

甲烷柱浓度红外高光谱遥感反演与验证

周敏强¹, 倪启晨^{1,2}, 王佳欣^{1,2}, 蔡兆男^{1,2}, 南卫东³, 王普才^{1,2}

1. 中国科学院大气物理研究所 碳中和研究中心, 北京 100029;

2. 中国科学院大学 地球与行星科学学院, 北京 100049;

3. 中国科学院大气物理研究所 香河大气综合观测试验站, 廊坊 065400

摘要: 甲烷 (CH₄) 浓度变化是当前气候变化研究中的一个焦点问题。红外高光谱遥感技术已经成为探测大气 CH₄ 浓度变化的重要技术手段。本文针对红外高光谱 CH₄ 地基遥感反演技术, 介绍了国际上重要的观测网络, 包括 TCCON (Total Carbon Column Observing Network), NDACC-IRWG (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change - the Infrared Working Group) 和 COCCON (Collaborative Carbon Column Observing Network), 讨论了这些观测网络的主要特点, 包括观测仪器、波段设置、反演算法、产品特性等。针对红外高光谱 CH₄ 浓度卫星遥感反演, 概述了国际上的 CH₄ 卫星遥感发展现状。同时, 以日本 GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite) 卫星为例, 探讨了卫星 CH₄ 遥感地基验证工作中的关键技术, 阐明了地基遥感对于卫星 CH₄ 遥感产品改进的重要性。最后, 利用 TCCON 香河站的观测资料, 对最新版的 TROPOMI (TROPOspheric Monitoring Instrument) 卫星 CH₄ 观测反演数据产品进行了地基验证, 表明在华北地区 TROPOMI CH₄ 柱浓度产品达到了其观测精度目标设定要求; TROPOMI 观测得到的 CH₄ 柱浓度年增长率要略高于 TCCON 的观测结果, 两者相差 0.263±0.172%/年; 地基与卫星的差值具有季节变化特征, 春季卫星的观测值大于 TCCON 观测值约 0.3%, 秋季卫星的观测值小于 TCCON 观测值约 0.2%。

关键词: 甲烷, 柱浓度, 地基傅里叶光谱, 卫星验证, TROPOMI

中图分类号: P407

引用格式: 周敏强, 倪启晨, 王佳欣, 蔡兆男, 南卫东, 王普才. XXXX. 甲烷柱浓度红外高光谱遥感反演与验证. 遥感学报, XX (XX): 1-18

Zhou Minqiang, Ni Qichen, Wang Jiaxin, Cai Zhaonan, Nan Weidong, Wang Pucai. XXXX. CH₄ column retrievals from ground-based and space-based infrared spectra and satellite validation. National Remote Sensing Bulletin, DOI:10.11834/jrs.20242530]

1 引言

地球大气中的甲烷 (CH₄) 是紧随二氧化碳 (CO₂) 之后的重要温室气体, 同时也是大气化学中最值得重视的含碳化合物之一 (王明星, 1991)。CH₄ 在大气中的浓度约为 1.9ppmv, 其全球增温潜势在百年尺度上是 CO₂ 的 28 倍, 辐射强迫占所有温室气体的 16%, 对地球系统的能量收支具有重要影响 (IPCC, 2014)。同时, CH₄ 又是一种化学活性气体, 在大气中容易被氧化形成氢氧化物和碳氢氧化物, 影响大气污染过程, 特别是促进对流层臭氧的生成 (Abernethy 等,

2021)。

19 世纪 80 年代, 由世界气象组织 (WMO) 组建了全球大气监测计划 (GAW), 开始了针对大气 CH₄ 浓度的系统性观测。随后美国大气海洋局 (NOAA) 也建立了全球 CH₄ 浓度观测网。在过去的几十年中, 大气中 CH₄ 浓度剧烈上升, 但也出现了短期波动。从 1980 年到 1999 年大气中的 CH₄ 浓度稳定上升, 2000 年至 2006 年 CH₄ 浓度基本保持不变; 而 2006 年之后又开始上升, 特别是 2020 年之后 CH₄ 的年增长率突破极值, 达到了 15~18 ppb/年 (https://gml.noaa.gov/ccgg/trends_ch4/; 2022 年 8 月 15 日)。大气中 CH₄ 约 60% 来自人为源

收稿日期: XXXX-XX-XX; 预印本: XXXX-XX-XX

基金项目: 国家自然科学基金项目(编号: 42205140; 41975035); 国家重点研发计划(编号: 2021YFB3901000)

第一作者简介: 周敏强, 研究方向为大气温室气体遥感。E-mail: minqiang.zhou@mail.iap.ac.cn

通信作者简介: 周敏强, 研究方向为大气温室气体遥感。E-mail: minqiang.zhou@mail.iap.ac.cn

排放, 主要包括煤炭、天然气和石油生产运输、垃圾填埋、废水处理、牲畜、稻田等, 其余约40%则是自然源排放, 主要包括湿地、海洋、冻土和白蚁等 (Kirschke等, 2013)。在全球范围内, 城市的 CH_4 排放占了人为源总排放的70%以上 (Hopkins等, 2016)。相比于复杂多样的 CH_4 排放源, 大气中 CH_4 的清除机制相对简单。对流层中 CH_4 与OH自由基的氧化、干燥土壤中生物氧化以及在平流层的损失是其主要汇。其中, CH_4 与OH自由基氧化是 CH_4 最大的汇, 占77% (张定媛和廖宏, 2015; IPCC, 2014)。

传统的地基观测精度高, 但站点数量有限、空间代表性不够, 难以获得 CH_4 浓度的全球分布特征。随着光学技术、计算机技术、空间技术与通讯技术的快速发展, 光学遥感在近30年被越来越多地应用于大气探测领域 (刘文清等, 2016; 2022)。 CH_4 的特征吸收线主要在短波红外和热红外波段, 因此通过观测太阳短波辐射或者大气热辐射, 能够反演获得 CH_4 整层柱浓度或者垂直廓线。卫星遥感能够提供全球覆盖的观测数据, 特别是在一些高海拔地区、极地地区、海洋上空等传统的地面观测很难获取资料的地方, 能够提供宝贵的观测数据, 用于支撑全球 CH_4 循环研究 (Maasakkers等, 2022; Jacob等, 2022)。由于卫星观测的光谱信噪比较低, 易受到来自地表、云、气溶胶等参数的干扰, 导致 CH_4 浓度的观测误差较大。因此, 卫星的 CH_4 观测数据需要地基观测进行误差订正。

为了提供可靠的卫星 CH_4 地基验证资料, 科学家们通过近二十年的努力, 建立了高精度的地基 CH_4 遥感观测网络。当前, 国际上几乎所有卫星的 CH_4 产品都采用地基 CH_4 遥感资料进行误差订正后再进行发布。本文将重点介绍 CH_4 浓度的地基遥感反演, 同时以日本TOSAT (Thermal And Near-infrared Sensor for carbon Observation) 为例介绍卫星 CH_4 的产品验证/订正工作, 最后结合中国科学院大气物理研究所香河综合大气观测试验站 (香河站), 介绍近期的地基红外高光谱 CH_4 反演研究以及相关的卫星验证工作。

2 地基傅里叶红外高光谱 CH_4 遥感网络

当前国际上用于温室气体地基遥感观测的设

备主要是傅里叶高分辨率红外光谱仪 (Fourier Transform Infrared spectrometer, FTIR)。相比于卫星观测太阳反射光或者散射光, 地基FTIR观测太阳直射辐射, 光谱的信噪比高, 气溶胶散射的干扰弱, 同时地基FTIR的观测方式不受地表影响。基于地基FTIR的观测技术, 国际上建立了全球碳柱总量监测网络 (TCCON, Total Carbon Column Observing Network)、大气成分变化观测网-红外工作组 (NDACC-IRWG, Network for the Detection of Atmospheric Composition Change - the Infrared Working Group) 和碳柱总量协作观测网络 (COCCON, Collaborative Carbon Column Observing Network)。三个地基遥感网络均可以测量包括 CH_4 在内的多种痕量气体, 但在使用的仪器设置、观测波段、反演算法等方面各有特点。表1列出了TCCON、NDACC-IRWG、COCCON的主要仪器、产品、算法等信息。

2.1 TCCON

2004年由美国加州理工大学 (Caltech) 发起, 二十多个国际团队加入并成立的TCCON观测网, 已经成为了国际上最重要的地基温室气体遥感观测网。TCCON要求各站点必须采用德国Bruker公司的IFS 125HR傅里叶红外光谱仪, 并且采用统一的光谱反演软件 (GGG), 从而获得 CO_2 、 CH_4 、 CO 、 HF 、 HCl 、 N_2O 、 O_2 、 H_2O 、 HDO 等气体柱浓度, 用于全球碳循环的研究以及为温室气体卫星观测产品提供地基验证基准数据集。截止2022年9月, TCCON在全球范围内共有28个标准站点。TCCON站点在欧洲和北美洲分布密集, 其次是东亚 (主要集中于日本、韩国) 和大洋洲, 在亚洲大陆、非洲和南美洲站点非常稀疏。中国有2个站加入了TCCON, 分别是: 中国科学院安徽光学精密机械研究所 (合肥站) 以及中国科学院大气物理研究所 (香河站)。TCCON测量近红外太阳光谱 ($3900\text{--}18000\text{ cm}^{-1}$), 光谱分辨率为 0.02 cm^{-1} , 用于 CH_4 的反演波长范围为 $5880\text{--}6145\text{ cm}^{-1}$ 。

GGG软件是由美国宇航局 (NASA) 喷气推进实验室 (JPL) 的Geoff Toon博士主导, 国际间多个TCCON成员共同开发完成的。GGG软件包含了从大气层顶到地表的大气辐射传输过程模拟 (逐线积分前向模型) 和从观测光谱到大气浓度计

算的反演模块 (最优估计反演模型)。GGG 软件从 TCCON 建立初到现在一共经历了 4 个版本 (分别为 GGG2009, GGG2012, GGG2014 和 GGG2020), GGG 版本更新主要是优化大气分子吸收光谱库、反演参数、先验廓线、太阳光谱、仪器参数等。在最新的 GGG2020 软件中, CH_4 先验廓线来自 NASA 全球模式仿真实验室为地基观测系统建立的稳定 GEOS 模型 (GEOS-FPIT), 大气分子吸收光谱库在最新的 HITRAN2020 (Gordon

等, 2022) 的基础上加入了 CH_4 分子的速度相关性和线混合 (qSDV+LM) (Mendonca 等, 2017), 太阳光谱从基于地基、空基、天基的多平台观测光谱中计算获得 (Toon 等, 2022)。相比于之前的版本, GGG2020 首次在前向模型中加入了仪器参数 (由实验室的氯化氢标准气体观测获得), 从而实现模拟的光谱与仪器参数的耦合, 减少了由于仪器光学元件造成的观测误差。

表 1 TCCON、NDACC-IRWG、COCCON 的观测仪器、产品及反演算法等关键参数

Table 1 Key parameters of TCCON, NDACC-IRWG and COCCON instruments, products and retrievals algorithms

