系统, 主要包含卤素灯 (具体参数见表 1)、电源及支架等结构. 利用 LINEFIT 软件<sup>[19-20]</sup>, 测量  $7\,000 \sim 7\,400 \text{ cm}^{-1}$  光谱波段内的水汽谱线, 获得了 ILS 函数的 ME 和 PE 两部分. 振幅调制效率和相位误差随光程差的变化如图 3 所示. 测量 ILS 时, 需要注意光源与光谱仪的距离选择, 距离太近卤素灯发热影响实验温度, 距离太远探测器信号弱, ILS 的测量还与环境参数有关, 本次定标环境参数见表 2. 综合考虑, 实验选择了 401、519 及 605 cm 三个距离进行了测量, 实验结果如图 4 所示.

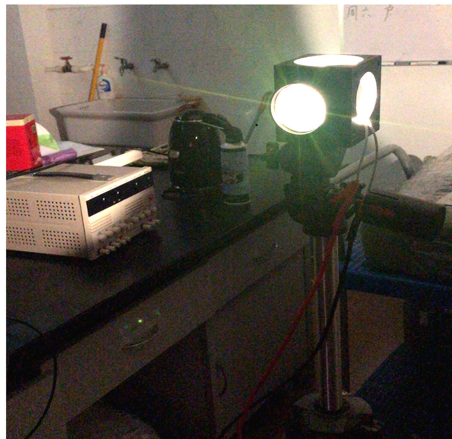


图 2 定标照明系统

Fig.2 Calibration lighting system

表 1 卤素灯参数

Table 1 Parameter of halogen lamp

Parameters	Rated voltage	Rated power	Color temperature	Rated illumination
Value	12.0 V	50.0 W	3 050 K	1 000 lm

表 2 环境参数

Table 2 Environmental parameters

Parameters	Temperature		Pressure	
	Distance/cm	$t_1/^\circ\text{C}$	$t_2/^\circ\text{C}$	$P_1/\text{kPa}$
401	26.5	26	100.985	100.963
519	26.2	25.8	101.050	101.031
605	25.8	26.1	101.029	100.993

