



ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Engineering

journal homepage: www.elsevier.com/locate/eng



Research
Climate Change—Article

中国首个地基高分辨率傅里叶变换光谱观测站的大气成分长期观测研究

刘诚^{a,b,c,d,e}, 孙友文^{a,b,*}, 单唱功^b, 王薇^b, Justus Notholt^f, Mathias Palm^f, 殷昊^{a,c}, 田园^g, 高吉熹^h, 毛慧琴^h

^a Department of Precision Machinery and Precision Instrumentation, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

^b Key Laboratory of Environmental Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China

^c Center for Excellence in Regional Atmospheric Environment, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China

^d Key Laboratory of Precision Scientific Instrumentation of Anhui Higher Education Institutes, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

^e Anhui Province Key Laboratory of Polar Environment and Global Change, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

^f Institute of Environmental Physics, University of Bremen, Bremen 28334, Germany

^g Institutes of Physical Science and Information Technology, Anhui University, Hefei 230601, China

^h Satellite Application Center for Ecology and Environment, Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, Beijing 100094, China

ARTICLE INFO

Article history:

Received 3 June 2021

Revised 6 October 2021

Accepted 15 November 2021

Available online 17 February 2022

关键词

遥感
傅里叶变换
大气污染
温室气体
气候变化

摘要

长期观测主要大气成分的体积混合比(VMR)廓线和柱总量对掌握中国气候变化和碳收支具有重要意义。本文对我国首个全球碳总柱观测网(TCCON)高分辨率傅里叶变换光谱仪(FTS)地基观测站,即合肥观测站开展了系统性研究。该观测站可观测30多种大气成分的柱总量和VMR廓线。本文公布了2014年以来合肥观测站观测到的部分关键大气成分的时间序列,总结了迄今为止该站点取得的主要研究成果,包括光谱反演表征和归一化、关键大气成分的总体演变特征、排放估计、卫星和化学传输模式(CTM)校验以及对大气污染源和传输的相关研究。同时,本文还对合肥观测站的观测、科学研究和未来研究计划进行了展望。中国明确提出2030年二氧化碳排放达到峰值,2060年实现碳中和。合肥观测站将为中国政府制定绿色经济政策、实现碳中和及《巴黎协定》目标提供科学支撑。

© 2022 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

1. 引言

近十年来,空气污染对我国社会经济发展和人民健康带来了巨大挑战[1–2]。特别是中国东部的特大城市群,由于人类活动密集,空气污染最严重[3–9]。近年来,由于采取了一系列减排措施,中国各地的空气污染已显著减少[10–11]。然而,在工业化程度高、人口密集的中国东部地区,大气污染仍然较严重[12–13]。该地区大气污染

的严重程度、范围和复杂性仍远超世界其他地区[11,13–15]。长期观测主要大气成分的体积混合比(VMR)廓线和柱总量,对掌握中国空气污染和碳排放的来源、化学机制和输送过程,以及潜在的调控措施都具有重要意义。此外,精确探测关键对流层物种[如CO、CO₂、CH₄、N₂O、C₂H₆、SF₆、碳酰硫(OCS)、H₂CO、HCN和过氧乙酰硝酸盐(PAN)]和平流层物种(如O₃、HNO₃、HF、HCl、ClONO₂)的变化趋势,并深入探索它们对气候变化的影

* Corresponding author.

E-mail address: ywsun@aiofm.ac.cn (Y. Sun).

2095-8099/© 2022 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

英文原文: *Engineering* 2023, 22(3): 201–214

引用本文: Cheng Liu, Youwen Sun, Changgong Shan, Wei Wang, Justus Notholt, Mathias Palm, Hao Yin, Yuan Tian, Jixi Gao, Huiqin Mao. Long-Term Observations of Atmospheric Constituents at the First Ground-Based High-Resolution Fourier-Transform Spectrometry Observation Station in China. *Engineering*, <https://doi.org/10.1016/j.eng.2021.11.022>

响, 对于建立气候变化与大气成分之间的科学联系, 验证卫星、机载或其他地面观测平台, 支撑聚焦大气传输过程的外场观测计划, 改进理论化学传输模式 (CTM) 都具有重要意义[16–19]。

地基高分辨率直接太阳光傅里叶变换光谱仪 (FTS) 已成为探测大气成分 VMR 廓线和柱总量的有力工具[16–17,20–23]。全球碳总柱观测网 (TCCON) 和大气成分变化探测网 (NDACC) 均利用高分辨率 FTS 观测大气成分变化。TCCON 和 NDACC 分别成立于 2004 年和 1992 年, 可以探测 30 多种大气成分的柱总量和 VMR 廓线。这些探测结果已广泛应用于碳循环[24–30]、大气污染与输送[8, 10,13,31–34]、平流层 O₃ [18] 研究, 光谱线模型开发[35–45], 卫星观测验证和卫星反演算法开发[46–56], CTM 评估等[57–61]。然而, 大多数 TCCON/NDACC 站都位于北美和欧洲, 世界上其他地区的观测站仍然非常稀少。目前, 中国只有合肥站 (117.2°E, 32.0°N, 海拔高度 30.0 m) 和香河站 (116.96°E, 39.75°N) 两个合格的 TCCON 运行站点[8,15]。

本研究综述了中国第一个地基高分辨率 TCCON 观测站——合肥观测站的系统性研究成果。合肥观测站靠近中国东部的长江三角洲 (YRD), 该地区是中国工业化程度最高、人口最密集的地区之一, 污染和碳排放源复杂。本文总结了迄今为止该站点取得的主要科学成果, 包括光谱反演表征和归一化、关键大气成分的总体演变特征、排放估计、CTM 校验以及对大气污染来源和传输的研究结果。同时, 本文还对合肥站的观测、科学研究和未来研究计划进行了展望。

2. 站点描述和遥感系统介绍

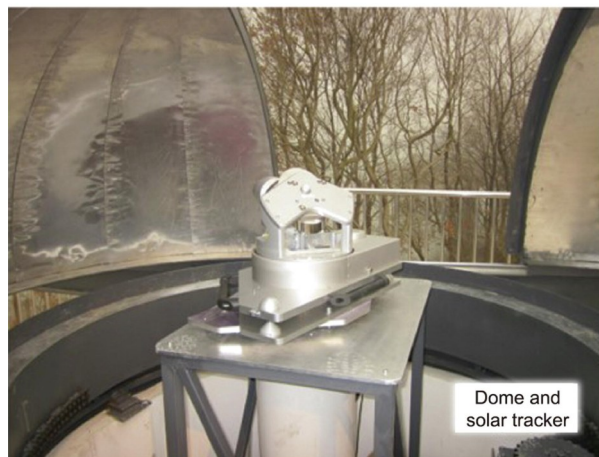
2.1. 站点描述

FTS 观测站位于中国东部高度工业化和人口密集的合肥郊区——科学岛[62–63]。合肥站自 2014 年 7 月开始进行 TCCON 观测, 2018 年正式成为 TCCON 标准站 (<https://tccodata.org/>)。合肥站点地理位置及气象场如图 1 所示。该站点尚被未纳入 NDACC 观测网, 但自 2015 年起, 其日常观测遵循 NDACC 标准公约[8,17]。合肥 FTS 观测站是一个跨学科的观测平台, 由中国科学院安徽光学精密机械研究所 (AIOFM-CAS) 与中国科学技术大学 (USTC) 合作开发。该观测站是国家重大科研项目大气环境观测与模拟 (AEOS) 基础设施的一部分, 包括多种环境监测仪器和模拟器, 用于密集的大气科学研究。该观测站是国际公认的中国首个大气成分长期观测站,