特性	TCCON	NDACC-IRWG	COCCON
主要 FTIR	Bruker IFS 125HR	Bruker IFS 120/125HR Bruker IFS 120/125M ABB Bomen DA8	Bruker EM27/SUN
探测器	1 个硅 (Si) 和 1 个铟镓砷 (InGaAs)	1 个碲化铟 (InSb) 和 1 个碲化镉 (MCT)	2 个铟镓砷 (InGaAs)
主要监测气体	CO_2 , CH_4 , H_2O , O_2 , HDO , HF , CO , N_2O	O_3 , HNO_3 , HF , HCl , CO , CH_4 , N_2O , ClONO_2 , HCN , C_2H_6	CO_2 , CH_4 , H_2O , O_2 , CO
反演算法	GGG2020	SFIT4/PROFFIT	PROFFAST
先验廓线	GEOS-FPIT	WACCM	GEOS-FPIT
CH_4 反演波段 (cm^{-1})	5872.0~5988.0 5996.45~6007.55 6007.0~6145.0	2611.6~2613.35 2613.7~2615.4 2835.55~2835.8 2903.82~2903.925 2941.51~2942.22	5897.0~6145.0
光谱分辨率 (cm^{-1})	0.02	0.0035	0.5
产品类型	柱总量	垂直廓线和柱总量	柱总量
CH_4 柱总量观测误差	系统误差 <0.1% 随机误差 <0.5%	系统误差 <0.2% 随机误差 <1.0%	系统误差 <0.1% 随机误差 <0.5%
备注	CH_4 的地基遥感观测标准, 与 WMO 的温室气体观测精度对接; 30 大气整层的 CH_4 浓度变化敏感	具有一定的垂直信息层, 在对流层中上层有最佳的敏感信息。也能提供高精度的 CH_4 柱浓度信息	对 TCCON 的全球观测具有很好的补充, 可以获得与 TCCON 精度相当的 CH_4 柱浓度, 能进行组网观测
参考文献	Wunch 等, 2011	De Mazière 等, 2018	Frey 等, 2019

GGG 反演软件的核心是 GFIT 反演算法。GFIT 是一种非线性最小二乘拟合算法, 采用了先验廓线整体缩放的反演方案, 即在求解最优估计的过程中, 默认廓线的形状是准确的, 只进行倍数缩放。显然, 这种方案只能得到 CH_4 柱总量, 无法反

演垂直廓线。 CH_4 柱总量 TC_{CH_4} 可以定义为:

$$TC_{\text{CH}_4} = \int_{z_1}^{\infty} f_{\text{CH}_4}(z) \cdot n(z) dz \quad (1)$$

其中, $f_{\text{CH}_4}(z)$ 为 CH_4 的干空气摩尔比浓度, $n(z)$ 为干空气分子数浓度廓线。

GGG反演算法通过氧气吸收带（7885 cm^{-1} ）反演获得氧气柱总量，利用大气中氧气的干空气混合比几乎不变（0.2095）的特性，计算干空气的柱总量，从而获取 CH_4 的干空气摩尔比浓度（ X_{CH_4} ）。

$$X_{\text{CH}_4} = 0.2095 \times \frac{TC_{\text{CH}_4}}{TC_{\text{O}_2}} \frac{1}{\alpha [1 + \beta \cdot SBF(\theta)]} \quad (2)$$

通过 CH_4 和 O_2 气体柱总量比值的方法，可消除由地表气压、温度廓线、仪器噪声等引起的共同误差，进而提高了 X_{CH_4} 的反演精度。除此之外，TCCON反演得到的 X_{CH_4} 还通过跟飞机、气球、长管观测的 CH_4 高精度廓线对比，进行误差订正，包括系统偏差订正（ α ）以及由太阳天顶角引起的误差 $\beta \cdot SBF(\theta)$ （Wunch等，2011；Zhou等，2019），GGG2020的 X_{CH_4} 反演系统误差和随机误差分别为<0.1%和<0.5%。

2.2 NDACC-IRWG

NDACC-IRWG在全球共有21个站点，相较于TCCON严格的设备要求，NDACC-IRWG则相对宽松，目前NDACC-IRWG的观测设备主要有Bruker IFS 120/135HR、Bruker IFS 120/125M、Bruker Vertex 7/80和ABB Bomem DA8等。NDACC-IRWG观测中红外至热红外波段的太阳直射光谱（800~4500 cm^{-1} ），光谱分辨率为0.0035~0.0070 cm^{-1} 。

NDACC-IRWG采用SFIT4或者PROFFIT反演算法，来进行目标气体的垂直廓线反演。两种反演算法都包含了基于逐线积分的大气辐射传输模型，以及基于最优估计的反演模型，不同于GGG算法的柱浓度反演，SFIT4和PROFFIT都是采用廓线反演模型。SFIT4和PROFFIT的反演模型输入的大气状态数据（温度、压强、湿度垂直廓线）来自NCEP（National Center for Environmental Prediction）的6小时再分析资料，先验廓线数据来自大气气候模式（Whole Atmosphere Community Climate Model, WACCM）的模拟结果。Hase等（2004）对SFIT和PROFFIT两种算法做了详细的模型比较，结果表明通过这两种算法获得的 CH_4 反演结果非常接近，相对偏差可以忽略不计。

此外，由于NDACC-IRWG观测的中-热红外波段缺少氧气吸收波段（Ji等，2020），无法通过反演氧气的浓度来计算大气干空气质量。因此，NDACC-IRWG采用替代方法，利用地表气压和大

气湿度廓线来计算大气干空气质量，进而计算 CH_4 的干空气柱平均混合比 X_{CH_4} 。

$$X_{\text{CH}_4} = \frac{TC_{\text{CH}_4}}{P_s} \frac{g m_{\text{air,dry}}}{TC_{\text{H}_2\text{O}} m_{\text{air,dry}}} \quad (3)$$

其中， $TC_{\text{H}_2\text{O}}$ 是水汽柱总量， P_s 是地表气压， g 是平均重力加速度， $m_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 $m_{\text{air,dry}}$ 分别是水汽和干空气的摩尔质量。相比于TCCON的比值方法，NDACC-IRWG的 X_{CH_4} 计算值受地表气压的影响大。NDACC-IRWG的大部分站点都安装有高精度的地表气压传感器，地表压强的观测精度优于0.3hPa，对 X_{CH_4} 造成的误差小于0.03%（约0.6ppb）。

值得注意的是，SFIT4和PROFFIT的算法中都没有加入系统偏差订正模块，即没有采用飞机、气球等高精度廓线观测去订正其系统误差。NDACC-IRWG要求各站点发布的产品采用最优估计理论（Rodgers，2000），报告平滑误差、模式参数误差、观测误差等。针对 X_{CH_4} ，NDACC-IRWG发布的系统误差和随机误差分别为<3.0%和<1.0%。虽然报告的系统误差较高，但通过国际多个站点TCCON和NDACC-IRWG的平行对比分析表明，NDACC-IRWG的 X_{CH_4} 实际系统误差要远小于其报告的误差，在0.2%之内（Ostler等，2014；Zhou等，2018）。

2.3 COCCON

COCCON采用可移动式FTIR，进行大气中温室气体柱浓度观测，目的是将现有TCCON的覆盖范围扩大到基础设施差、不容易维护的偏远地区，来对卫星观测进行地基验证，也用来量化城市区域和重要点源的温室气体排放（Vogel等，2019；Frey等，2019；Dietrich等，2021）。COCCON目前的主要观测设备为Bruker EM27/SUN，观测近红外太阳直射光谱（4000~9000 cm^{-1} ），光谱分辨率为0.5 cm^{-1} 。通过仪器的光路标定后，COCCON的 CH_4 柱浓度可以达到与TCCON相当的观测精度。并且，通过多年的对比实验发现，便携式 CH_4 观测资料具有良好的稳定性，不存在随时间的显著漂移（Frey等，2015；2019）。

COCCON的反演算法主要采用PROFFAST算法，目前更新到V2.2版本，它是由德国卡尔斯鲁厄理工学院（KIT）的Frank Hase博士团队在

PROFFIT基础上开发的加速反演算法。算法的核心包括: 1) 进行干涉光谱基线订正, 消除云与气溶胶引起的慢变化信号 (Keppel-Aleks 等, 2007), 再利用快速傅里叶变换得到辐射光谱; 2) 通过每日的温湿度廓线建立分子吸收的光谱查找表; 3) 将同一天的几百条观测光谱进行总量反演, 获得 CH_4 和 O_2 的柱浓度; 4) 采用与 GGG 一样的方法 (公式 2) 来计算 XCH_4 , 并进行误差订正。

跟 GGG 类似, PROFFAST 软件也加入了误差订正模块, 用于消除系统偏差和由太阳高度角引起的观测误差。在 ESA 的支持下, COCCON 团队在多个 TCCON 站点都进行了 Bruker IFS 125HR 和 Bruker EM27/SUN 的平行对比实验 (芬兰 Sodankyla; 德国 Karlsruhe; 法国 Paris 等), COCCON 的 CH_4 柱浓度系统误差和随机误差分别为 $<0.1\%$ 和 $<0.5\%$ (Sha 等, 2020)。

3 CH_4 卫星遥感与验证

3.1 CH_4 卫星遥感发展现状

自 1990 年以来, 卫星遥感在大气成分监测中的应用越来越广泛。美国、欧盟、日本、中国等陆续发射了多颗大气 CH_4 探测卫星。根据卫星的观测方式可以分为天底、临边、掩星三种类型, 其

中临边和掩星的观测方式类似, 如 Envisat/MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) 和 SCISAT-1/ACE-FTS (Atmospheric Chemistry Experiment Fourier Transform Spectrometer), 能够获得对流层之上的 CH_4 垂直廓线信息, 垂直分辨率可达 3-4km (De Mazière 等, 2008; von Clarmann 等, 2009)。天底观测模式有较高的空间分辨率, 能获得整层大气 CH_4 柱总量。

这里主要介绍天底观测模式的 CH_4 观测卫星。目前在轨运行的 CH_4 观测卫星及相关载荷主要有 GOSAT-1/2 上的 TANSO-FTS (短波红外波段)、S5P 上的 TROPOMI (短波红外波段)、MetOp 系列上的 IASI (热红外波段) 以及 Aqua 卫星上搭载的 AIRS (热红外波段)。表 2 列出了这些 CH_4 观测卫星的详细信息。短波红外与热红外波段的观测方式各有优劣, 相互补充。短波红外对近地面的 CH_4 浓度变化敏感, 利于排放源的识别, 但是短波红外的光源来自太阳, 因此只能在白天观测, 而且由于波长较短, 易受到薄层卷云和气溶胶散射干扰。热红外波段通过地表和大气自身发射的热辐射作为光源, 无需太阳光源, 可以实现昼夜观测, 但由于 CH_4 在热红外波段的吸收线强, 反演的 CH_4 敏感层位于对流层中高层, 不利于排放源的识别。