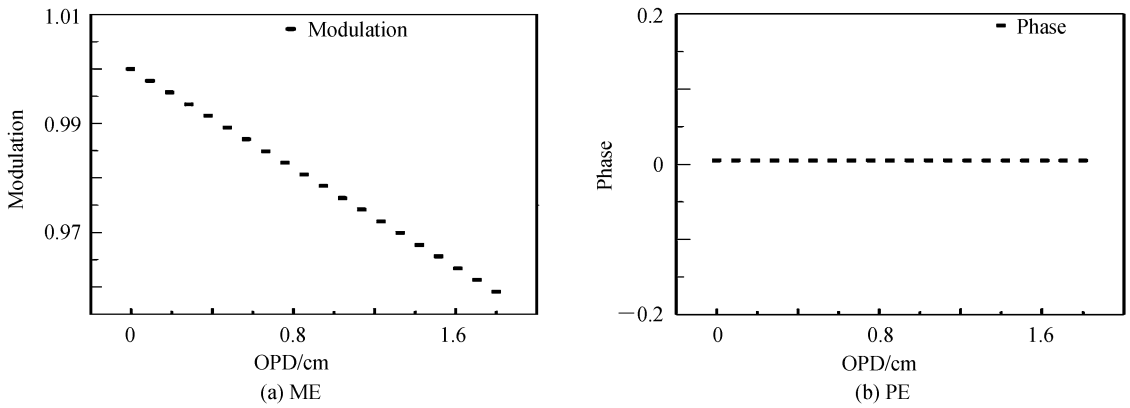


图3 仪器线型函数  
Fig.3 Instrument line shape

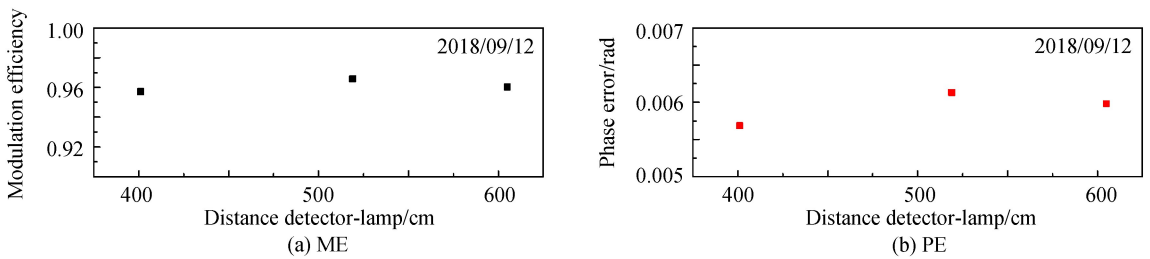


图4 ILS 随距离的变化  
Fig.4 Variation of ILS with distance

图4是 ILS 的 ME 和 PE 随距离的变化.从图可以看出,在 401、519 及 605 cm 处,ILS 振幅调制效率及相位误差数值比较接近,三次测量的 ME 标准偏差仅为 0.004 37(见表 3),平均值为 0.961 1(见表 3),PE 平均值为 0.005 93(见表 3),傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 的仪器线型函数 ILS 标准值为:0.985 5(ME)及 0.001 6(PE),三次测量的平均值与标准值的绝对偏差分别为 2.45%和 0.433%.说明在运输及实验过程中,仪器性能较为稳定,这为后续的数据反演提供了保障.

表 3 ME、PE 随距离的变化

Table 3 ME and PE change with distance

Distance/cm	ME	PE
401	0.957 2	0.005 69
519	0.965 8	0.006 13
605	0.960 2	0.005 98
Mean	0.961 1	0.005 93
Standard deviation	0.004 37	$2.236 81 \times 10^{-4}$

### 3 结果分析与讨论

CO<sub>2</sub>、CO、CH<sub>4</sub>、O<sub>2</sub>以及 H<sub>2</sub>O 的浓度反演波段如表 4 所示,所选择的反演波段干扰分子较少(PROFFIT 反演算法采用缩放先验廓线的方法扣除干扰分子的影响).实验时间是 2018 年 3 月 27 日、28 日,4 月 2 日、3 日、8 日、9 日、10 日、20 日,8 天有效数据.实验期间天气晴朗,一天内大部分时间天气比较稳定.

表 4 CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、CO、H<sub>2</sub>O 和 O<sub>2</sub> 气体分子的反演波段

Table 4 Spectral windows for retrieval of column of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>O and O<sub>2</sub>

Gases	Spectral windows/cm <sup>-1</sup>	Interference molecule
H <sub>2</sub> O	8 353.4~8 463.1	CH <sub>4</sub>
CO <sub>2</sub>	6 173.0~6 390.0	H <sub>2</sub> O, HDO, CH <sub>4</sub>
CH <sub>4</sub>	5 897.0~6 145.0	H <sub>2</sub> O
CO	4 208.7~4 318.8	CH <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> O, HDO
O <sub>2</sub>	7 765.0~8 005.0	H <sub>2</sub> O, HF, CO <sub>2</sub>

### 3.1 温室气体柱浓度的日变化

为了分析观测期间四种温室气体的变化规律,除去饱和光谱及太阳光强相对变化幅度超过 5% 的光谱(主要受云和气溶胶的影响),选取观测期间 8 天有效数据进行分析,获得了合肥地区 CO<sub>2</sub>、CO、CH<sub>4</sub> 及 H<sub>2</sub>O 四种气体分子柱浓度的日变化特征,如图 5 所示.