对评估中国东部地区的卫星观测、CTM 模拟、空气质量以及人为和自然排放产生的大气污染物的长距离传输具有重要意义[63]。



(a)



(b)

图 1. 中国合肥高分辨率 FTS 观测系统的主要部分。(a) IFS125 HR 光谱仪; (b) 圆顶和太阳跟踪器[62–63]。

合肥站具有独特的地理位置, 是研究不同来源气团的物理过程及气团与大气化学相互作用的理想场所。合肥是长三角地区合肥-上海轴线城市群的起点。夏季为东南风, 冬季为东北风, 处于区域人为源和自然源的下风位置。因此, 合肥站是研究经过充分混合和化学反应的大气成分的物理和化学过程的理想观测站[64]。与此同时, 合肥地处中国另一个高度工业化和人口密集的京津冀 (Beijing-Tianjin-Hebei, BTH) 地区的南端。偏北冬季风可以将 BTH 地区密集的化石燃料和生物质燃烧源的区域性羽流带到合肥观测站[13]。此外, 受夏季风影响, 合肥观测站处于生物源排放较强的东南亚热带雨林区和西南亚热带雨林区的下风位置[15,64]。这些地区的生物质燃烧排放也会传输到合肥观测站。

2.2. 遥感系统介绍

合肥观测站包括一台高分辨率FTS (IFS125HR, Bruker, Germany)、一个太阳跟踪器和一个气象站 (图1)。光谱仪放置在室内, 太阳跟踪器和气象站直接安装在屋顶。两台空调、一台除湿机和一台空气净化器不间断运行, 以获得恒温、干燥和清洁的室内条件[62–63]。IFS125HR光谱仪具有卓越的精度和稳定性, 已广泛应用于TCCON/NDACC观测网[22,65]。合肥观测站的IFS125HR有6个探测器、4个分束器, 最大光程差为937.5 cm, 对应的最大分辨率为 0.001 cm^{-1} 。所有探测器和分束器类型及其工作范围详见附录A中的表S1和表S2。光谱仪的光谱范围覆盖 420 cm^{-1} 到 $50\,000\text{ cm}^{-1}$ 。太阳跟踪器安装在一个由两个球形罩组成的圆顶内。穹顶可以保护太阳跟踪器不受雨、雪和大风等恶劣天气的影响。穹顶的旋转状态和两个球形盖的开关状态由三个特定的电机控制。太阳跟踪器通过调节两个镀铝折叠镜来跟踪太阳, 并将阳光引导到FTS中。太阳跟踪器的太阳跟踪精度为 $\pm 0.1\text{ mrad}$ [1] ($1\text{ rad} = 57.3^\circ$)。安装在圆顶附近的气象站包括空气温度 ($\pm 0.30\text{ }^\circ\text{C}$)、相对湿度 ($\pm 3.0\%$)、气压 ($\pm 0.1\text{ hpa}$)、风速 ($\pm 0.50\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$)、风向 ($\pm 5.0^\circ$)、太阳辐射 ($\pm 5.0\%$) 和降雨的传感器。这些气象参数用于改进光谱反演。IFS125HR光谱仪配有多级涡旋真空泵, 使干涉仪处于真空状态。真空条件提高了仪器的稳定性, 最大程度减少了水蒸气的吸收干扰。

在常规观测中, 按照附录A中表S3的顺序交替采集近红外 (NIR) 和中红外 (MIR) 太阳光谱。NIR光谱和MIR光谱的光谱范围分别为 $4000\sim 11\,000\text{ cm}^{-1}$ 和 $500\sim 8500\text{ cm}^{-1}$, 时间分辨率分别为150 s和288 s, 光谱分辨率分别为 0.020 cm^{-1} 和 0.005 cm^{-1} 。根据天气条件不同, 每个观测日的NIR光谱和MIR光谱数量位于11到103之间。采用InGaAs探测器和CaF₂分束器进行NIR光谱采集, 采用InSb或碲镉汞 (MCT) 探测器、KBr分束器和7个滤光片

进行MIR光谱采集。NIR光谱用于反演CO₂、CH₄、N₂O、HF、CO、H₂O、HCl和HDO的柱总量[17,62]。MIR光谱用于反演O₃、CO₂、NO₂、N₂、NO、HNO₃、CO、HCl、HF、N₂O、CH₄、C₂H₆、HCN、ClONO₂、H₂O、HDO、ClO、OCS、H₂CO、C₂H₂、C₂H₄、CF₄、SF₆、CH₃D、COF₂、CCl₃F、CCl₂F₂、CHClF₂、C₃H₈、HCOOH、CH₃OH、PAN和NH₃的VMR廓线和柱总量[18,66]。表1总结了这些气体的主要研究相关性和意义, 包括地基验证、全球变暖、臭氧化学和区域污染。

3. 反演算法和表征

3.1. 近红外光谱的反演算法及表征

采用TCCON标准分析软件GGG从近红外太阳光谱中反演大气成分的柱总量[17]。首先, GGG处理原始干涉图、校正相位误差和太阳强度变化, 并将其转换为光谱。然后, 生成气象参数和痕量气体的先验廓线, 其中温度、湿度和压力先验廓线基于美国国家环境预报中心 (National Centers for Environmental Prediction) 和美国国家大气研究中心 (NCEP/NCAR) 的再分析结果, CO₂、CO、CH₄和N₂O先验廓线基于MkIV球载观测值、卫星大气化学实验的傅里叶变换光谱仪 (ACE-FTS) 数据和GLOBALVIEW数据。其次, GGG逐次迭代先验廓线生成模拟光谱, 当测量光谱与模拟光谱相吻合时, 停止迭代, 推算出大气成分柱总量并进一步转换为柱平均干空气摩尔分数 (DMF)。附录A中的表S4概括了基于NIR光谱反演所有气体的相关参数设置。

采用Wunch等[22]的方法来计算所有气体的反演误差, 得出 X_{CO_2} 、 X_{CH_4} 、 $X_{\text{N}_2\text{O}}$ 、 X_{CO} 、 $X_{\text{H}_2\text{O}}$ 、 X_{HDO} 和 X_{HF} 的反演误差分别小于0.25% (约1 ppm)、0.50% (约5 ppb)、1.00% (约3 ppb)、4.00% (约10 ppb)、1.30%、2.00%和

表1 合肥站所观测的大气成分的主要研究意义

Focus area	Significance/effect	Key atmospheric constituents
Validation	Satellite or CTM	CO ₂ , CH ₄ , N ₂ O, HF, CO, H ₂ O, HCl, HDO, O ₃ , NO ₂ , HNO ₃ , HCl, NO, C ₂ H ₆ , HCN, ClONO ₂ , H ₂ CO, C ₂ H ₂ , C ₂ H ₄ , SF ₆ , CCl ₃ F, CCl ₂ F ₂ , CHClF ₂ , HCOOH, CH ₃ OH, and NH ₃
Global warming (radiative forcing)	Climate/environmental change	H ₂ O, HDO, CO ₂ , CH ₄ , CH ₃ D, N ₂ O, SF ₆ , O ₃ , C ₂ H ₆ , CCl ₃ F, CCl ₂ F ₂ , and CHClF ₂
Ozone chemistry	Biological effects of ultraviolet-visible (UV-vis) exposure	O ₃ , ClO, HCl, ClONO ₂ , COF ₂ , NO, NO ₂ , and HNO ₃
Regional pollution	Human health	CO, C ₃ H ₈ , HCN, H ₂ CO, COF ₂ , and O ₃
	Photochemical smog	NO, HNO ₃ , NO ₂ , O ₃ , C ₂ H ₂ , H ₂ CO, C ₂ H ₄ , C ₂ H ₆ , PAN, and CO
	Acid rain	SO ₂ , NH ₃ , NO, HNO ₃ , and NO ₂
	Oxidation efficiency of atmosphere	HCOOH, CH ₃ OH, CO, H ₂ CO, CH ₄ , NO, NO ₂ , and O ₃
Source of aerosols and precursors	SO ₂ , HNO ₃ , CF ₄ , NH ₃ , and OCS (for stratospheric aerosols)	