表 2 主要的天底 CH_4 观测卫星
Table 2 Main nadir CH_4 satellites

卫星	GOSAT	S5P	METOP	Aqua	PRISMA	MERLIN
搭载探测器	TANSO-FTS	TROPOMI	IASI	AIRS	成像仪	IPDA 雷达
发射时间	2009年1月	2017年10月	2006年10月	2002年5月	2019年3月	计划2024年
观测方式	被动	被动	被动	被动	被动	主动
过境时间	13:00	13:30	9:30/21:30	1:30/13:30	10:30	06:00/18:00
幅宽 (km)	790	2600	2200	1650	30	0.1
重访周期 (d)	3	16	29	16	4	28
CH_4 探测窗口 (μm)	1.56~1.72	2.31~2.39	7.75~8.06	7.75~8.06	2.3	1.64555/1.64585
光谱分辨率*	0.27~0.5 cm^{-1}	0.25~1 nm	0.3~0.5 cm^{-1}	0.5~2 cm^{-1}	10 nm	0.3nm
星下点分辨率	10.5km	5.5×7 km^2	12 km	13.5 km^2	30×30 m^2	0.15×0.15 km^2

注: *注:表中的光谱分辨率的单位可通过 $d\nu = \frac{\nu}{\lambda} d\lambda$ 实现 nm 和 cm^{-1} 的相互转换

如何在短波红外波段实现全天候、高精度的 CH_4 柱浓度观测成为了科学家们亟需解决的问题。由法国-德国联合研发的 MERLIN (Methane Remote Sensing Lidar Mission) 预计在 2024 年发

射, 将搭载集成路径差分吸收激光雷达 (IPDA LIDAR) 系统 (Pierangelo 等, 2016)。与传统的被动遥感卫星不同, MERLIN 将使用 IPDA 激光雷达向地球表面发射激光脉冲, 然后接收反射回来

的激光信号,反演大气中的 CH_4 浓度。发射的激光脉冲包含两个位置上的波长,其中一个波长聚焦在 CH_4 吸收线上,另一个则在无 CH_4 吸收的波长上,鉴于这两个波长位置足够接近,大气和地表等其他干扰参数对两个波长上的影响几乎是相同的,这样就可以利用差分吸收的原理计算 CH_4 的分子数密度。主动激光探测技术的优势在于:一方面不依赖于太阳光,可以实现全天候的观测,另一方面是受云和气溶胶的影响较小,即使在有云的地区也能进行观测。这在很大程度上弥补了传统 CH_4 探测卫星的不足。得益于该技术, MERLIN可以解决传统被动 CH_4 探测卫星受日照时间限制的问题,缓解云、气溶胶对采样像素的干扰,实现全球全天候的高精度 CH_4 探测。

除了专门用于 CH_4 观测的红外高光谱卫星载荷外,科学家还成功利用中分辨率的成像仪进行 CH_4 浓度反演,包括意大利航天局发射的PRISMA (PRecursore IperSpectral della Missione Applicativa) 卫星、中国高分五号 (GF-5) 和资源一号 (ZY1) 卫星上的先进高光谱成像仪 (AHSI, Advanced Hyperspectral Imager)、Sentinel-2 以及 Landsat 多光谱卫星等。这些载荷覆盖大约 400–2500 nm 范围的太阳光谱波段,典型光谱分辨率为 5–10 nm,空间分辨率可达十米级 (一般在红外波段表示波段范围或者分辨率时常以波数为单位,而在可见光波段则以波长为单位)。不同于之前介绍的专门用于温室气体遥感的高光谱载荷 (如 TROPOMI, GOSAT 等),中分辨率成像仪在 2300 nm CH_4 强吸收处“仅有”数十个光谱通道,但仍可以在 CH_4 高值区域获得排放信号。许多研究成果表明,这些高空间分辨率成像仪能够有效地识别石油、天然气和煤炭开采过程中的 CH_4 泄漏,并且用于测算 CH_4 的排放强度 (Guanter 等, 2021; Varon 等, 2021; Takulis–Loitxate 等, 2021)。Sherwin 等 (2022) 在一定的地面和风力条件下进行了一系列控制模拟实验,并确认了 Sentinel-2、Landsat 以及 PRISMA 可以量化低至 1400–4000 kg h^{-1} 范围的排放量。Jacob 等 (2022) 对包括多种中分辨率成像仪在内的具有点源排放识别能力的载荷进行了详细介绍,并总结了各载荷的探测阈值。

当前, CH_4 的卫星光学遥感技术正在朝着更细的空间分辨率、更大的空间覆盖范围、更高的光

谱信噪比以及主被动相结合的方向发展。随着卫星遥感数据的日益增多,也有越来越多的工作采用遥感观测资料进行全球/区域的 CH_4 通量计算 (Bergamaschi 等, 2013; Alexe 等, 2015; Wang 等, 2019; Qu 等, 2021) 和 CH_4 排放强度的计算 (Pandey 等, 2019; Lauvaux 等, 2022; Tu 等, 2022)。因此,对 CH_4 的卫星遥感精度提出了很高的要求,也迫切需要相关验证工作来对卫星产品进行误差评估。

国际上针对 CH_4 卫星观测资料已经开展了大量的验证工作。对于 TANSO–FTS 和 TROPOMI 短波红外波段载荷,一般采用 TCCON 和 COCCON 观测资料进行验证,因为它们具有相近的观测波段,能获得相似的垂直敏感性 (Yang 等, 2020; Sha 等, 2021)。对于 AIRS 和 IASI 这类热红外波段载荷,通常采用 NDACC–IRWG 进行验证,同理,NDACC–IRWG 的观测波段与这些载荷接近,能够获得对流层中高层的 CH_4 变化信息 (De Wachter 等, 2017; García 等, 2018)。此外,卫星与卫星之间的对比也是一种常用的验证方式,如 Lorente 等 (2021) 将 TROPOMI 与 GOSAT 的 CH_4 柱总量进行了对比分析,订正了由地表反射率引起的 TROPOMI CH_4 柱总量反演误差。

3.2 GOSAT CH_4 遥感反演与验证

由于 GOSAT 卫星是第一颗成功发射的专门用于温室气体的高光谱近红外观测卫星,在轨时间长,积累了大量的遥感反演与验证工作。因此,本节以 GOSAT 卫星为例,详细梳理了该卫星的 CH_4 遥感以及地基验证工作。

由于 TANSO–FTS/GOSAT 的 Level 1 光谱数据对全球科学团队开放,多个国际团队开发了相对独立的 CH_4 反演算法 (表 3)。主要包括荷兰空间研究中心 (SRON) 和德国卡尔斯鲁厄科技研究中心 (KIT) 合作开发的全物理算法 (SRFP) 及代理算法 (SRPR) (Blatz 等, 2010; Schepers 等, 2012); 莱斯特大学开发的全物理算法 (OCFP) 及代理算法 (OCPR) (Parker 等, 2011; 2020) 以及日本国家环境研究所开发的 NIES 算法 (Yoshida 等, 2011; 2013)。这些算法基本可以分为两大类,即“全物理”算法和“代理”算法。二者最主要的区别在于对气溶胶以及卷云散射引起的光路修改处理上有所不同。“全物

理”算法会通过在前向模型中加入气溶胶/云模型,从而模拟大气散射过程,除了反演 CH_4 浓度以外也会同步反演气溶胶/云信息 (Butz 等, 2010; 2011)。“代理”方法则是假定大气中不存在气溶胶/云的散射,同步反演 CO_2 和 CH_4 ,并将 CO_2 作为参考气体,利用反演的 CH_4/CO_2 柱浓度比值订正光学路径,从而消除气溶胶/云散射的影响 (Schepers 等, 2012),最终的 X_{CH_4} 是用先验的 X_{CO_2}

乘以 CH_4/CO_2 的比值得到的。即

$$X_{\text{CH}_4} = \frac{TC_{\text{CH}_4}}{TC_{\text{CO}_2}} \times X_{\text{CO}_2} \quad (4)$$

其中 TC_{CH_4} 和 TC_{CO_2} 代表在无散射假设情况下反演获得的 CH_4 和 CO_2 的柱总量 (单位 molecules/cm²), X_{CO_2} 是先验的 CO_2 空气柱平均摩尔分数,一般由碳循环模式提供,如 CarbonTracker 数据同化系统等。

表3 TANSO-FTS/GOSAT 短波红外卫星的主要 CH_4 反演算法

Table 3 Main CH_4 retrieval algorithms of TANSO-FTS/GOSAT

算法	机构	所用碳循环模式	核心区别	参考文献
SRFP (全物理)	SRON/KIT	—	根据 TANSO-CAI L2 云产品进行云剔除;在前向模型中加入了简易气溶胶/云模型 (光学厚度、标高、粒子尺度参数),从而模拟大气散射过程	Butz 等 (2010)
SRPR (代理)	SRON/KIT	CarbonTracker	在 SRFP 的基础上用 $X_{\text{CH}_4}/X_{\text{CO}_2}$ 的比值订正光学路径,从而消除气溶胶/云散射的影响	Schepers 等 (2012)
OCFP (全物理)	UoL	—	通过 $\text{O}_2\text{-A}$ 带的吸收选择晴空像元;辐射传输模式包括 LIDORT 和二阶散射矢量辐射传输模型,并使用低流内插来进行加速;选取了 4 种散射的气溶胶廓线与气体同步反演	Parker 等 (2011)
OCPR (代理)	UoL	GEOS-Chem, CarbonTracker 和 CAMS 三个模式产生的估计值的中位数 (Parker 等, 2020)	在 OCFP 的基础上用 CH_4/CO_2 的比值订正光学路径,从而消除气溶胶/云散射的影响	Parker 等 (2011)
NIES (全物理)	NIES	—	采用 TANSO-CAI 的云产品进行云剔除;反演的状态向量中包含粗、细两个模态的气溶胶廓线	Yoshida 等 (2011; 2013)

目前所有的基于 GOSAT 卫星的 CH_4 反演算法均在一定程度上使用 TCCON 资料进行了地基验证 (Morino 等, 2011; Butz 等, 2011; Parker 等, 2011; Schepers 等, 2012; Yoshida 等, 2013; Dils

等, 2014; Zhou 等, 2016; Buchwitz 等, 2017; Parker 等, 2020)。表 4 列出了各个验证工作所用的反演算法、数据覆盖范围、时空匹配方法、是否有平滑误差/高度订正以及主要结论。

表4 基于 GOSAT 卫星各种算法的 CH_4 验证工作

Table 4 CH_4 satellite validation of various algorithms for GOSAT

研究者	产品算法 (版本)	TCCON 站点数 (GGG 版本)	时空匹配	平滑误差/高度订正	统计结果 (GOSAT-TCCON)	主要结论
Morino 等 (2011)	NIES (V01.XX)	9 (GGG2009)	0.5~1.5 度 ±30min ±2度 ±1h ±5度 ±1h	无	-20.4±18.9ppb (-1.2±1.1%) -15.8±22.3ppb (-0.89±1.26%) -14.8±22.6ppb (-0.83±1.27%)	相比 V.00.yy, 现版本反演精度有所提升;还需考虑气溶胶和卷云的影响。
Yoshida 等 (2013)	NIES (V02.XX)	13 (GGG2012)	±2度 ±30min	无	-5.9ppb±12.6ppb 各站点偏差均值 -2.2ppb 各站点偏差标准差 7.3ppb	相比于 V01.XX, 精度有所提升;需要更精确分析 TANSO-FTS 的 L1B 非线性响应。