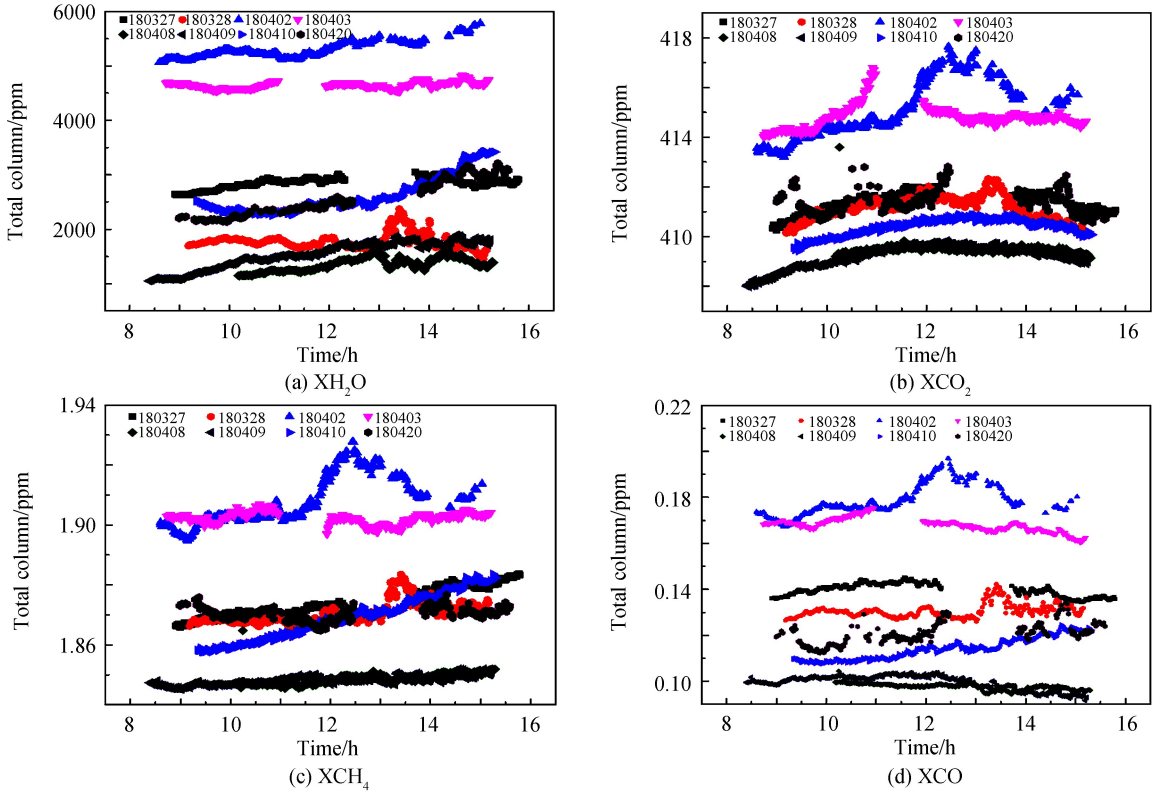


图 5 XH<sub>2</sub>O、XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 和 XCO 柱浓度的日变化  
Fig.5 Daily variation of total column of XH<sub>2</sub>O, XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub> and XCO

观测结果显示,在测量期间 XH<sub>2</sub>O、XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 及 XCO 的变化较大,如 4 月 8 日、9 日两天的柱浓度比较低,4 月 2 日、3 日两天的柱浓度数值较高,尤其是水汽的变化最为显著,如图 5(a),4 月 2 日水汽柱浓度平均值达到 5 289.43 ppm,是 4 月 8 日(1 353.17 ppm)的 5 倍;3 月 28 日与 4 月 2 日 XCO<sub>2</sub>、XCO、XCH<sub>4</sub> 的日变化非常相似,可能三种气体的源相近.如 3 月 28 日的变化趋势在中午 12:30 左右达到最大值,在 14:00 达到波谷,随后又逐渐增大,由于当天风向是南风,观测点的结果会受城市区域排放量的影响,正午峰值反映了人为排放的影响.3 月 27 日、4 月 3 日、4 月 20 日出现数据缺失情况,如 3 月 27 日 12:30 到 13:30,说明这些时间段天气不稳定,可能是天空存在云,导致光强起伏较大;H<sub>2</sub>O 柱浓度的值一天变化较大,CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> 及 CO 柱浓度的日变化相对较小,表 5 是四种气体分子测量期间的日变化量.

表 5 XH<sub>2</sub>O、XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub>、XCO 的日变化量  
Table 5 Daily variation of XH<sub>2</sub>O, XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub> and XCO

Date	ΔXH <sub>2</sub> O/ppm	ΔXCO <sub>2</sub> /ppm	ΔXCH <sub>4</sub> /ppm	ΔXCO/ppm
180327	423.19	1.770	0.017 8	0.010 7
180328	922.21	2.206	0.018 4	0.016 3
180402	716.88	<b>4.443</b>	<b>0.032 9</b>	<b>0.029 9</b>
180403	289.75	2.797	0.010 0	0.015 3
180408	455.78	<b>4.590</b>	0.019 3	0.010 1
180409	846.09	1.857	0.006 8	0.012 3
180410	<b>1 182.58</b>	1.469	<b>0.025 9</b>	0.016 9
180420	1 080.12	2.254	0.011 9	<b>0.021 7</b>

文献[21]中指出 CH<sub>4</sub> 在大气中的浓度较低,约为 1.8 ppm,混合均匀,不同区域浓度差较小,日变化量小

于 0.02 ppm. 从表 5 可以看出, CH<sub>4</sub> 的日变化量最大可以达到 0.032 9 ppm(4 月 2 日), 相对变化率为 1.7% (相对当日平均值的变化), 推测其原因可能是外来源的入侵导致. H<sub>2</sub>O 的日变化幅值可以达到 1 000 ppm 以上, 如 4 月 10 日日变化幅值达到 1 182.58 ppm, CO<sub>2</sub> 日变化幅值可以达到 4.59 ppm(4 月 8 日), 相对变化率为 1.12%, CO 的日变化量最大为 0.021 7 ppm, 相对变化率高达 18%. 为了观察四种气体分子柱浓度在测量期间的变化趋势, 将每天数据进行平均, 结果见图 6 及表 6 所示.