8.00% (约 4 ppb)。合肥观测站的柱总量平均核函数值 (TAK) 如图2所示。由于平流层光谱线的压强展宽比对流层窄, 导致平流层的TAK随着空气质量的增加而减少。基于合肥观测站的 NIR 光谱反演的 X_{CO_2} 、 X_{CH_4} 、 $X_{\text{N}_2\text{O}}$ 、 X_{CO} 、 $X_{\text{H}_2\text{O}}$ 、 X_{HDO} 、 X_{HCl} 、 X_{HF} 时间序列如图3所示。作为一

个正式的 TCCON 观测站, 合肥观测站的所有数据集都存档在 TCCON 数据库 (<https://tccodata.org/>) 中, 供全球开放访问。

3.2. 中红外光谱的反演算法及表征

采用 NDACC 最新的标准分析软件 SFIT4 反演 MIR 光

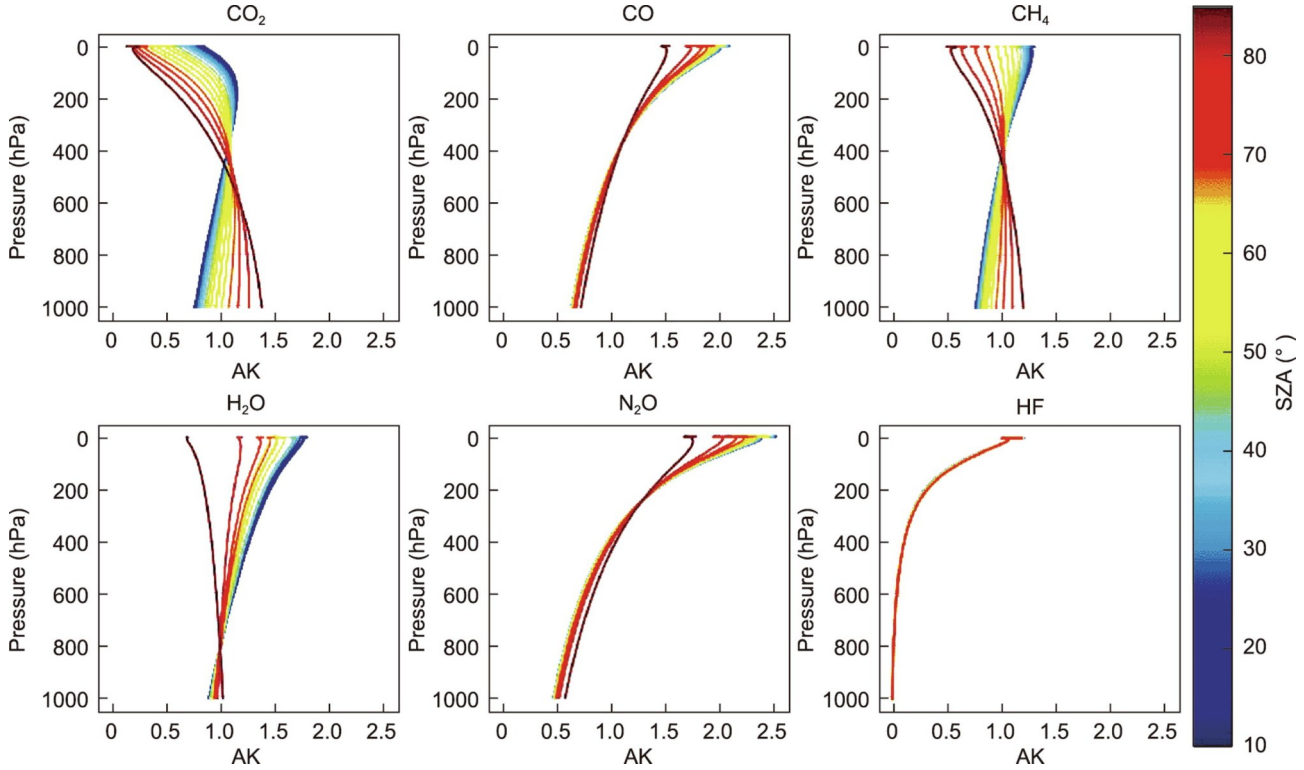


图2. 基于合肥观测站的 NIR 光谱反演大气柱总量的平均核函数 (TAK)。

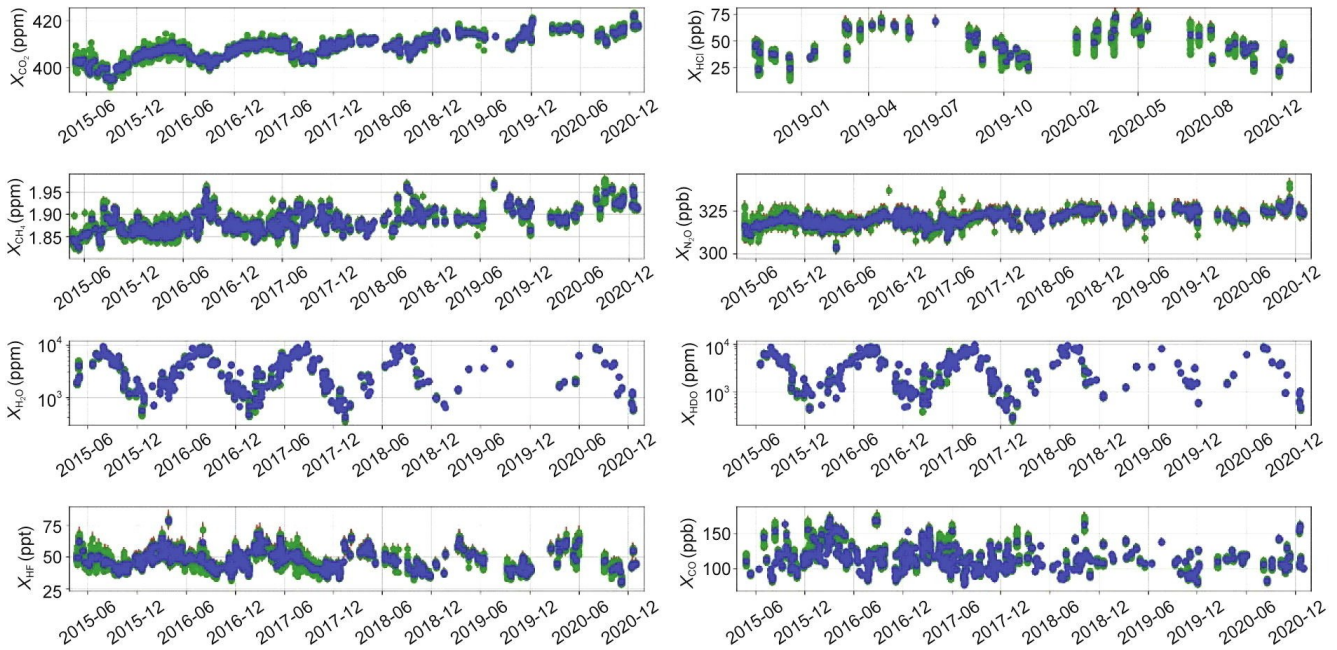


图3. 基于合肥观测站的 NIR 光谱反演的气体时间序列。

谱[16,68]。如附录A中表S3所示,合肥站的MIR光谱能够反演30多种大气成分的柱总量和VMR廓线,其中 CH_4 、 N_2O 、 CO 、 HCN 、 C_2H_6 、 O_3 、 ClONO_2 、 HNO_3 、 HF 和 HCl 为NDACC强制观测大气成分。所有NDACC气体的反演参数设置如附录A中表S5 [69–71]所示。除 H_2O 以外的所有气体的先验廓线来自全大气气候模型(WACCM)1980年至2020年模拟结果的统计平均值[8]。压力和温度和 H_2O 的先验廓线基于NCEP/NCAR的6h再分析结果。根据气体种类不同,光谱参数来自于HITRAN 2008或HITRAN 2012数据库[8,10,67,71]。先验协方差矩阵 \mathbf{S}_a 的对角线值设置为WACCM v6模拟值的标准偏差,噪声协方差矩阵 \mathbf{S}_e 的对角线值设置为光谱信噪比平方的倒数。 \mathbf{S}_a 和 \mathbf{S}_e 的非对角线值均设为零,反演中的仪器函数(ILS)来自于实际测量值[72–73]。