续表

研究者	产品算法 (版本)	TCCON 站 点数 (GGG 版本)	时空匹配	平滑误差/高度订正	统计结果 (GOSAT-TCCON)	主要结论
Butz 等 (2011)	SRFP	6 (GGG2009)	± 5 度 ± 2 h	无	-0.3% \pm 0.26% 各站点偏差均值 -0.3% 各站点偏差标准差 -0.26% 各站点散度平均值 0.015ppm 各站点平均偏差 -17~2ppb (0.1~0.9%)	相比于 Morino 和 Yoshida 的结果有很大改善,特别是标准偏差降到了 1% 以内。
Parker 等 (2011)	OCPR	6 (GGG2009)	± 5 度 ± 2 h	评估了平滑误差的影响	各站点标准偏差 7~15ppb (0.4~0.8%) 平滑误差差异最大值可达 17.4ppb	GOSAT XCH ₄ 产品精度达到任务要求且 GEOS-Chem 模型在年、月时间尺度上均比较一致,二者的差异主要体现在一些关键源排放地区。
Schepers 等 (2012)	SRFP SRPR	12 (GGG2009)	± 5 度 ± 2 h	无	TCCON-GOSAT SRFP 各站点偏差均值 -0.37% 各站点偏差标准差 0.24% 各站点散度均值 17ppb SRPR 各站点偏差均值 -0.06% 各站点偏差标准差 0.22% 各站点散度均值 17ppb OCFP 0.4 \pm 18.1ppb RA 6.0ppb SRA 6.2ppb OCPR 7.0 \pm 14.0ppb RA 2.7ppb SRA 5.4ppb	二者均可以在气溶胶场景下反演 CH ₄ 浓度,误差在 1% 以内,但都需要进行后验过滤。
Dils 等 (2014)	OCFP OCPR (V3.2) SRFP SRPR (V1.1)	10 (GGG2012)	半径 500km 圆形 范围内 ± 2 h	使用 TCCON 先验廓线作为公共廓线来消除不同先验信息的影响	SRFP -2.5 \pm 14.9ppb RA 3.0ppb SRA 5.7ppn SRPR 3.1 \pm 14.6ppb RA 4.2ppb SRA 6.2ppb	GOSAT XCH ₄ 的精度范围在 18.1~14.0ppb 之间;在季节相对准度(SRA)方面,所有产品均达到了小于 10ppb 的阈值。
Zhou 等 (2016)	NIES (v02.21) SRFP (v2.3.5) SRPR (v2.3.5)	5 (GGG2014)	± 5 度 ± 2 h	同 Dils 等(2014) 且考虑高度订正	海洋上 NIES 0.02% \pm 0.11% SRF 0.04% \pm 0.65% SRPR -0.03% \pm 0.81% 陆地上 NIES -0.35% \pm 0.69% SRFP 0.2% \pm 0.74% SRPR -0.06% \pm 0.7%	NIES, SRFP 和 SRPR 的 XCH ₄ 产品偏差小于 10ppb,标准差小于 34ppb。GOSAT 洋面耀斑 XCH ₄ 产品的相对偏差要优于附近的陆地星下点产品的相对偏差。

续表

研究者	产品算法 (版本)	TCCON 站 点数 (GGG 版本)	时空匹配	平滑误差/高度订正	统计结果 (GOSAT-TCCON)	主要结论
Buchwitz 等 (2017)	SRFP (v2.3.7) SRFP (v2.3.7) OCPR (v6.0) OCFP (v1.0)	6 (GGG2014)	±4度 ±2h	同 Dils 等(2014)	OCFP 0.7±13.4ppb OCRR 6.5±11.9ppb SRFP -1.4±12.6ppb SRPR -2.6±12.8ppb	GOSAT XCH ₄ 反演满足地球气候观测系统(GCOS)的准确度要求(好于10ppb),甚至非常接近GHG-CCI小于5ppb的要求。
Parker 等 (2020)	OCPR (v9.0)	22 (GGG2014)	±5度 ±2h	无	总体平均偏差 9.06ppb 总体标准偏差(单次探测精度) 13.72ppb 站点间偏差标准差(相对准度) 3.89ppb	GOSAT OCPR (v9.0) XCH ₄ 产品与TCCON具有很好的 consistency, 单次探测精度和相对准度均达到了 Buchwitz 等 (2017a) 提出的“突破性”要求(分别为17ppb和5ppb)。

自从GOSAT的XCH₄产品发布以来,各个算法的对比验证工作一直在不断进行,通过与TCCON观测的对比验证,发现了卫星反演产品均不同程度地受到来自于地表、薄云、气溶胶、仪器等参数的干扰。通过改进卫星反演模型,使卫星的XCH₄观测值越来越接近于TCCON的观测值。虽然有关GOSAT卫星的地基验证已经开展了很多工作,但在验证过程中的时空匹配、平滑误差分析等验证策略各有不同(表4)。基于卫星CH₄地基验证过程中的主要几个关键参数,我们整理如下:

i) 统计参数

在卫星地基验证中使用哪些统计参数来评价验证结果还没有统一的规定,评价方式比较多样。表5列出了卫地基验证中常用的一些统计参数。对于单个站点而言,常用的有平均偏差、离散度(偏差的标准偏差)以及相关系数。对于所有站点而言,常用的有站点间平均偏差(各站点偏差的平均值)以及站点间变异性(各站点偏差的标准偏差),其中站点间平均偏差还涉及到加权方式,有些研究会根据各站点匹配到的数据量进行加权平均,有些则是认为各站点的权重相当,直接求平均。对于所有数据而言,即不考虑各个站点,常用到的还有单次探测精度,即所有数据的标准偏差。此外上述统计参数除了以绝对值(ppb为单位)的方式呈现,还可以用相对值来呈现。使用相对值的好处是可以避免各站点的XCH₄背景浓度差异对结果的影响。

表5 卫星地基验证中常用的统计参数

Table 5 Statistical parameters commonly used in ground-based satellite validation

统计参数	绝对值(ppb)	相对值(无量纲)
	$\text{diff} = X_{\text{GOSAT}} - X_{\text{TCCON}}$	$r_{\text{diff}} = (X_{\text{GOSAT}} - X_{\text{TCCON}}) / X_{\text{TCCON}}$
各站点平均偏差	mean(diff)	mean(r_diff)×100%
各站点离散度	std(diff)	std(r_diff)×100%
站点间平均偏差	mean(mean(diff))	mean(mean(r_diff))
站点间变异性	std(mean(diff))	std(mean(r_diff))
单次探测精度	std(diff) 所有数据	std(r_diff) 所有数据

ii) 星-地资料的时空匹配方式

GOSAT卫星与地基FTIR在同一时刻、对同一气柱进行观测构成了一组理想的TCCON-GOSAT数据对,然而现实观测中理想TCCON-GOSAT观测数据对的数量太少,无法获得稳健的统计分析结果,因此在验证工作中需要设置合理的时空匹配准则。时空匹配方式和匹配的数据量有关,如果匹配的数据量较少,会造成结果不稳定,缺乏统计意义,此时就需要增加时间窗口和空间范围,反之亦然。一般而言,在保证数据量具有统计意义的前提下,时间窗口和空间范围设置得越小,星-地资料的匹配度就越高,验证的结果可能会更精确。目前针对GOSAT卫星的CH₄地基验证,时空匹配方式还没有统一的标准,大多数研究使用了单个站点±5度和±2小时。这样的时空匹配方案能提供区域的CH₄观测精度,但无法评估GOSAT

卫星 CH_4 产品在小范围内（如 $<100 \text{ km}$ ）的空间梯度观测能力。

iii) 平滑误差订正和高度订正

Rodgers 和 Connor (2003) 论证了在进行地基与卫星遥感产品比较时, 需要考虑两者不同的先验廓线以及垂直敏感性 (平均核函数), 即需要进行先验廓线和平均核函数的订正。从表中可以看出, 对于 GOSAT XCH_4 的验证, 有些是直接对比卫星和地基的 XCH_4 资料, 有些评估了不同先验的影响, 还有一些则是采用统一的初始廓线消除先验的影响。早期的工作往往没有进行相关的误差订正, 而 Parker 等 (2011) 指出在 GOSAT 和 TCCON XCH_4 产品的对比中, 平滑误差具有站点相关性, 最大值可达 17.4 ppb 。在后期的工作中, 大部分验证工作都考虑了平滑误差订正。值得注意的是, 平滑误差订正包含先验廓线订正和平均核函数订正两个部分。目前为止, 针对于卫星 XCH_4 产品的平滑误差订正仅限于先验廓线的订正, 这是因为平均核函数的订正需要获取大气的真实状态信息, 而对于全球范围内的卫星数据验证来说, 全球大气的真实状态还难以获取。

由于卫星像元观测地面高度可能和地基 FTIR 位置高度不一致, 卫星观测的目标气体柱总量需要订正到与地面观测同一高度上才能进行合理的比较。在 GOSAT XCH_4 的验证工作中, 进行高度订正的工作比较少, 这可能是因为大多数 TCCON 站点都设置在地势平坦的地区, 因此高度订正的影响不大。然而在利用高山站 (如 Izaña; 海拔 2.37 km) 进行 GOSAT CH_4 的地基验证研究中, Zhou 等 (2016) 指出了如果不进行高度订正会引起 1% 的系统误差。

总之, 根据梳理的卫星验证中主要的几个方面 (统计参数、时空匹配、平滑订正和高度订正), 我们发现早期的卫星验证工作主要由各个卫星遥感团队来进行, 这就导致各项验证工作很难采用统一的验证方法, 在一定程度上影响验证结果, 同时也不利于不同算法之间的相互比较。为了改善这一点, 许多卫星计划 (如 TROPOMI, OCO) 专门设立了设立一个卫星地基验证小组, 开展相关的验证研究工作。针对不同的反演算法采用统一的验证策略, 可以更直接地体现出各种算法产品的优劣性, 便于发现各算法中存在的问题, 同时也为下级用户提供更清晰的产品评估报告。

其中, ESA 支持的温室气体气候变化倡议项目 (GHG-CCI) (Buchwitz 等, 2015) 旨在利用卫星数据生成满足全球气候观测系统温室气体基本气候变量要求的 CO_2 和 CH_4 数据产品。为了实现这个目标, 该项目针对 GOSAT XCH_4 几个候选算法 (SRFP、SRPR、OCF、OCPR) 进行了循环比较 (Dils 等, 2014; Buchwitz 等, 2017), 在此过程种使用相同的验证策略, 重点关注算法间的差异性。总的来说“代理”方法相比“全物理”方法反演速度更快, 结果更稳定 (因为系统误差可以在一定程度上通过 CH_4/CO_2 比值去除), 但该方法比较依赖于对先验 CO_2 的校正。除了 GOSAT 以外, GHG-CCI 项目还对 TROPOMI 以及 IASI 的 CH_4 产品也进行了验证, 并且随着反演算法的更新, 这些验证工作还会继续进行。