从观测期间 H<sub>2</sub>O、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> 及 CO 四种气体分子柱浓度的日平均值可以看出, 它们的变化趋势相似, H<sub>2</sub>O 分子的柱浓度在 4 月 2 日最大, 最大值为 5 289.43 ppm(见表 5), 且 XH<sub>2</sub>O 的日变化较大, 标准差最大达到 237.8 ppm(4 月 9 日), 剔除水汽异常数据(4 月 2 日、3 日), 剩余六天的平均值为 2 109.1 ppm; CO<sub>2</sub> 柱浓度日变化标准差的数量级为 10<sup>-1</sup>(除了 4 月 2 日), 柱浓度日变化相对较小, 日平均柱浓度最大值、最小值分别为 415.05 ppm、409.22 ppm(见表 6), 八天的平均值为 411.59 ppm; CH<sub>4</sub> 和 CO 两种气体分子的柱浓度日变化均较小, 其标准差均在 10<sup>-2</sup>数量级上, 实验观测的八天内平均值分别为 1.874 ppm、0.131 ppm. 从图 6 及表 6 可以看出, XH<sub>2</sub>O、XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 及 XCO 在 4 月 2 日、4 月 3 日的数值相对较大, 其原因可能是有外来源的入侵, 如人为排放等因素.

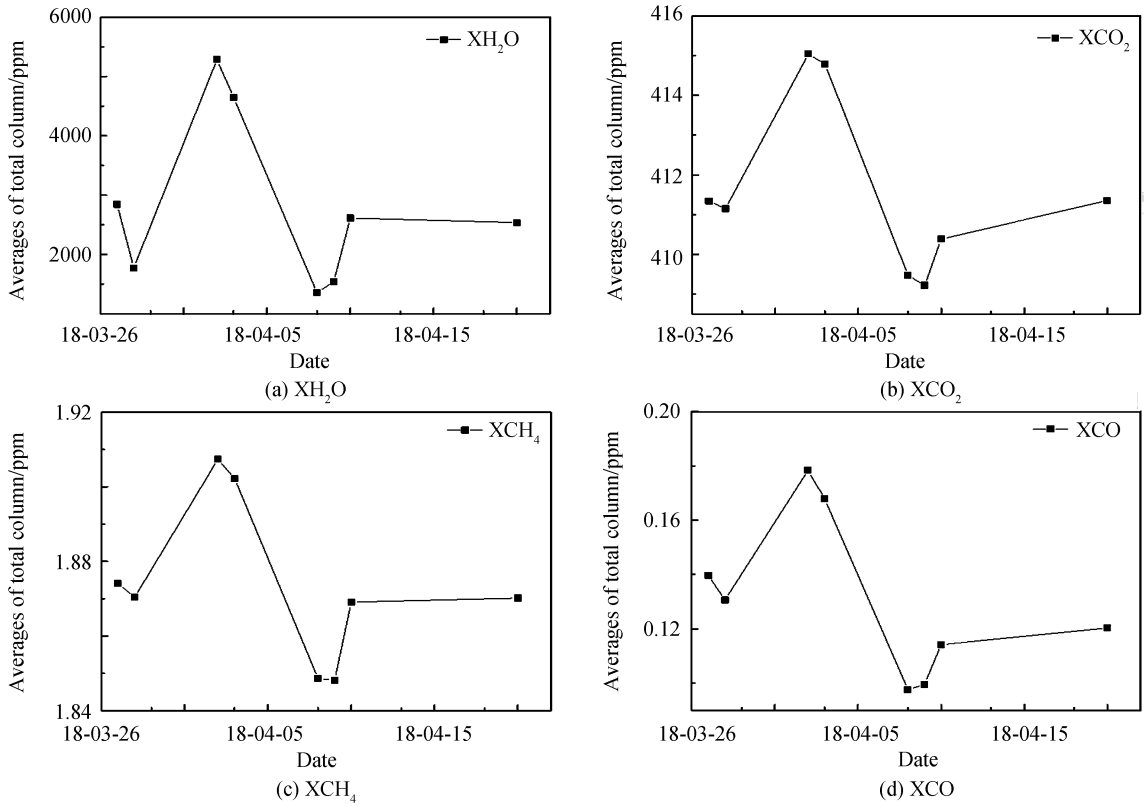


图 6 XH<sub>2</sub>O、XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 和 XCO 平均柱浓度的变化