基于合肥观测站的MIR光谱反演的部分气体的平均核函数值(AK)及其面积如图4所示。 HCN 、 H_2CO 、 SF_6 、 CO 、 C_2H_6 的高灵敏范围位于对流层, HF 、 NO_2 、 HCl 的高灵敏范围位于平流层, O_3 和 CH_4 的高灵敏范围同时包括平流层和对流层[74]。 CH_4 、 NO_2 、 CO 、 HCN 、 C_2H_6 、 O_3 、 H_2CO 、 SF_6 、 HF 和 HCl 的整层反演自由度(DOFS)分别

为3.5、1.0、3.0、1.1、1.5、4.8、1.1、1.0、1.3和1.5。

采用Rodgers [68]的方法估算合肥站点的MIR光谱反演误差, CH_4 、 NO_2 、 CO 、 HCN 、 C_2H_6 、 O_3 、 SF_6 、 H_2CO 、 HF 和 HCl 的反演误差分别为4.5%、12.4%、4.7%、11.3%、6.2%、5.7%、5.8%、12.3%、5.1%和5.2%。基于合肥站点的MIR光谱反演的部分气体柱总量时间序列如图5所示。这些气体都具有明显的日变化和季节性。

4. 合肥观测站取得的主要研究成果

合肥观测站已经连续运行7年,反演了很多种大气成分的时间序列。国内外研究学者利用这些数据集开展了一系列研究,包括高分辨率光谱反演与归一化、关键大气成分的总体演变特征、排放估计、卫星和大气化学模式评估、空气污染和化学反应机制等。表2 [8,10,13,15,62–63,66–67,71,73,75–81]概括了基于2014–2020年合肥站的观测数据取得的研究成果清单,按主要发现、数据时间段、主题、波段、大气层范围和主题进行了分类。合肥站的主要成果如下:

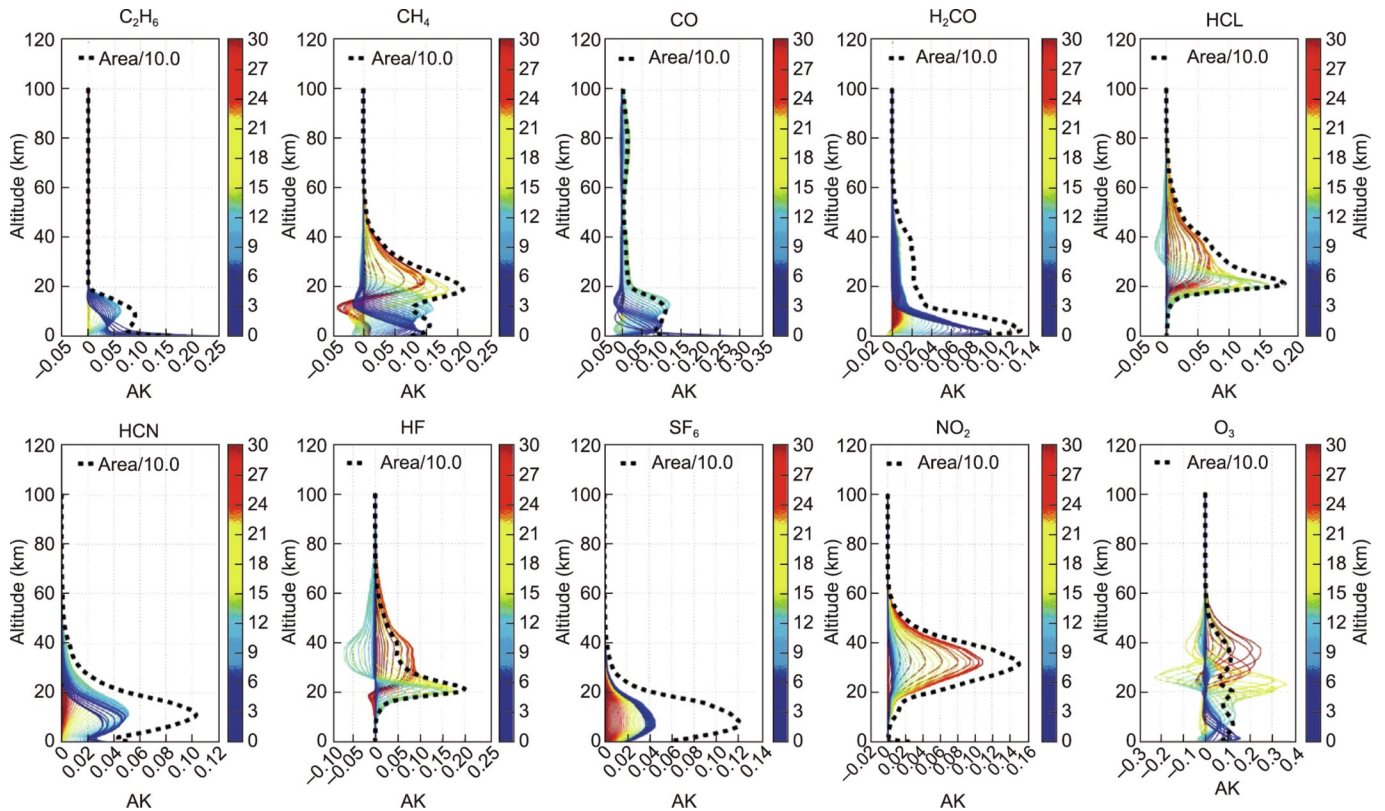


图4. 利用合肥站的MIR光谱反演的对流层气体(C_2H_6 、 CH_4 、 CO 、 H_2CO 、 HCN 和 SF_6)和平流层(HCl 、 HF 、 NO_2 和 O_3)气体的平均核函数(AK)(彩色细线)。每种气体的AK面积用黑色虚线表示,并按0.1倍缩放。