4 香河站地基 FTIR 观测及 TROPOMI 卫星验证

4.1 香河站 125HR 观测系统

香河站 FTIR 观测系统位于河北省廊坊市, 在北京东偏南约 50 km , 天津西北侧约 70 km 。2018 年 6 月, 中国科学院大气物理研究所在香河大气综合观测试验站完成了一台高分辨率 Bruker IFS 125HR 光谱仪观测系统的部署, 开始了高分辨率太阳红外光谱采集。该系统能够自动进行 TCCON 和 NDACC 模式切换, 具备两种观测模式的能力。2021 年 9 月, 香河站又添置了一台 Bruker EM27/SUN 的便携式光谱仪, 采用 COCCON 模式获取中分辨率太阳近红外光谱。

香河站 IFS 125HR 观测系统主要包括 3 个部分: 太阳跟踪器、傅里叶光谱仪、自动气象站 (图 1)。太阳跟踪器负责将太阳直射光引入光谱仪。为了保持入射光源的稳定性, 在光谱仪中安装了一个摄像头, 连续监测太阳光斑图像通过光阑的位置情况并实时调整太阳跟踪器的俯仰镜和方位镜, 确保观测系统始终瞄准太阳光盘中心 (Gisi 等, 2011; Yang 等, 2020)。自动气象站用于观测地表气压、地表温度、相对湿度、风向风速、太阳辐射等常规气象要素, 其中地表气压的资料将用来计算大气干空气柱总量。地表气压传感器采用 Vaisala PTB210 型号, 测量精度优于 0.3 hPa 。



图1 香河站Bruker IFS125HR FTIR观测系统,包括太阳跟踪器(左),高分辨率傅里叶光谱仪(中),以及自动气象站(右)。

Fig.1 The Bruker IFS125HR FTIR observation system at Xianghe, including a sun tracker (left), a high-resolution Fourier spectrometer (center), and an automatic weather station (right)

香河站傅里叶光谱仪的光谱采集与处理流程见图2。对于观测的光谱要进行筛选,剔除那些受云或者其他因素干扰的光谱,然后根据观测的光谱范围进行分类处理。值得注意的是,近红外与中红外光谱观测虽然使用同一台IFS 125HR光谱仪,但光学部件的设置不同。进行近红外光谱观测时,采用氟化钙(CaF_2)分束镜和碲化镓(InGaAs)传感器;而进行中红外光谱观测时,采用溴化钾(KBr)分束镜和铟化铟(InSb)传感

器,其中 InGaAs 传感器可在常温下进行观测,而 InSb 传感器需要液氮冷却才能达足够的灵敏度。香河IFS 125HR系统在2021年还增加了中分辨率观测模式,通过改变傅里叶光谱仪的最大光程差从45cm降低为1.8cm,从而使IFS 125HR可以获得与EM27/SUN一样的中分辨率红外光谱(0.5cm^{-1}),这样可以消除两者比较过程中引入的平滑误差。当前,香河站125HR的观测模式设置见表6。

表6 大气所香河站地基傅里叶光谱仪观测系统

Table 6 The observation system of FTIR at Xianghe

观测设备	125HR			EM27/SUN
观测模式	TCCON	COCCON	NDACC	COCCON
光谱分辨率(cm^{-1})	0.02	0.5	0.0035	0.5
反演算法	GGG2020	PROFFAST	SFIT4	PROFFAST
CH_4 产品	柱平均浓度	柱平均浓度	垂直廓线和柱总量	柱平均浓度
观测时间	2018.06-今	2021.11-今	2018.06-今	2021.09-今

图2还给出了香河站125HR观测系统每周获取的光谱数。从2018年6月至今,已经获得TCCON、COCCON和NDACC三种观测模式光谱65496条、16188条和25975条。2020年2月至5月,受新冠疫情封城的影响,由于无法运送液氮,因此NDACC模式有3个月的光谱缺失。2022年4月至6月,由于激光器的更换,导致125HR停止工作2个月。除了常规的太阳光谱,我们还定期进行标气观测,其中近红外波段采用氯化氢(HCl)标气,中红外波段采用溴化氢(HBr)标气,以便监测和诊断观测系统的工作状态。利用标气在各自波段的特征吸收线,采用LINEFIT14.5

算法通过拟合标气的吸收线型,获得光谱仪的仪器参数(图3)。

4.2 对TROPOMI卫星产品的验证

这里主要介绍利用香河站TCCON观测模式(下面简称香河站)对TROPOMI卫星 CH_4 观测产品的验证工作。Yang等(2020)已经利用香河站一年的观测数据对TROPOMI卫星 XCH_4 的部分旧版产品进行了验证试验。最近两年,香河站和TROPOMI的观测产品数据都进行了不少更新。TCCON的反演算法从GGG2014更新至GGG2020,主要的更新包括:分子吸收光谱库和气体的初始

浓度 (<https://tcon-wiki.caltech.edu/>)。TROPOMI 的 CH₄ 产品主要针对地表反射率进行了订正

(Lorente 等, 2021)。

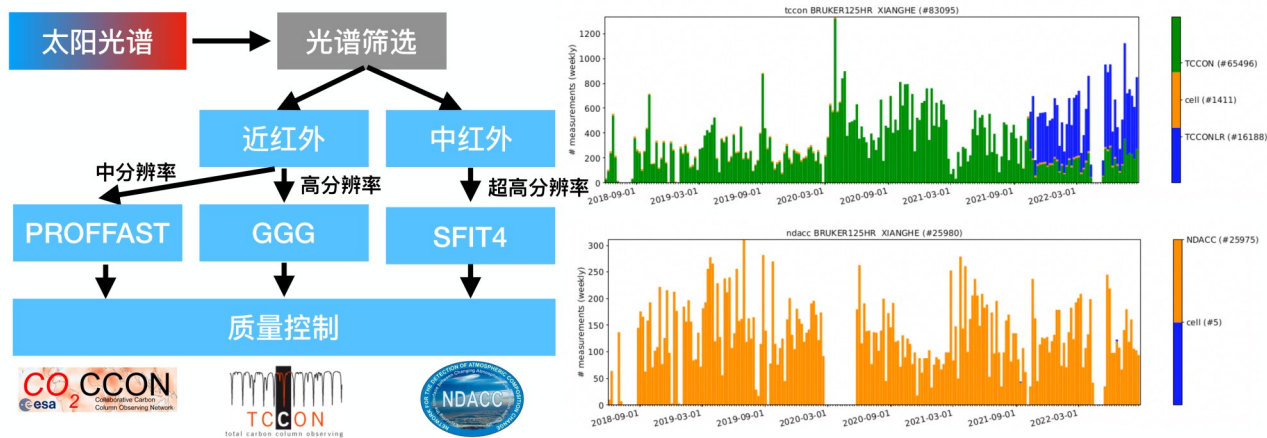


图2 香河站 IFS 125HR 系统的光谱采集与处理流程及每周的采集光谱数量

Fig.2 Spectrum acquisition and process flow of IFS 125HR system and the number of spectra collected every week at Xianghe

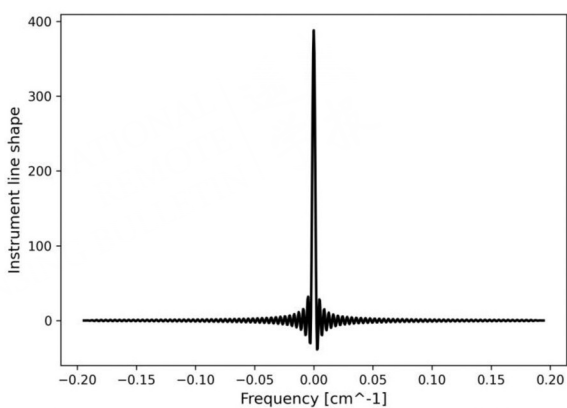


图3 香河站 125HR 的仪器线型函数

Fig.3 Instrumental Line Shape (ILS)

这里我们采用香河站最新的 TCCON 反演算法 (GGG2020) 资料对 TROPOMI 的最新订正版产品进行地基验证。对比验证过程如下: 1) 首先进行时空匹配。对于香河站 FTIR 观测的单个反演数据, 选择卫星 1 小时内经过观测站周围 50km 范围内的所有观测有效像元; 2) 其次, 根据 Rodgers 和 Connor (2003) 提出的反演理论, 需消除由于不同先验廓线引入的平滑误差, 将卫星的先验廓线作为香河站 TCCON 的初始廓线, 对 FTIR 观测值进行预处理, 使对比验证在相同的先验廓线条件下进行。同时, 考虑地形影响, 需要把卫星的星下点地表高度订正到香河站点高度 (或者将香河站的观测资料订正到卫星的星下点地表高度), 使对比验证在相同的地形高度条件下进行。3) 然后, 将最近的 10 个卫星像元取均值与香河站观测进行

比较, 如果在 50km 之内不足 10 个卫星有效像元, 则放弃这次比较机会; 4) 最后, 比较经过初始廓线和地形高度订正后的香河站观测值和匹配的卫星观测均值。

图 4 显示了 TROPOMI 卫星与香河 TCCON 模式观测的时间序列以及两者的相对偏差。在 2018 年 6 月至 2021 年 5 月期间, 共找到 8868 个时空匹配观测数据对, 两者均值相差 0.109% (约 2ppb)。对比结果表明, TROPOMI 卫星在华北地区典型城市群上的系统偏差较小, 香河站与 TROPOMI 卫星观测值具有很好的相关性, 相关系数为 0.92。同时, 香河站和卫星的 XCH₄ 观测都存在明显的季节变化特征: 秋天高春天低, 季节变化的振幅约 2.8%; 然而, 春季卫星的观测值大于香河站观测值约 0.3%, 秋季卫星的观测值小于香河站观测值约 0.2%。因此在利用 TROPOMI 卫星观测资料去分析华北地区 CH₄ 浓度的季节变化时, 可能会造成季节振荡的低估。利用 Bootstrap (Plant 等, 2022) 方法对 TROPOMI 与香河站的差值进行趋势分析, 发现存在 0.263 ± 0.172 %/年的上升趋势, 表明 TROPOMI 观测得到的 XCH₄ 增长率要高于香河站观测值。除此之外, 我们对地表反射率 (Albedo) 和气溶胶光学厚度 (AOD) 对比验证结果的影响进行了进一步分析, 发现在香河站, 卫星与地基观测的差值与地表反射率仍然存在一定的相关关系, 特别是在暗地表情况下 (Albedo 小于 0.1), 卫星的观测值要小于香河站的观测值; 而在 AOD