Fig.6 Averages of total column of XH<sub>2</sub>O, XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub> and XCO

表 6 XH<sub>2</sub>O、XCO<sub>2</sub>、XCH<sub>4</sub> 及 XCO 平均值及标准差

Table 6 Averages and standard deviation of XH<sub>2</sub>O, XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub> and XCO

Time	Molecule	XH <sub>2</sub> O		XCO <sub>2</sub>		XCH <sub>4</sub>		XCO	
		Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD	Mean	SD
18-03-27		2 844.25	98.5	411.34	0.40	1.87	0.005 03	0.139	0.002 83
18-03-28		1 772.82	141.6	411.15	0.49	1.87	0.003 66	0.131	0.002 89
18-04-02		5 289.43	149.2	415.05	1.15	1.91	0.007 78	0.178	0.006 67
18-04-03		4 647.44	56.1	414.79	0.46	1.90	0.001 88	0.168	0.002 96
18-04-08		1 353.17	119.4	409.47	0.26	1.85	0.001 81	0.098	0.001 35
18-04-09		1 535.74	237.8	409.22	0.44	1.85	0.001 44	0.099	0.003 04
18-04-10		2 613.78	337.1	410.38	0.34	1.87	0.007 55	0.114	0.004 72
18-04-20		2 534.87	321.7	411.36	0.46	1.87	0.002 23	0.120	0.004 47

### 3.2 测量结果与其它数据的对比

为了验证地基测量数据,将地基结果分别与 WACCM 模式计算值及 GOSAT 卫星数据进行对比分析,由于 WACCM、GOSAT 卫星只提供了  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  两种气体分子的柱浓度信息,因此只针对此两种分子柱浓度信息进行对比,WACCM 经纬度设置是以测量地合肥为中心,提取经纬度在  $\pm 1^\circ$  范围内的数据作为分析对象,GOSAT 数据的经纬度设置在  $\pm 1.5^\circ$  范围内。

图 7 给出了地基观测  $\text{XCO}_2$  结果与 WACCM 模式计算值的对比。从图中可以看出,在测量期间,地基测量值具有明显的变化趋势,其幅值在 409.22~415.05 ppm 之间变化,而 WACCM 模式计算值在测量期间几乎没有变化,均是在平均值 410.58 ppm 附近,两者之间绝对偏差最大相差 4.47 ppm(如 4 月 2 日),测量期间的平均值相差 1.01 ppm。与此同时,还将地基观测  $\text{XCH}_4$  结果与 WACCM 模式计算值进行了对比,如图 8 所示。从对比结果可以看出, $\text{XCH}_4$  结果与  $\text{XCO}_2$  结果相似,地基测量值也具有明显的变化趋势,其幅值在 1.848~1.907 ppm 之间变化,WACCM 模式计算值在 1.877 ppm 附近微小变化,两者之间绝对偏差最大相差 0.029 7 ppm。通过以上分析,WACCM 模式计算的结果不能描述  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  浓度的变化趋势,即不能研究  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  的源与汇。进一步验证地基观测结果,采用卫星 GOSAT 同期测量合肥地区的数据进行对比分析,如图 9 所示。

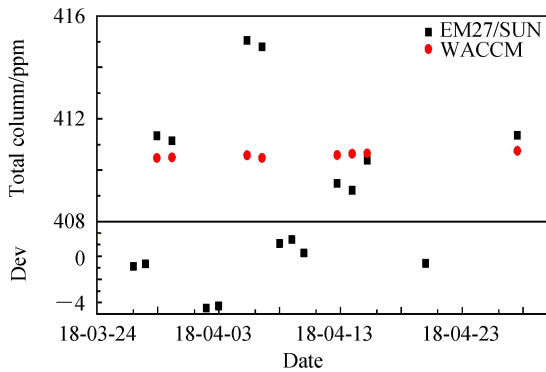


图 7 地基观测  $\text{XCO}_2$  结果与 WACCM 模式模拟值的对比以及绝对偏差

Fig.7 Comparison of  $\text{XCO}_2$  based on ground-based EM27/SUN with WACCM model and including absolute deviation