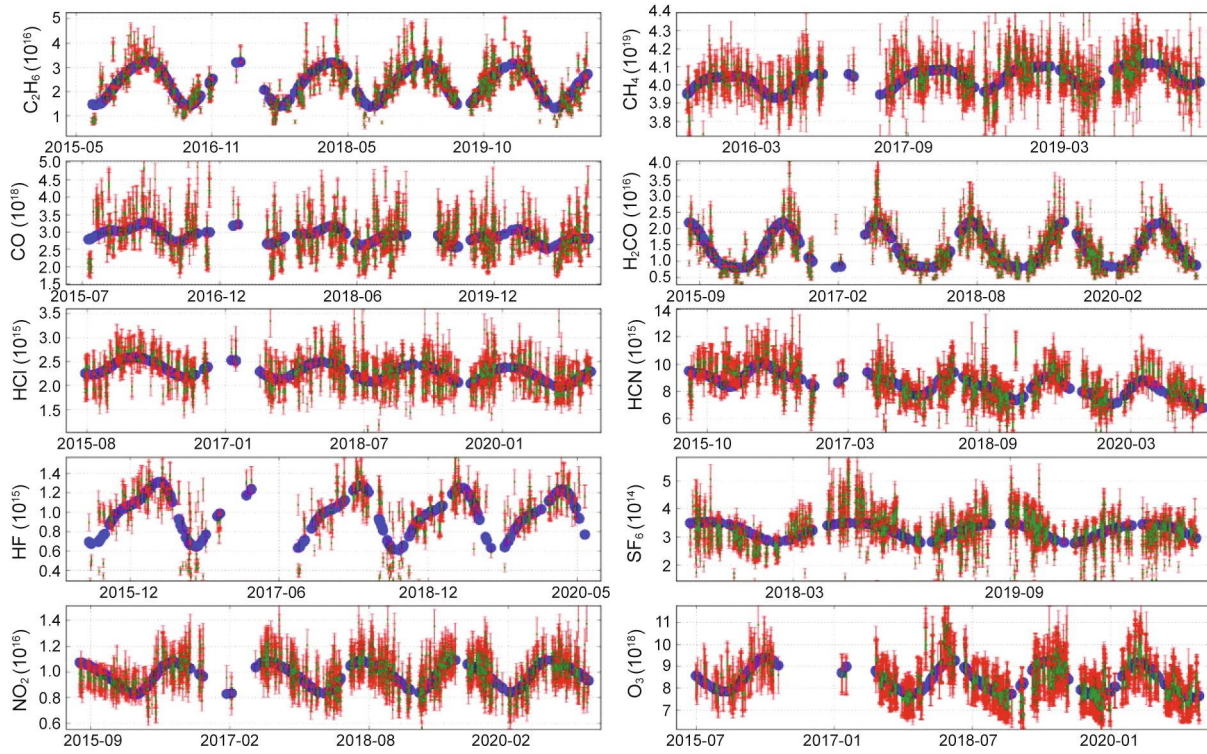


图5. 基于合肥站点的MIR光谱反演的部分气体柱总量时间序列，垂直误差条表示反演不确定度。

表2 基于2014—2020年合肥站的观测数据的研究论文清单，按主要发现、数据时间段、主题(主要气体)、波段、大气层范围和主题分类

Authors	Key findings	Period	Theme	Waveband	Domain	Topic
Wang et al. [62]	X_{CO_2} at the Hefei station showed an obvious seasonal cycle but X_{CO} displayed no clear seasonality. X_{CO_2} at the Hefei station are in good agreement with both the Greenhouse gases observing satellite (GOSAT) and Orbiting Carbon Observatory-2 (OCO-2) observations	2014.06–2016.04	CO_2 , CO	IR	Troposphere and stratosphere	Overall characteristics and satellite evaluation
Tian et al. [63]	Diurnal X_{CH_4} exhibits an increasing change rate in summer, and a decreasing change rate or remains constant in other seasons. X_{CH_4} shows a seasonal maximum in summer and a minimum in winter. X_{CH_4} from 2014 to 2017 showed an increasing change rate of $(0.56\% \pm 0.15\%) \text{ a}^{-1}$	2014.06–2017.07	CH_4	IR	Troposphere and stratosphere	Retrieval harmonization, satellite evaluation, and model evaluation
Sun et al. [75]	Attenuators cause negligible ILS drifts and can be used to adapt the received intensity of the detector. The usage of different sizes of field stop may cause dramatically ILS drifts due to inconsistent mechanical errors among the selected field stops	2015	ILS	IR & MIR	Troposphere and stratosphere	ILS characterization
Sun et al. [73]	Tropospheric gases are less sensitive to ILS drift than the stratospheric gases, and, for the same level of drift, the negative ILS influence is smaller than the positive ILS. To limit the difference in total column of ClONO_2 within 10% and other gases within 1%, the upper limits of ILS for CH_4 , N_2O , CO, HCN, C_2H_6 , O_3 , ClONO_2 , HNO_3 , HF, and HCl are suggested	2015.08–2016.08	CH_4 , N_2O , CO, HCN, C_2H_6 , O_3 , ClONO_2 , HNO_3 , HF, HCl	MIR	Troposphere and stratosphere	ILS characterization and retrieval harmonization
Sun et al. [66]	The effect of ILS drift on partial column is gas and altitude dependent. To suppress the influence on partial column within 2%, the upper limits of ILS for CH_4 , N_2O , O_3 , and CO are suggested	2015.08–2016.08	CH_4 , N_2O , O_3 , CO	MIR	Troposphere and stratosphere	ILS characterization and retrieval harmonization
Sun et al. [8]	The level and variability of tropospheric O_3 in spring and summer (March-April-May/June-July-August; MAM/JJA) are higher than those in autumn and winter (September-October-November/December-January-February; SON/DJF). Reductions in VOC and NO_x could effectively mitigate O_3 pollution in SON/DJF and MAM/JJA seasons, respectively	2014.09–2017.09	O_3	MIR	Troposphere	Overall characteristics and source attribution