小于0.22的情况下, 卫星与地基观测的差值基本不受AOD变化的影响。通过与香河站观测数据的对比验证, 说明TROPOMI在华北地区的CH₄反演

达到了其观测精度要求(系统偏差小于1.5%, 随机偏差小于1.0%)。

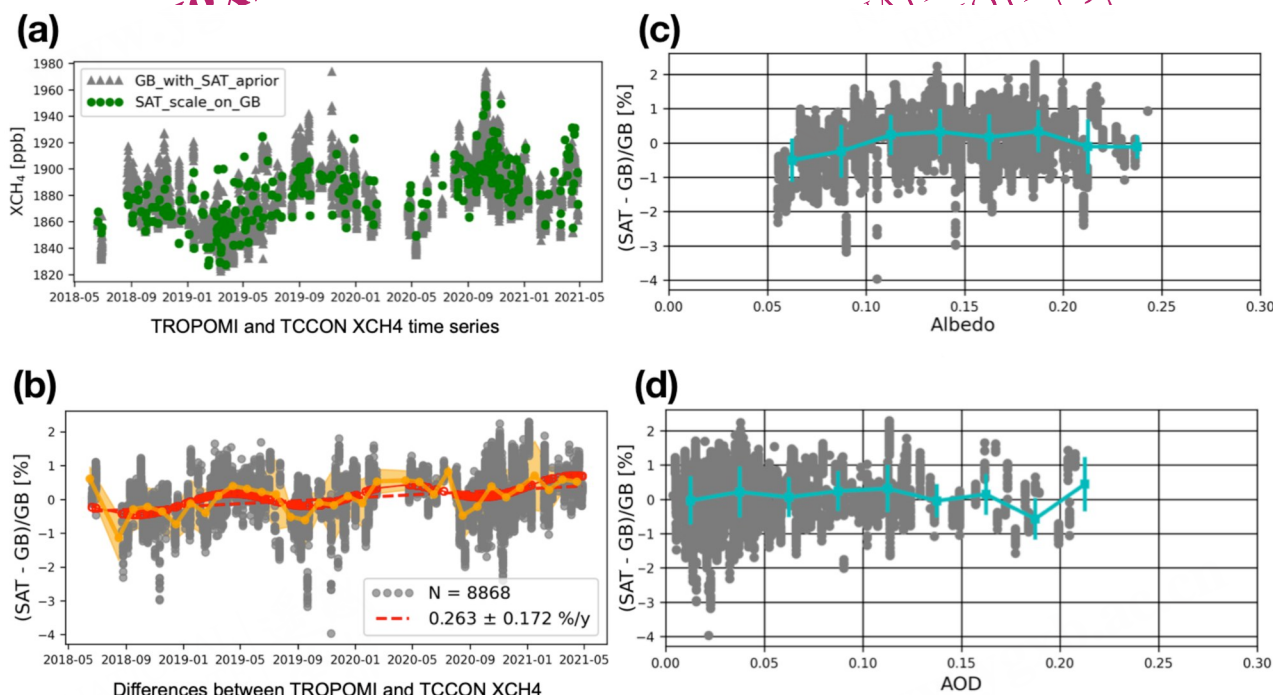


图4 香河站TCCON模式与TROPOMI卫星观测的XCH₄时间序列(a), 两者相对偏差(b), 以及相对偏差随着地表反射率(c)和气溶胶光学厚度的变化(d)。

Fig. 4 XCH₄ time series of TCCON and TROPOMI observations at Xianghe (a), relative deviation (b), and the variation of relative deviation with surface reflectance (c) and aerosol optical thickness (d).

5 结语

本文围绕地基和卫星CH₄遥感技术, 介绍了目前国际上最重要的地基遥感观测网络(TCCON、NDACC-IRWG、COCCON), 包括观测仪器、波段设置、反演算法、产品特性等方面的内容。TCCON是目前地基CH₄柱浓度遥感最精准的全球观测网, NDACC-IRWG除了柱浓度之外还能提供CH₄的垂直廓线信息, COCCON则是TCCON的重要补充, 能够在偏远地区开展CH₄的地基遥感观测实验。

针对红外高光谱CH₄卫星遥感观测, 描述了国内外的CH₄卫星遥感发展现状。同时, 以日本GOSAT卫星为例, 分析了卫星CH₄地基验证工作中的一些关键技术, 特别是针对统计参数、时空匹配、平滑订正以及高度订正做了深入讨论。当前, 卫星验证的时空匹配选择依然较为主观, 平滑误差的影响也仍然存在, 这些都会影响卫星验证的结果。但无论如何, 地基遥感在CH₄卫星遥感

的发展中具有重要作用, 为卫星数据的误差订正、卫星遥感的算法升级提供了不可替代的数据支撑。

详细介绍了中国科学院大气物理研究所香河站的地基傅里叶红外高光谱CH₄观测系统。香河站傅里叶红外高光谱观测系统隶属于TCCON观测网, 同时具有NDACC-IRWG的观测能力, 是目前华北地区唯一的对温室气体卫星进行地基验证的TCCON站点。

最后我们利用TCCON香河站的观测资料, 对最新版的TROPOMI卫星CH₄观测反演数据产品进行了地基验证, 表明在华北地区TROPOMI CH₄柱浓度产品达到了其观测精度目标设定要求; TROPOMI观测得到的CH₄柱浓度年增长率要略高于TCCON的观测结果, 两者相差 0.263 ± 0.172 %/年; 地基与卫星的差值具有季节变化特征, 春季卫星的观测值大于TCCON观测值约0.3%, 秋季卫星的观测值小于TCCON观测值约0.2%。地表反射率和气溶胶光学厚度对卫星观测结果的地基验证仍然存在一定的影响, 值得进一步深入研究。

志 谢 感谢香河站所有职工对傅里叶红外高/中光谱观测设备的维护, 感谢ESA提供的TROPOMI卫星数据。

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]
- Alexe M, Bergamaschi P, Segers A, Detmers R, Butz A, Hasekamp O, Guerlet S, Parker R, Boesch H, Frankenberg C, Scheepmaker R A, Dlugokencky E, Sweeney C, Wofsy S C and Kort E A. 2015. Inverse modelling of CH₄ emissions for 2010 - 2011 using different satellite retrieval products from GOSAT and SCIAMACHY. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(1): 113-133 [DOI: 10.5194/acp-15-113-2015]
- Bergamaschi P, Houweling S, Segers A, Krol M, Frankenberg C, Scheepmaker R A, Dlugokencky E, Wofsy S C, Kort E A, Sweeney C, Schuck T, Breminkhuijsen C, Chen H, Beck V and Gerbig C. 2013. Atmospheric CH₄ in the first decade of the 21st century: Inverse modeling analysis using SCIAMACHY satellite retrievals and NOAA surface measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118(13): 7350-7369 [DOI: 10.1002/jgrd.50438]
- Buchwitz M, Reuter M, Schneising O, Boesch H, Guerlet S, Dils B, Aben I, Armante R, Bergamaschi P, Blumenstock T, Bovensmann H, Brunner D, Buchmann B, Burrows J P, Butz A, Chédin A, Chevallier F, Crevoisier C D, Deutscher N M, Frankenberg C, Hase F, Hasekamp O P, Heymann J, Kaminski T, Laeng A, Lichtenberg G, De Mazière M, Noël S, Notholt J, Orphal J, Popp C, Parker R, Scholze M, Sussmann R, Stiller G P, Warneke T, Zehner C, Bril A, Crisp D, Griffith D W T, Kuze A, O'Dell C, Oshchepkov S, Sherlock V, Suto H, Wennberg P, Wunch D, Yokota T and Yoshida Y. 2015. The Greenhouse Gas Climate Change Initiative (GHG-CCI): Comparison and quality assessment of near-surface-sensitive satellite-derived CO₂ and CH₄ global data sets. *Remote Sensing of Environment*, 162: 344-362 [DOI: 10.1016/j.rse.2013.04.024]
- Buchwitz M, Reuter M, Schneising O, Hewson W, Detmers R G, Boesch H, Hasekamp O P, Aben I, Bovensmann H, Burrows J P, Butz A, Chevallier F, Dils B, Frankenberg C, Heymann J, Lichtenberg G, De Mazière M, Notholt J, Parker R, Warneke T, Zehner C, Griffith D W T, Deutscher N M, Kuze A, Suto H and Wunch D. 2017. Global satellite observations of column-averaged carbon dioxide and methane: The GHG-CCI XCO₂ and XCH₄ CRDP3 data set. *Remote Sensing of Environment*, 203: 276-295 [DOI: 10.1016/j.rse.2016.12.027]
- Butz A, Guerlet S, Hasekamp O, Schepers D, Galli A, Aben I, Frankenberg C, Hartmann J-M, Tran H, Kuze A, Keppel-Aleks G, Toon G, Wunch D, Wennberg P, Deutscher N, Griffith D, Macatangay R, Messerschmidt J, Notholt J and Warneke T. 2011. Toward accurate CO₂ and CH₄ observations from GOSAT. *Geophysical Research Letters*, 38(14) [DOI: 10.1029/2011GL047881]
- Butz A, Hasekamp O P, Frankenberg C, Vidot J and Aben I. 2010. CH₄ retrievals from space-based solar backscatter measurements: Performance evaluation against simulated aerosol and cirrus loaded scenes. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 115 (D24) [DOI: 10.1029/2010JD014514]
- De Mazière M, Thompson A M, Kurylo M J, Wild J D, Bernhard G, Blumenstock T, Braathen G O, Hannigan J W, Lambert J-C, Leblanc T, McGee T J, Nedoluha G, Petropavlovskikh I, Seckmeyer G, Simon P C, Steinbrecht W and Strahan S E. 2018. The Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC): history, status and perspectives. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(7): 4935-4964 [DOI: 10.5194/acp-18-4935-2018]
- De Mazière M, Vigouroux C, Bernath P F, Baron P, Blumenstock T, Boone C, Brogniez C, Catoire V, Coffey M, Duchatelet P, Griffith D, Hannigan J, Kasai Y, Kramer I, Jones N, Mahieu E, Manney G L, Piccolo C, Randall C, Robert C, Senten C, Strong K, Taylor J, Tétard C, Walker K A and Wood S. 2008. Validation of ACE-FTS v2.2 methane profiles from the upper troposphere to the lower mesosphere. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8(9): 2421-2435 [DOI: 10.5194/acp-8-2421-2008]
- De Wachter E, Kumps N, Vandaele A C, Langerock B and De Mazière M. 2017. Retrieval and validation of MetOp/IASI methane. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10(12): 4623-4638 [DOI: 10.5194/amt-10-4623-2017]
- Dietrich F, Chen J, Voggenreiter B, Aigner P, Nachtigall N and Reger B. 2021. MUCCnet: Munich Urban Carbon Column network. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(2): 1111-1126 [DOI: 10.5194/amt-14-1111-2021]
- Dils B, Buchwitz M, Reuter M, Schneising O, Boesch H, Parker R, Guerlet S, Aben I, Blumenstock T, Burrows J P, Butz A, Deutscher N M, Frankenberg C, Hase F, Hasekamp O P, Heymann J, De Mazière M, Notholt J, Sussmann R, Warneke T, Griffith D, Sherlock V and Wunch D. 2014. The Greenhouse Gas Climate Change Initiative (GHG-CCI): comparative validation of GHG-CCI SCIAMACHY/ENVISAT and TANSO-FTS/GOSAT CO₂ and CH₄ retrieval algorithm products with measurements from the TCCON. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(6): 1723-1744 [DOI: 10.5194/amt-7-1723-2014]
- 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-8-3047-2015]
- 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, Butz A, Mengistu Tsidu G, Ene D,