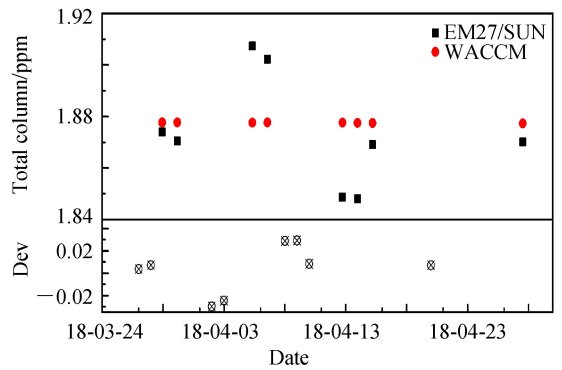


图 8 地基观测  $\text{XCH}_4$  结果与 WACCM 模式模拟值的对比以及绝对偏差

Fig.8 Comparison of  $\text{XCH}_4$  based on ground-based EM27/SUN with WACCM model and including absolute deviation

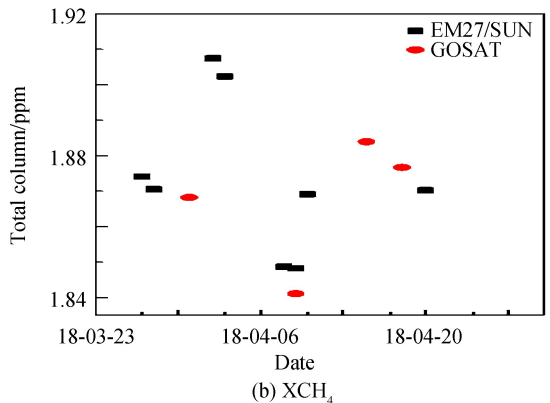
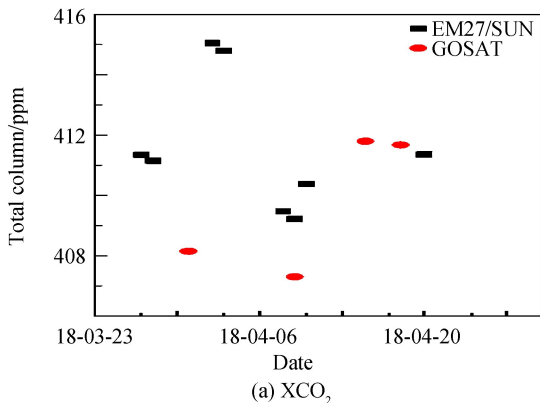


图 9 地基 EM27/SUN 观测和 GOSAT 卫星数据对比

Fig.9 Comparison of ground-based EM27/SUN with retrieved data from GOSAT satellite

由于卫星 GOSAT 过境周期是 3 天,且只记录天气晴朗的数据,卫星过境日期与测量日期不完全一致,但  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  两种气体分子柱浓度比较稳定。从图 9 可以看出,在测量期间,地基 EM27/SUN 与 GOSAT 卫星监测的  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  的柱浓度存在一定程度上的正相关,具有相似的变化趋势,地基傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 观测结果略高于 GOSAT 卫星反演结果(如 4 月 9 日),其原因是地基测量的精度更高,对浓度变化更为敏感。将测量期间两种监测的数据结果求平均值,地基观测  $\text{XCO}_2$  测量期间的平均值为



411.59 ppm, 卫星 GOSAT 遥感平均值为 409.73 ppm, 两者之间的相对偏差为 0.45%; 地基观测  $XCH_4$  平均值为 1.874 ppm, 卫星 GOSAT 遥感平均值为 1.867 4 ppm, 两种观测结果之间的相对偏差为 0.34%.

为进一步分析合肥地区春季(3、4、5月) $CO_2$ 、 $CH_4$ 柱浓度变化规律,提取了2010~2018年GOSAT卫星数据(3月、4月、5月平均值)以探究合肥地区春季温室气体浓度的变化趋势.图10是GOSAT卫星2009~2018年春季 $CO_2$ 、 $CH_4$ 的柱浓度变化规律.从图可以看出,春季 $XCO_2$ 、 $XCH_4$ 均是逐年增加的(除了2011年略低于2010年),9年内春季 $XCO_2$ 柱浓度从390.83 ppm(2011年)增加到410.30 ppm(2018年),增加了19.47 ppm,相对增长率为4.9%,春季 $XCO_2$ 的逐年增加量分别为:-1.14 ppm、5.88 ppm、1.39 ppm、1.01 ppm、3.08 ppm、3.10 ppm、2.59 ppm、2.41 ppm; $XCH_4$ 柱浓度从1.802 ppm增加到1.869 ppm,相对增长率为3.7%.从增加量可以看出,2017年、2018年的增加量略有减少.