Authors	Key findings	Period	Theme	Waveband	Domain	Topic
Shan et al. [76]	CO emissions over the megacity Hefei are calculated by utilizing the enhancement $\Delta\text{CO}/\Delta\text{CO}_2$ ratios derived from the NIR measurements at the Hefei station. The discrepancy between the CO emissions inferred from emission inventories and those from the measurements is also investigated	2015.09– 2017.08	CO	IR	Troposphere	Emission estimates
Yin et al. [71]	Stratospheric NO_2 column at the Hefei station shows a seasonal maximum in June and a minimum in January. GEOS-Chem model can simulate the burden, seasonal cycle, and interannual trend of stratospheric NO_2 over the polluted eastern China	2015.07– 2019.01	NO_2	MIR	Stratosphere	Overall characteristics, satellite evaluation, and model evaluation
Hedelius et al. [77]	FTS measurements at the Hefei station can be used as one of the reference datasets for evaluation of measurements of pollution in the troposphere (MOPITT) X_{CO} version 7 retrievals	2015.09– 2016.12	CO	NIR	Troposphere and stratosphere	Satellite evaluation
Yin et al. [78]	HCl total column at the Hefei station shows a seasonal maximum in January and a minimum in September. GEOS-Chem model can simulate the burden, seasonal cycle, and interannual trend of stratospheric HCl over the polluted eastern China	2015.07– 2019.04	HCl	MIR	Troposphere and stratosphere	Overall characteristics and model evaluation
Oshio et al. [79]	FTS measurements at the Hefei station can be used as one of the reference datasets for bias correction of the CH_4/CO_2 total column ratio retrieved from GOSAT observations	2015.09– 2016.12	CO_2, CH_4	NIR	Troposphere and stratosphere	Satellite evaluation
Sun et al. [10]	Tropospheric columns of HCN at the Hefei station show pronounce seasonal variations with three seasonal peaks in May, September, and December, respectively. Elevated BB emissions in Oceania dominated the HCN enhancements in the second half of 2015. Elevated BB emissions in SEAS dominated the HCN enhancements in the first half of 2016	2015– 2018	HCN, CO	MIR	Troposphere	Overall characteristics, model evaluation, and source attribution
Shan et al. [80]	GEOS-Chem model can simulate the burden, seasonal cycle, and interannual trend of CO_2 over the polluted eastern China	2015.07– 2019.12	CO_2	NIR	Troposphere	Overall characteristics and model evaluation
Sun et al. [13]	H_2CO photolysis plays a significant role in OH generation over eastern China. The NMVOCs related summertime H_2CO enhancements were largely caused by the NMVOCs emissions within eastern China. Due to the increase in photochemical H_2CO resulting from the increases in both NMVOCs and CH_4 , H_2CO from 2015 to 2019 showed an increasing trend	2015– 2019	H_2CO	MIR	Troposphere and Stratosphere	Overall characteristics, model evaluation, and source attribution
Sun et al. [15]	The observed C_2H_6 variability at the Hefei station was mainly driven by the variation of C_2H_6 emissions within China. Decrease in C_2H_6 from 2015 to 2020 points to an improvement of air quality in China, which is due to the reduction in transported and local C_2H_6 emissions in recent years	2015– 2020	C_2H_6	MIR	Troposphere	Overall characteristics, model evaluation, and source attribution
Yin et al. [67]	The X_{HF} time series at the Hefei station reached a seasonal maximum in March and a minimum in September. HF columns showed a decreasing change rates of $(-0.38\% \pm 0.22\%) \text{ a}^{-1}$ between 2015 and 2020	2015– 2020	HF	MIR	Stratosphere	Overall characteristics and retrieval harmonization
Shan et al. [81]	The stratospheric HNO_3 column at the Hefei station reached a seasonal maximum in March and a minimum in September, and showed a decreasing change rate of $(-9.45\% \pm 1.20\%) \text{ a}^{-1}$ between 2017 and 2019	2017– 2029	HNO_3	MIR	Stratosphere	Overall characteristics and satellite evaluation

4.1. 仪器函数表征及反演归一化

TCCON/NDACC 观测网的大多数 FTS 观测站都使用不同尺寸的光阑或衰减器来调整探测器的接收光强。这些行为可能会改变高分辨率 FTS 的仪器函数，增大反演偏差。Sun 等[75]首次量化了高分辨率 FTS 在不同衰减器下

的仪器函数漂移。Sun 等[75]在干涉仪的不同位置插入了 5 个衰减器，并进行了仪器函数测量，发现这 5 种衰减器造成的仪器函数漂移可以忽略不计，都可用于调整探测器的接收光强。然而，使用不同尺寸的光阑可能会产生严重的仪器函数漂移。

Sun 等[66,73]进一步模拟了不同类型的仪器函数漂移,量化了它们对所有NDACC气体反演的影响。Sun 等[66,73]发现,当仪器函数漂移为10%时,CH₄、N₂O、CO、HCN、C₂H₆、O₃、ClONO₂、HNO₃、HF和HCl的柱总量分别变化了0.04%、0.20%、2.10%、0.75%、1.10%、1.90%、23.00%、0.70%、3.00%和4.00% [73]。为了使ClONO₂柱总量偏差控制在10%以内,其他气体偏差控制在1%以内,O₃、ClONO₂、HNO₃、HF、HCl、CO、HCN和C₂H₆的仪器函数正向漂移上限分别为6%、5%、15%、5%、5%、5%、13%和9%;O₃、HF和HCl的仪器函数负漂移上限分别为6%、12%和12%;对于CH₄和N₂O,仪器函数漂移的影响可以忽略不计[73]。

Sun 等[66]研究得出仪器函数漂移对气体偏柱的影响取决于气体种类和高度。仪器函数漂移对CH₄和N₂O的影响小于对O₃和CO的影响,为了将偏柱的影响抑制在2%以内,建议反演CO和O₃时使用精确的仪器函数漂移值。CH₄在0~7 km高度和16~37 km高度的仪器函数正向漂移上限分别为13.0%和1.5%。在海拔7~16 km和16~37 km范围内,仪器函数负向漂移上限分别为12.0%和4.5%。仪器函数负向漂移对0~7 km处CH₄偏柱的影响和正向漂移对7~16 km处CH₄偏柱的影响可以忽略不计[66];N₂O在0~5.0 km、5.0~11.5 km、11.5~20.0 km和20.0~35.0 km高度范围内的仪器函数正向漂移上限分别为6.0%、4.0%、1.5%和1.5%。在11.5~20.0 km和20.0~35.0 km高度范围内,仪器函数负向漂移上限分别为2.0%和1.5%。然而,仪器函数负向漂移对0~5.0 km和5.0~1.5 km N₂O偏柱的影响可以忽略不计[66]。

合肥观测站采集的NIR和MIR光谱基于不同的滤光片、分束器和探测器,针对它们的反演采用了不同的反演波段、光谱建模方案和迭代方法,这可能会导致反演偏差。为了诊断NIR和MIR光谱反演的HF数据集是否可以合并为一个可靠的数据集,Yin 等[67]对这两个数据集进行了比较,发现NIR和MIR X_{HF}数据具有一致的季节性,但NIR X_{HF}日平均值普遍低于MIR数据,平均差值为(6.90 ± 1.07) pptv (按体积计算,万亿分之一) [67]。因此,Yin 等[67]在结合这两个数据集进行研究之前,对NIR数据集增加了6.90 pptv的固定偏差。

在合肥观测站的早期阶段,NIR光谱使用了不同的光阑和探测器。同时,这些早期的NIR光谱也缺乏同步气象数据,并且由于观测协议不完整而受到计时误差的影响。所有这些观测缺陷都有可能产生系统偏差。为了获得一致的X_{CH₄}长期时间序列,Tian 等[63]进行了一系列修正以消

除这些潜在的系统偏差,最终修正了2015年7月之前X_{CH₄}的11.0 ppb系统偏差[63]。

4.2. 关键大气成分的演变特征

合肥观测站的连续观测数据已经用于研究中国东部地区主要大气成分的总体演变特征。Wang 等[62]基于两年的NIR测量结果研究了CO₂和CO的季节变化规律,发现X_{CO₂}具有明显的季节周期,而X_{CO}没有明显的季节性。Wang 等[62]进一步分析了X_{CO}和X_{CO₂}之间的关系,发现这两种气体仅在个别观测时间段具有相关性,且随盛行风条件而变化[62]。Tian 等[63]基于合肥站2014至2017年的NIR观测数据推导了X_{CH₄}的年变化率为(0.56 ± 0.15%) a⁻¹。X_{CH₄}在夏季具有较强的日增长趋势,而其他季节日变化率呈下降趋势或保持不变。X_{CH₄}时间序列的季节最大值出现在夏季,最小值出现在冬季。1月份的X_{CH₄}年平均值比8月份低30~55 ppb。

Sun 等[8,10,13,15]利用合肥站不同时间尺度的MIR观测数据研究了中国东部地区O₃、HCN、H₂CO和C₂H₆的季节性和年际变化趋势。对流层O₃(0~12 km)具有6月最大、12月最小的季节性特征。6月对流层O₃柱浓度比12月高50%,春夏季节的对流层O₃日变化一般大于秋冬季节。这与Vigouroux 等[82]的观点不同,后者认为相对干净地区的对流层O₃通常在春季达到季节性最大值。