- Wunch D, Cao Z, Garcia O, Ramonet M, Vogel F and Orphal J. 2019. Building the 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]
- García O E, Schneider M, Ertl B, Sepúlveda E, Borger C, Diekmann C, Wiegeler A, Hase F, Barthlott S, Blumenstock T, Raffalski U, Gómez-Peláez A, Steinbacher M, Ries L and de Frutos A M. 2018. The MUSICA IASI CH₄ and N₂O products and their comparison to HIPPO, GAW and NDACC FTIR references. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(7): 4171-4215 [DOI: 10.5194/amt-11-4171-2018]
- 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]
- Gordon I E, Rothman L S, Hargreaves R J, Hashemi R, Karlovets E V, Skinner F M, Conway E K, Hill C, Kochanov R V, Tan Y, Weislo P, Finken A A, Nelson K, Bernath P F, Birk M, Boudon V, Campargue A, Chance K V, Coustenis A, Drouin B J, Flaud J M, Gamache R R, Hodges J T, Jacquemart D, Mlawer E J, Nikitin A V, Perevalov V I, Rotger M, Tennyson J, Toon G C, Tran H, Tyuterev V G, Adkins E M, Baker A, Barbe A, Cané E, Császár A G, Dudaryonok A, Egorov O, Fleisher A J, Fleurbaey H, Foltynowicz A, Furtenbacher T, Harrison J J, Hartmann J M, Horneman V M, Huang X, Karman T, Karns J, Kassi S, Kleiner I, Kofman V, Kwabia Tchana F, Lavrentieva N N, Lee T J, Long D A, Lukashvskaya A A, Lyulin O M, Makhnev V Y, Matt W, Massie S T, Melosso M, Mikhailenko S N, Mondelain D, Müller H S P, Naumenko O V, Perrin A, Polyansky O L, Raddaoui E, Raston P L, Reed Z D, Rey M, Richard C, Tóbiás R, Sadiék I, Schwenke D W, Starikova E, Sung K, Tamassia F, Tashkun S A, Vander Auwera J, Vasilenko I A, Vigasin A A, Villanueva G L, Vispoel B, Wagner G, Yachmenev A and Yurchenko S N. 2022. The HITRAN2020 molecular spectroscopic database. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 277: 107949 [DOI: 10.1016/j.jqsrt.2021.107949]
- Guanter L, Irakulis-Loitxate I, Gorroño J, Sánchez-García E, Cusworth D H, Varon D J, Cogliati S and Colombo R. 2021. Mapping methane point emissions with the PRISMA spaceborne imaging spectrometer. *Remote Sensing of Environment*, 265: 112671 [DOI: 10.1016/j.rse.2021.112671]
- Hase F, Hannigan J W, Coffey M T, Goldman A, Höpfner M, Jones N B, Rinsland C P and Wood S W. 2004. Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 87(1): 25-52 [DOI: 10.1016/j.jqsrt.2003.12.008]
- Hopkins F M, Ehleringer J R, Bush S E, Duren R M, Miller C E, Lai C-T, Hsu Y-K, Carranza V and Randerson J T. 2016. Mitigation of methane emissions in cities: How new measurements and partnerships can contribute to emissions reduction strategies. *Earth's Future*, 4(9): 408-425 [DOI: 10.1002/2016ef000381]
- IPCC. 2014. *Climate Change 2013: The Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press.
- Irakulis-Loitxate I, Guanter L, Liu Y-N, Varon D J, Maasakkers J D, Zhang Y, Chutakadabba A, Wofsy S C, Thorpe A K, Duren R M, Frankenberg C, Lyon D R, Hmiel B, Cusworth D H, Zhang Y, Segl K, Gorroño J, Sánchez-García E, Sulprizio M P, Cao K, Zhu H, Liang J, Li X, Aben I and Jacob D J. 2021. Satellite-based survey of extreme methane emissions in the Permian basin. *Science Advances*, 7(27): eabf4507 [DOI: 10.1126/sciadv.abf4507]
- Jacob D J, Varon D J, Cusworth D H, Dennison P E, Frankenberg C, Gautam R, Guanter L, Kelley J, McKeever J, Ott L E, Poulter B, Qu Z, Thorpe A K, Worden J R and Duren R M. 2022. Quantifying methane emissions from the global scale down to point sources using satellite observations of atmospheric methane. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(14): 9617-9646 [DOI: 10.5194/acp-22-9617-2022]
- Ji D, Zhou M, Wang P, Yang Y, Wang T, Sun X, Hermans C, Yao B and Wang G. 2020. Deriving Temporal and Vertical Distributions of Methane in Xianghe Using Ground-based Fourier Transform Infrared and Gas-analyzer Measurements. *Advances in Atmospheric Sciences*, 37(6): 597-607 [DOI: 10.1007/s00376-020-9233-4]
- 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 [DOI: 10.1364/AO.46.004774]
- Kirschke S, Bousquet P, Ciais P, Saunoy M, Canadell J G, Dlugokencky E J, Bergamaschi P, Bergmann D, Blake D R, Bruhwiler L, Cameron-Smith P, Castaldi S, Chevallier F, Feng L, Fraser A, Heimann M, Hodson E L, Houweling S, Josse B, Fraser P J, Krummel P B, Lamarque J-F, Langenfelds R L, Le Quéré C, Naik V, O'Doherty S, Palmer P I, Pison I, Plummer D, Poulter B, Prinn R G, Rigby M, Ringeval B, Santini M, Schmidt M, Shindell D T, Simpson I J, Spahni R, Steele L P, Strode S A, Sudo K, Szopa S, Van Der Werf G R, Voulgarakis A, Van Weele M, Weiss R F, Williams J E and Zeng G. 2013. Three decades of global methane sources and sinks. *Nature Geoscience*, 6(10): 813-823 [DOI: 10.1038/ngeo1955]
- Lauvaux T, Giron C, Mazzolini M, d'Aspremont A, Duren R, Cusworth D, Shindell D and Ciais P. 2022. Global assessment of oil and gas methane ultra-emitters. *Science*, 375(6580): 557-561 [DOI: doi:10.1126/science.abj4351]
- Liu W Q, Chen Z Y, Liu J G, Xie P H, Liu C and Zhao N J. 2016. Research progress on optical observations for atmospheric environment in China. *Journal of Remote Sensing*, 20(5): 724-732 (刘文清, 陈臻懿, 刘建国, 谢品华, 刘诚, 赵南京. 2016. 中国大气环境光学探测研究. *遥感学报*, 20(05): 724-732 [DOI:10.11834/jrs.20166229])
- Liu Wenqing. 2022. Opportunities and Challenges for Development of

- Atmospheric Environmental Optics Monitoring Technique Under “Double Carbon” Goal. *Acta Optica Sinica*, 42(6): 0600001 (刘文清. 2022. “双碳”目标下大气环境光学监测技术发展机遇. *光学学报*, 42(6): 0600001 [DOI: 10.5788/aos202242.0600001])
- Lorente A, Borsdorff T, Butz A, Hasekamp O, van de Brugh J, Schneider A, Wu L, Hase F, Kivi R, Wunch D, Pollard D F, Shiomi K, Deutscher N M, Velazco V A, Roehl C M, Wennberg P O, Warneke T and Landgraf J. 2021. Methane retrieved from TROPOMI: improvement of the data product and validation of the first 2 years of measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(1): 665-684 [DOI: 10.5194/amt-14-665-2021]
- Maasakkers J D, Varon D J, Elfarsdóttir A, McKeever J, Jervis D, Mahapatra G, Pandey S, Lorente A, Borsdorff T, Foorthuis L R, Schuit B J, Tol P, van Kempen T A, van Hees R and Aben I. 2022. Using satellites to uncover large methane emissions from landfills. *Science Advances*, 8(32): eabn9683 [DOI: 10.1126/sciadv.abn9683]
- Mendonca J, Strong K, Sung K, Devi V M, Toon G C, Wunch D and Franklin J E. 2017. Using high-resolution laboratory and ground-based solar spectra to assess CH₄ absorption coefficient calculations. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 190: 48 – 59 [DOI: 10.1016/j.jqsrt.2016.12.013]
- Morino I, Uchino O, Inoue M, Yoshida Y, Yokota T, Wennberg P O, Toon G C, Wunch D, Roehl C M, Notholt J, Warneke T, Messerschmidt J, Griffith D W T, Deutscher N M, Sherlock V, Connor B, Robinson J, Sussmann R and Rettinger M. 2011. Preliminary validation of column-averaged volume mixing ratios of carbon dioxide and methane retrieved from GOSAT short-wavelength infrared spectra. *Atmospheric Measurement Techniques*, 4(6): 1061-1076 [DOI: 10.5194/amt-4-1061-2011]
- Ostler A, Sussmann R, Rettinger M, Deutscher N M, Dohe S, Hase F, Jones N, Palm M and Sinnhuber B M. 2014. Multistation inter-comparison of column-averaged methane from NDACC and TC-CON: impact of dynamical variability. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(12): 4081-4101 [DOI: 10.5194/amt-7-4081-2014]
- Pandey S, Gautam R, Houweling S, van der Gon H D, Sadavarte P, Borsdorff T, Hasekamp O, Landgraf J, Tol P, van Kempen T, Hoo-geveen R, van Hees R, Hamburg S P, Maasakkers J D and Aben I. 2019. Satellite observations reveal extreme methane leakage from a natural gas well blowout. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 116(52): 26376-26381 [DOI: 10.1073/pnas.1908712116]
- Parker R, Boesch H, Cogan A, Fraser A, Feng L, Palmer P I, Messerschmidt J, Deutscher N, Griffith D W T, Notholt J, Wennberg P O and Wunch D. 2011. Methane observations from the Greenhouse Gases Observing SATellite: Comparison to ground-based TCCON data and model calculations. *Geophysical Research Letters*, 38 (15) [DOI: 10.1029/2011GL047871]
- Parker R J, Webb A, Boesch H, Somkuti P, Barrio Guillo R, Di Noia A, Kalaitzi N, Anand J S, Bergamaschi P, Chevallier F, Palmer P I, Feng L, Deutscher N M, Feist D G, Griffith D W T, Hase F, Kivi R, Morino I, Notholt J, Oh Y S, Ohyama H, Petri C, Pollard D F, Roehl C, Sha M K, Shiomi K, Strong K, Sussmann R, Té Y, Velazco V A, Warneke T, Wennberg P O and Wunch D. 2020. A decade of GOSAT Proxy satellite CH₄ observations. *Earth Syst. Sci. Data*, 12(4): 3383-3412 [DOI: 10.5194/essd-12-3383-2020]
- Pierangelo C, Millet B, Estève F, Alpers M, Ehret G, Flamant P, Berthier S, Gibert F, Chométe O, Edouard D, Deniel C, Bousquet P and Chevallier F. 2016. MERLIN (Methane Remote Sensing Lidar Mission): an Overview. *EPJ Web of Conferences*, 119: 26001 [DOI: 10.1051/epjconf/201611926001]
- Plant G, Kort E A, Murray L T, Maasakkers J D and Aben I. 2022. Evaluating urban methane emissions from space using TROPOMI methane and carbon monoxide observations. *Remote Sensing of Environment*, 268: 112756 [DOI: 10.1016/j.rse.2021.112756]
- Qu Z, Jacob D J, Shen L, Lu X, Zhang Y, Scarpelli T R, Nesser H, Sulprizio M P, Maasakkers J D, Bloom A A, Worden J R, Parker R J and Delgado A L. 2021. Global distribution of methane emissions: a comparative inverse analysis of observations from the TROPOMI and GOSAT satellite instruments. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(18): 14159-14175 [DOI: 10.5194/acp-21-14159-2021]
- Rodgers C D. 2000. Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practice. Vol. 2: World scientific
- Rodgers C D and Connor B J. 2003. Intercomparison of remote sounding instruments. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 108(D3) [DOI: 10.1029/2002JD002299]
- Schepers D, Guerlet S, Butz A, Landgraf J, Frankenberg C, Hasekamp O, Blavier J-F, Deutscher N M, Griffith D W T, Hase F, Kyro E, Morino I, Sherlock V, Sussmann R and Aben I. 2012. Methane retrievals from Greenhouse Gases Observing Satellite (GOSAT) shortwave infrared measurements: Performance comparison of proxy and physics retrieval algorithms. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 117(D10) [DOI: 10.1029/2012JD017549]
- Sha M K, De Mazière M, Notholt J, Blumenstock T, Chen H, 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 and Weidmann D. 2020. Intercomparison of low- and high-resolution infrared spectrometers for ground-based 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]
- Sha M K, Langerock B, Blavier J-F L, Blumenstock T, Borsdorff T, Buschmann M, Dehn A, De Mazière M, Deutscher N M, Feist D G, García O E, Griffith D W T, Gutter M, Hannigan J W, Hase F, Heikkinen P, Hermans C, Iraci L T, Jeseck P, Jones N, Kivi R, Kumps N, Landgraf J, Lorente A, Mahieu E, Makarova M V, Mellqvist J, Metzger J-M, Morino I, Nagahama T, Notholt J, Ohyama H, Ortega I, Palm M, Petri C, Pollard D F, Rettinger M, Robinson J, Roche S, Roehl C M, Röhlhling A N, Rousogonous C, Schneider M, Shiomi K, Smale D, Stremme W, Strong K, Sussmann R, Té Y, Uchino O, Velazco V A, Vigouroux C, Vrekoussis M, Wang P, Warneke T, Wizenberg T, Wunch D, Yamanouchi S, Yang Y and Zhou M. 2021. Validation of methane and carbon monoxide from