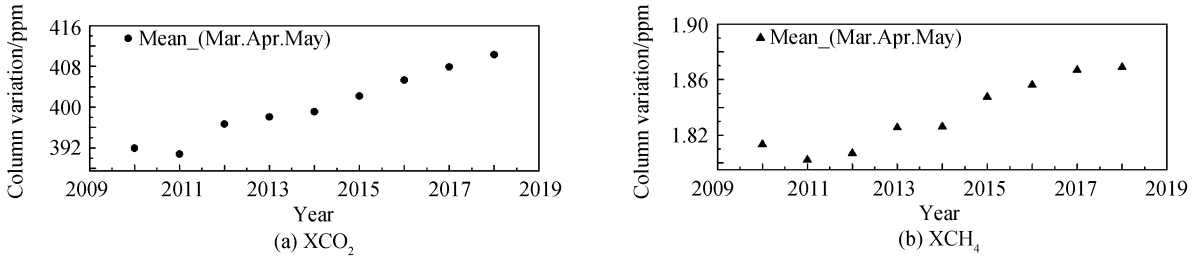


图10 GOSAT卫星2010~2018年春季 $CO_2$ 、 $CH_4$ 的柱浓度变化

Fig.10 Variation of  $XCO_2$  and  $XCH_4$  based on GOSAT satellites observation in the spring of 2010 to 2018

## 4 结论

连续采集近红外太阳吸收光谱,获得了2018年3月到4月合肥地区大气中的 $H_2O$ 、 $CO_2$ 、 $CH_4$ 及 $CO$ 柱浓度信息.将地基观测结果分别与WACCM及GOSAT卫星数据进行对比分析,并利用GOSAT卫星数据分析了2010~2018年春季 $CO_2$ 、 $CH_4$ 柱浓度的变化趋势,结果表明:

1)在测量期间,地基观测合肥地区 $H_2O$ 、 $CO_2$ 柱-平均干空气混合比( $XH_2O$ 、 $XCO_2$ )变化较大, $XH_2O$ 在1 353.17~5 289.43 ppm区间变化, $XCO_2$ 在409.22~415.05 ppm区间变化; $CH_4$ 和 $CO$ 两种气体分子的柱浓度变化均较小,其标准差均在 $10^{-2}$ 数量级上; $XH_2O$ 、 $XCO_2$ 、 $XCH_4$ 和 $XCO$ 测量期间的平均值分别为2 109.10 ppm、411.59 ppm、1.87 ppm及0.13 ppm,首次同时获得四种气体分子的浓度信息.

2)WACCM模拟计算 $XCO_2$ 、 $XCH_4$ 的浓度比较稳定,均在平均值附件微小变化,GOSAT卫星观测值略低于地基EM27/SUN的观测值, $XCO_2$ 、 $XCH_4$ 相对偏差分别为0.45%和0.34%.WACCM模拟值不能描述温室气体 $XCO_2$ 、 $XCH_4$ 的变化趋势,GOSAT卫星观测对温室气体的源与汇的敏感性较差.

3)2010~2018年春季, $XCO_2$ 柱浓度从390.83 ppm增加到410.3 ppm,增加了19.47 ppm,相对增长率为4.9%; $XCH_4$ 柱浓度从1.802 ppm增加到1.869 ppm,相对增长率为3.7%. $CO_2$ 、 $CH_4$ 浓度逐年增加,需要密切关注温室气体的浓度变化趋势.

研究结果可为研究合肥地区温室气体的时空分布及其变化规律提供理论依据,并为大气辐射传输计算提供理论参考.

## 致谢

感谢德国卡尔斯鲁厄理工学院 Frank Hase 教授对光谱反演算法方面提供的帮助.