合肥站HCN对流层柱浓度具有明显的季节变化特征,5月、9月和12月分别出现三个季节峰值[10]。总体而言,合肥站HCN的对流层柱浓度高于NDACC其他站点的观测值。2015年9月至2016年7月HCN对流层柱浓度比其他年份同期值大5%~46%。合肥站X_{H₂CO}时间序列在7月达到季节最大值,在1月达到季节最小值,1月份的X_{H₂CO}值比7月份低42.9%。2015至2019年合肥站X_{H₂CO}时间序列呈(2.37% ± 0.70%) a⁻¹的正变化趋势。

Sun 等[15]发现C₂H₆对流层柱平均干空气摩尔分数(troDMF)在12月达到季节最大值,7月达到最小值,2015—2020年呈负增长趋势,变化率为(-2.6% ± 1.33%) a⁻¹。由于夏季对流层OH氧化能力高于冬季[15],C₂H₆ troDMF具有冬季最大值和夏季最小值的季节性特征。排放和气象因素对夏秋季节的C₂H₆ troDMF具有负向影响,对春冬季节的C₂H₆ troDMF具有正向影响。

Yin 等[71]研究发现,合肥站平流层NO₂在上半年呈递增趋势,下半年呈递减趋势,6月出现季节性最大值,1月出现季节性最小值。6月份的NO₂平流层柱浓度比1月份平均高39.20% ± 8.95%。Yin 等[67-78]和Shan 等[81]进

一步研究得出平流层 HCl、HF 和 HNO₃ 的季节变化趋势与对流层顶高度的季节性波动有关。平流层 HCl、HF 和 HNO₃ 柱浓度在 1 月份出现季节性最大值, 在 9 月份出现季节性最小值[67,78,81]。平流层 NO₂、HCl、HF 和 HNO₃ 柱浓度变化率分别为 $(-0.34\% \pm 0.05\%) a^{-1}$ (2015—2018 年)、 $(-1.83\% \pm 0.13\%) a^{-1}$ (2015—2019 年)、 $(-0.38\% \pm 0.22\%) a^{-1}$ (2015—2020 年) 和 $(-9.45\% \pm 1.2\%) a^{-1}$ (2017—2019 年)。

4.3. 排放评估

对于 CO 和 CO₂ 有共同来源的区域, 可以通过研究 CO 和 CO₂ 的相关性来推断 CO 的排放量。Shan 等[76]利用合肥站 NIR 光谱反演的 $\Delta CO/\Delta CO_2$ 比值计算了超大城市合肥的 CO 排放。Shan 等[76]还深入研究了从排放清单推断的 CO 排放量与从测量结果推断的 CO 排放量之间的差异。为此, Shan 等[76]比较了合肥站 2015 年 9 月至 2017 年 8 月通过 FTS、卫星、现场测量和排放清单获得的 $\Delta CO/\Delta CO_2$ 比值。在 Shan 等[76]的研究中使用了全球大气研究排放数据库 (EDGAR) 和北京大学 (PKU) 的排放清单。研究得出, 基于两种排放清单的 $\Delta CO/\Delta CO_2$ 比值远远大于基于地基 FTS、原位仪器和卫星测量推算的 $\Delta CO/\Delta CO_2$ 比值。

Shan 等[76]进一步利用 FTS 观测值推算的 $\Delta CO/\Delta CO_2$ 比值, 以及从 EDGAR 和 PKU 清单中得出的 CO₂ 排放量来推断 CO 排放量。基于 EDGAR 清单的 CO₂ 排放和基于 FTS 观测的 $\Delta CO/\Delta CO_2$ 比值计算的 CO 排放, 2015—2016 年约为 $(11.27 \pm 0.91) Tg \cdot a^{-1}$, 2016—2017 年约为 $(12.35 \pm 0.74) Tg \cdot a^{-1}$ 。基于 PKU 清单的 CO₂ 排放和基于 FTS 观测的 $\Delta CO/\Delta CO_2$ 比值估算的同期 CO 排放量分别约为 $(10.96 \pm 0.88) Tg \cdot a^{-1}$ 和 $(11.95 \pm 0.71) Tg \cdot a^{-1}$ 。由于 PKU 和 EDGAR 清单可以很好地再现实际的 CO₂ 排放量, 基于 FTS $\Delta CO/\Delta CO_2$ 比值与两份清单计算的 CO 排放量吻合较好。

4.4. 卫星地基校验

合肥站的 FTS 连续观测结果为卫星遥感地基验证提供了一系列有价值的数据集。为了比较卫星和地面 FTS 的测量结果, 考虑了它们在垂直分辨率和先验廓线上的差异。首先, 以 FTS 先验廓线的垂直间隔对卫星数据进行重新网格化, 减少两者先验廓线的相关差异[56]。然后通过采用卫星数据的平均核函数对 FTS 数据进行平滑处理, 最小化垂直分辨率的相关差异。最后, 再将重新网格化和平滑处理的两种观测数据进行对比。

Wang 等[62]发现合肥站的地基 FTS X_{CO₂} 时间序列与日本温室气体观测卫星 (GOSAT) 和美国碳观测卫星 (OCO-2) 观测结果吻合较好[62]。与地面 FTS 观测数据

相比, GOSAT 和 OCO-2 X_{CO₂} 时间序列的日均值偏差分别为 $(-0.52 \pm 1.63) ppm$ 和 $(0.81 \pm 1.73) ppm$ 。GOSAT 和 OCO-2 观测可以再现 FTS X_{CO₂} 时间序列的日中位数, 相关系数 (r) 分别为 0.79 和 0.83。Yuan 等[63]发现合肥站 GOSAT 与 FTS X_{CH₄} 数据的差异 (GOSAT 与 FTS 观测值之差) 均在两个数据集的误差范围内, 且与季节无关, 其平均值为 $(1.60 \pm 13.0) ppb$ ($0.09\% \pm 0.70\%$) [50,83]。GOSAT 和 FTS 观测到的 X_{CH₄} 的季节周期符合较好, 相关系数 (r) 为 0.77。

Yin 等[71]发现臭氧监测仪 (OMI) 卫星观测到的 2015—2018 年之间的平流层 NO₂ 时间序列与合肥站同期的地基 FTS 数据吻合较好, 相关系数 (r) 为 0.841 [71]。OMI 与 FTS 的年平均差值 (OMI 减去 FTS) 为 $(1.48 \pm 5.33) \times 10^{14} molecules \cdot cm^{-2}$ ($4.82\% \pm 17.37\%$) [71], 在两个数据集的不确定度范围内。OMI 与地基 FTS 观测的 2015—2018 年平流层 NO₂ 具有一致的负增长趋势, 约为 $(-0.91\% \pm 0.09\%) a^{-1}$ 。此外, Oshio 等[79]将合肥站的 FTS 测量数据作为参考数据集之一, 对 GOSAT 观测的 CH₄/CO₂ 总柱比进行了偏差校正, Hedelius 等[77]将 FTS 测量数据用于评估对流层污染监测仪 (MOPITT) X_{CO v7} 的反演结果。

Shan 等[81]将合肥站观测的平流层 HNO₃ 和 HCl 柱总量与 MLS 卫星数据进行了对比, 发现 MLS 卫星数据与 FTS 数据具有相似的季节变化和年际变化率, 两个数据集的平流层 HNO₃ 和 HCl 柱浓度的相关系数 (r) 分别为 0.87 和 0.88。卫星观测的平流层 HNO₃ 柱和 HCl 柱与傅里叶变换红外光谱 (FTIR) 数据的平均偏差分别为 $-8.58\% \pm 12.22\%$ 和 $4.58\% \pm 13.09\%$ 。