- Sentinel-5 Precursor using TCCON and NDACC-IRWG stations. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(9): 6249-6304 [DOI: 10.5194/amt-14-6249-2021]
- Sherwin E, Rutherford J, Chen Y, Amthard S, Kort E, Jackson R and Brandt A. 2022. Single-blind validation of space-based point-source methane emissions detection and quantification.
- Toon G C. 2022. Solar Line List for the TCCON 2020 Data Release. CaltechDATA [DOI: 10.14291/TCCON.GGG2020.SOLAR.R0]
- Tu Q, 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]
- Varon D J, Jervis D, McKeever J, Spence I, Gains D and Jacob D J. 2021. High-frequency monitoring of anomalous methane point sources with multispectral Sentinel-2 satellite observations. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(4): 2771-2785 [DOI: 10.5194/amt-14-2771-2021]
- Vogel F R, Frey M, Stauder J, Hase F, Broquet G, Xueref-Remy I, Chevallier F, Chais P, Sha M K, Chelin E, Jeseck P, Janssen C, Té Y, Groß J, Blumenstock T, Tu Q 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]
- von Clarmann T, Höpfner M, Kellmann S, Linden A, Chauhan S, Funke B, Grabowski U, Glatthor N, Kiefer M, Schieferdecker T, Stiller G P and Versick S. 2009. Retrieval of temperature, H₂O, O₃, HNO₃, CH₄, N₂O, ClONO₂ and ClO from MIPAS reduced resolution nominal mode limb emission measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2(1): 159-175 [DOI: 10.5194/amt-2-159-2009]
- Wang M X. 1991. *Atmospheric Chemistry*. Beijing: Meteorological Press (王明星. 1991. 大气化学. 北京: 气象出版社)
- Wang F, Maksyutov S, Tsuruta A, Janardanan R, Ito A, Sasakawa M, Machida T, Morino I, Yoshida Y, Kaiser J W, Janssens-Maenhout G, Dlugokencky E J, Mammarella I, Lavric J V and Matsunaga T. 2019. Methane Emission Estimates by the Global High-Resolution Inverse Model Using National Inventories. *Remote Sensing*, 11(21): 2489 [DOI: 10.3390/rs11212489]
- 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. 2011. 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]
- Yang Y, Zhou M, Langerock B, Sha M K, Hermans C, Wang T, Ji D, Vigouroux C, Kumps N, Wang G, De Mazière M and Wang P. 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]
- Yoshida Y, Kikuchi N, Morino I, Uchino O, Oshchepkov S, Bril A, Saeki T, Schutzgas N, Toon G C, Wunch D, Roehl C M, Wennberg P O, Griffith D W T, Deutscher N M, Warneke T, Notholt J, Robinson J, Sherlock V, Connor B, Rettinger M, Sussmann R, Ahonen P, Heikkinen P, Kyrö E, Mendonca J, Strong K, Hase F, Dohe S and Yokota T. 2013. Improvement of the retrieval algorithm for GOSAT SWIR XCO₂ and XCH₄ and their validation using TCCON data. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(6): 1533-1547 [DOI: 10.5194/amt-6-1533-2013]
- Yoshida Y, Ota Y, Eguchi N, Kikuchi N, Nobuta K, Tran H, Morino I and Yokota T. 2011. Retrieval algorithm for CO₂ and CH₄ column abundances from short-wavelength infrared spectral observations by the Greenhouse gases observing satellite. *Atmospheric Measurement Techniques*, 4(4): 717-734 [DOI: 10.5194/amt-4-717-2011]
- Zhang D Y and Liao H. 2015. Advances in the Research on Sources and Sinks of CH₄ and Observations and Simulations of CH₄ Concentrations. *Advances in Meteorological Science and Technology*, 5(1): 40-47 (张定媛和廖宏. 2015. 大气甲烷的源和汇及其浓度的观测模拟研究进展. 气象科技进展, 5(1): 40-47 [DOI: 10.3969/j.issn.2095-1973.2015.01.005])
- Zhou M, Dils B, Wang P, Detmers R, Yoshida Y, O'Dell C W, Feist D G, Velasco V A, Schneider M and De Mazière M. 2016. Validation of TANSO-FTS/GOSAT XCO₂ and XCH₄ glint mode retrievals using TCCON data from near-ocean sites. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(3): 1415-1430 [DOI: 10.5194/amt-9-1415-2016]
- Zhou M, Langerock B, Vigouroux C, Sha M K, Ramonet M, Delmotte M, Mahieu E, Bader W, Hermans C, Kumps N, Metzger J-M, Duflo V, Wang Z, Palm M and De Mazière M. 2018. Atmospheric CO and CH₄ time series and seasonal variations on Reunion Island from ground-based in situ and FTIR (NDACC and TCCON) measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(19): 13881-13901 [DOI: 10.5194/acp-18-13881-2018]
- Zhou M, Langerock B, Wells K C, Millet D B, Vigouroux C, Sha M K, Hermans C, Metzger J M, Kivi R, Heikkinen E, Smale D, Pollard D F, Jones N, Deutscher N M, Blumenstock T, Schneider M, Palm M, Notholt J, Hannigan J W and De Mazière M. 2019. An inter-comparison of total column-averaged nitrous oxide between ground-based FTIR TCCON and NDACC measurements at seven sites and comparisons with the GEOS-Chem model. *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(2): 1393-1408 [DOI: 10.5194/amt-12-1393-2019]

CH₄ column retrievals from ground-based and space-based infrared

spectra and satellite validation

Zhou Minqiang¹, Ni Qichen^{1,2}, Wang Jiixin^{1,2}, Cai Zhaonan^{1,2}, Nan Weidong³, Wang Pucui^{1,2}

1. Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China;

2. University of Chinese Academy of Science, Beijing 100049, China;

3. Xianghe Observatory of Whole Atmosphere, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Langfang 065400, China

Abstract: Methane (CH₄) is the second most important greenhouse gas in the Earth's atmosphere, after carbon dioxide (CO₂). Understanding the change in CH₄ concentration is a very challenging task in atmospheric research as it has various sources. Remote sensing has now become an effective technique to monitor CH₄ concentrations globally. In this study, we presented an overview of CH₄ column retrievals based on ground-based Fourier Transform InfraRed spectrometer (FTIR) and space-based infrared measurements, as well as the satellite validations were discussed. Currently, there are three ground-based remote sensing international observation networks providing CH₄ columns, namely the Total Carbon Column Observing Network (TCCON), the NDACC-IRWG (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change - the Infrared Working Group), and the COCCON (Collaborative Carbon Column Observing Network). The main characteristics of the three networks were presented and discussed in our study, for example, the measurement instrument, the observed spectra, the retrieval algorithm, and the post-correction. TCCON and COCCON provide dry-air column-averaged mole fraction of CH₄ (XCH₄) measurements, with a systematic/random uncertainty of 0.1/0.5%. NDACC provides a total column of CH₄, with a slightly large systematic/random uncertainty of 0.2/1.0%, but it also provides a vertical profile of CH₄, which allows us to observe the CH₄ variations in the troposphere and stratosphere separately. Regarding the satellite CH₄ retrievals, we compared several well-known sensors with a nadir-view geometry and their retrieval algorithms, such as the TANSO-FTS/GOSAT, TROPOMI/S5P, IASI/MetOp, and AIRS/Aqua. Basically, the short-wave infrared measurements (GOSAT and TROPOMI) have more sensitivity to the low troposphere, while the thermal infrared measurements (IASI and AIRS) are mainly sensitive to the mid-and upper troposphere. The difference in their vertical sensitivity comes from the CH₄-specific absorption lines in the infrared region. All satellite retrievals are affected by the cloud, aerosol, and surface parameters, and need to be validated and calibrated against ground-based measurements. Here, key steps during the satellite CH₄ validation were discussed, including the statistical parameters, the a priori substitution, the smoothing correction, and the surface altitude correction. Finally, we showed the CH₄ retrievals observed by the ground-based FTIR system at Xianghe, North China. We operated both TCCON-type and NDACC-type measurements for the Bruker 125HR instrument and COCCON-type measurements for the Bruker EM27/SUN instrument. The whole FTIR measurement system at Xianghe was well described. Then, we used the TCCON XCH₄ measurements to validate the co-located TROPOMI satellite observations within 50 km at Xianghe. The mean difference between TCCON and TROPOMI XCH₄ measurements from June 2018 to May 2021 is 0.109% (~ 2 ppb), which is within the retrieval uncertainty of the TROPOMI measurement. Moreover, a high correlation (R=0.92) was found between TCCON and TROPOMI XCH₄ measurements at Xianghe. However, we found that the annual growth of XCH₄ derived from the TROPOMI satellite measurements is 0.263±0.172 %/year larger than that derived from the TCCON measurements. Besides, there is seasonal variation in the differences between TCCON and TROPOMI XCH₄ measurements, and the differences are obvious when the surface albedo is less than 0.1. It is indicated that further investigations are needed to improve the TROPOMI CH₄ retrievals in North China.

Key words: CH₄, total column, ground-based Fourier-transform infrared (FTIR) spectrometer, satellite validation, TROPOMI

Supported by Supported by National Natural Science Foundation of China (No. 42205140, 41975035), National Key Research and Development Program of China (No. 2021YFB3901000)