## 参考文献

- [1] RAO Rui-zhong. Modern atmospheric optics[M]. Beijing: Science Press, 2012:126. 饶瑞中,现代大气光学[M].北京:科学出版社 2012:126.
- [2] CHENG Si-yang, GAO Ming-gang, XU Ling, et al. Remote sensing of  $CH_4$  column concentration in atmosphere based on direct-sun infrared absorption spectroscopy[J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2014, **8**(48):0805002. 程巳阳,高闽光,徐亮,等.基于直射太阳红外吸收光谱技术的大气中 $CH_4$ 柱浓度遥测研究[J].量子电子学报,2014, **8**(48): 0805002.
- [3] WUNCH D, TOON G C, WENBERG P O, et al. Calibration of the total carbon column observing network using aircraft profile data[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2010, **3**:1351-1362.

- [4] MESSERSCHMIDT J, GEIBEL M C, BLUMENSTOCK T, *et al.* Calibration of TCCON column-averaged CO<sub>2</sub>: the first aircraft campaign over European TCCON sites[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**: 10765-10777.
- [5] PETERSE A K, WARNEKE T, FRANKENBERG C, *et al.* First ground-based FTIR observations of methane in the inner tropics over several years[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**: 7231-7239.
- [6] KIEL M, WUNCH D, WENNERBERG P O, *et al.* Improvement of the retrieval used for Karlsruhe TCCON data[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2015, **8**: 12203-12242.
- [7] KIEL M. Trace gas measurements from different spectral regions using FTIR spectroscopy[D]. Germany Karlsruhe: Karlsruhe Institute of Technology, 2016.
- [8] KIEL M, HASE F, BLUMENSTOCK T, *et al.* Comparison of XCO abundances from the total carbon column observing network and the network for the detection of atmospheric composition change measured in Karlsruhe[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, **9**: 2223-2239.
- [9] KIEL M, WUNCH D, WENNERBERG P O, *et al.* Improved retrieval of gas abundances from near-infrared solar FTIR spectra measured at the Karlsruhe TCCON station[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, **9**: 669-682.
- [10] 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**: 2303-2313.
- [11] 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**: 3047-3057.
- [12] GISI M, HASE F, DOHE S, *et al.* XCO<sub>2</sub>-measurements with a tabletop FTS using solar absorption spectroscopy[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2012, **5**: 2969-2980.
- [13] 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**: 3059-3068.
- [14] KLAPPENBACH F, BERTLEFF M, KOSTINEK J, *et al.* Accurate mobile remote sensing of XCO<sub>2</sub> and XCH<sub>4</sub> latitudinal transects from aboard a research vessel[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2015, **8**: 5023-5038.
- [15] SHAN Chang-gong, WANG Wei, LIU Cheng, *et al.* Detection of stable isotopic ratio of atmospheric CO<sub>2</sub> based on Fourier transform infrared spectroscopy[J]. *Acta Physica Sinica*, 2017, **66**(22): 220204.  
单昌功, 王薇, 刘城, 等. 基于傅里叶变换红外光谱技术测量大气中 CO<sub>2</sub> 的稳定同位素比值[J]. *物理学报*, 2017, **66**(22): 220204.
- [16] XU Xing-wei, WANG Wei, LIU Cheng, *et al.* Observations of total columns of CO based on solar absorption spectra [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2018, **38**(5): 1329-1334.  
徐兴伟, 王薇, 刘城, 等. 基于太阳吸收光谱观测大气一氧化碳柱总量[J]. *光谱学与光谱分析*, 2018, **38**(5): 1329-1334.
- [17] WANG Wei, TIAN Yuan, LIU Cheng, *et al.* Investigating the performance of a greenhouse gas observatory in Hefei, China[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2017, **10**: 2627-2634.
- [18] HASE F, HANNIGAN J W, COFFEY M T, *et al.* Inter-comparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy Radiative Transfer*, 2004, **87**: 25-52.
- [19] HASE F, BLUMENSTOCK T, WALSH P. 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**: 3417-3422.
- [20] HASE F, DROUIN B J, ROEHL C M, *et al.* Calibration of sealed HCl cells used for TCCON instrumental line shape monitoring[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2013, **6**: 3527-3537.
- [21] TIAN Yuan, SUN You-wen, XIE Pin-hua, *et al.* Observation of ambient CH<sub>4</sub> variations using ground-based high resolution Fourier transform solar spectrometry[J]. *Acta Physica Sinica*, 2015, **64**: 070704.  
田园, 孙友文, 谢品华, 等. 地基高分辨率傅里叶变换红外光谱反演环境大气中的 CH<sub>4</sub> 浓度变化[J]. *物理学报*, 2015, **64**: 070704.