Wang 等[62]、Tian 等[63]、Yin 等[71]、Hedelius 等[77]、Oshio 等[79]、Shan 等[81]的结果验证了合肥观测站能够探测对流层和平流层关键大气成分的日、季、年际变化, 并验证了卫星观测的有效性。

4.5. 大气化学模式评估

合肥站的连续 FTS 观测数据已经用于评估大气 CTM 在中国东部地区的模拟性能。由于 CTM 的垂直分辨率与地基 FTS 存在差异, 评估之前, 对 CTM 廓线进行了平滑修正[84]。首先, 将廓线重新网格化到 FTS 垂直高度。然后, 再以 FTS 的先验廓线和 AK 对重新网格化的廓线进行平滑[68,84]。最后, 再将重新网格化和平滑后的 CTM 数据与地基 FTS 数据进行比较。

利用合肥站获得的 CH₄、NO₂、H₂CO、C₂H₆、CO₂ 等多种气体的 FTS 时间序列对 GEOS-Chem 模型进行验证。GEOS-Chem 模式总体上可以再现地基 FTS 观测到的这些

气体的季节周期和年际趋势。对于 X_{CH_4} 、 NO_2 平流层柱、 $X_{\text{H}_2\text{CO}}$ 、 C_2H_6 troDMF 和 CO_2 troDMF, GEOS-Chem 与 FTS 的相关系数 (r) 分别为 0.860、0.858、0.780、0.880 和 0.890 [13,15,63,71,80]。然而, GEOS-Chem 模式很难再现 FTS 观测到的上述气体的日变化[13]。例如, 夏季 GEOS-Chem 和 FTS 之间的 X_{CH_4} 差异比冬季大 35~55 ppb [63]。对于 NO_2 平流层柱, 秋季 GEOS-Chem 和 FTS 之间的差异要明显小于其他季节[71]。对于 C_2H_6 troDMF, GEOS-Chem 模式[15]在 7 月高估 FTS 月平均观测值 35.6%, 在 12 月低估 FTS 月平均观测值 17.4%。这些差异主要是因为 GEOS-Chem 模式在粗空间分辨率下模拟的垂直混合和水平传输方案存在一定不确定性, 难以与单点柱状观测相匹配, 也与排放清单和化学机制的不确定性有关。

GEOS-Chem 与 FTS 的 X_{CH_4} 、 NO_2 平流层柱、 $X_{\text{H}_2\text{CO}}$ 、 C_2H_6 troDMF 和 CO_2 troDMF 差异分别为 (-8.09 ± 17.83) ppb ($0.45\% \pm 0.95\%$)、 $(2.36 \pm 2.33) \times 10^{14}$ molecules $\cdot \text{cm}^{-2}$ ($7.66\% \pm 7.49\%$)、 (-0.05 ± 0.20) ppbv ($-2.60\% \pm 10.40\%$)、 (-0.02 ± 0.05) ppbv ($-1.60\% \pm 4.20\%$) 和 (-1.68 ± 1.23) ppbv ($-0.42\% \pm 0.31\%$), 均在各自气体的 FTS 反演误差范围内。结果验证了 GEOS-Chem 能够模拟中国东部污染地区的 CH_4 、 NO_2 、 H_2CO 、 C_2H_6 和 CO_2 浓度、季节循环和年际变化趋势[13,15,63,71,80]。

4.6. 大气污染、来源与传输

Sun 等[8]利用合肥站观测的对流层 O_3 、 H_2CO 和 CO 柱浓度, OMI 提供的对流层 NO_2 柱浓度, 结合气团轨迹, 研究了合肥地区的 O_3 光化学生成机制[8]。Sun 等[8]得出, 中国北部的山东和河北, 东部的江苏和安徽, 中部的陕西、湖北和湖南, 西北部的河南和山西等地的排放都对合肥地区的 O_3 生成有影响[8]。因为春夏季节的气团更多来自高度工业化和人口密集地区, 春夏季节的对流层 O_3 浓度要明显高于秋冬季节。Sun 等[8]进一步以 $\text{H}_2\text{CO}/\text{NO}_2$ 对流层柱比值为指示因子, 探索了 O_3 (PO_3) 的光化学生成敏感性。Sun 等[8]发现春夏季节 PO_3 主要受 NO_x 控制, 秋冬季节主要受 VOC 控制或 VOC- NO_x 混合控制。

GEOS-Chem 模式捕捉到了合肥站 CO 、 H_2CO 、 C_2H_6 的浓度变化, 因此 Sun 等将其用于这些气体的溯源研究 [10,13,15]。Sun 等[10]发现对流层 HCN (ΔHCN) 和 CO (ΔCO) 的增强具有很强的相关性, 表明对流层 CO 和 HCN 的增强具有相同的来源[10]。利用这一优势, Sun 等 [10]利用 GEOS-Chem 标记的 CO 模拟确定了 HCN 的来源, 得出 HCN 在 5 月的季节最大值主要归因于东亚和东南亚 (SEAS) ($41.0\% \pm 13.1\%$)、非洲 (AF) ($22.0\% \pm 4.7\%$)

及欧洲和北亚 (EUBA) ($21.0\% \pm 9.2\%$) 的生物质燃烧排放。HCN 在 9 月的季节最大值主要来自 EUBA ($38.0\% \pm 11.3\%$)、SEAS ($14.0\% \pm 3.3\%$)、AF ($26.0\% \pm 6.7\%$) 和北美 (NA) ($13.7\% \pm 8.3\%$) 的生物质燃烧排放。HCN 在 12 月的季节最大值主要受 AF ($36.0\% \pm 7.0\%$)、NA ($18.7\% \pm 5.2\%$) 和 EUBA ($21.0\% \pm 5.2\%$) 影响。

Sun 等[13]利用 GEOS-Chem 模型量化了不同地理区域和排放类别对合肥站夏季 H_2CO 增强的贡献[13]。结果表明, 非甲烷挥发性有机化合物 (NMVOC) 和 CH_4 氧化对合肥市夏季 H_2CO 增强的贡献分别为 56.73% 和 43.27%; 与夏季 H_2CO 增强有关的 NMVOC 主要是由中国东部 NMVOC 排放引起的。由于 NMVOC 和 CH_4 的增加导致光化学 H_2CO 的增加, 因此 2015—2019 年 H_2CO 呈现增加趋势 [13]。基于 Sun 等[13]早期相似的灵敏度研究方法, Sun 等[15]得出中国东部地区人为 (生物燃料+化石燃料) 排放占 C_2H_6 浓度的 49.2%, 自然 (生物质燃烧+生物排放) 排放占 37.0%。合肥站观测到的 C_2H_6 变化主要归因于中国境内 C_2H_6 排放变化 (74.0%), 其中华北、华东和华中地区贡献最大 (57.6%)。2015—2020 年 C_2H_6 呈下降趋势, 表明中国的空气质量有所改善, 这是由于近年来外源传输和本地排放的 C_2H_6 量有所减少[15]。

5. 结论及未来展望

本研究总结了我国首个 TCCON 地基高分辨率 FTS 观测站——合肥观测站, 2014 年以来取得的主要研究成果。这些研究提高了在高分辨率光谱反演和表征、气候变化、排放估计、卫星和大气化学模式验证、大气污染的来源和传输方面的认识。关于物理过程和化学机制的新发现将会被应用到 CTM 中。反过来, 经验证的 CTM 将被用于进一步改善对大气产生和消耗过程的认识。根据合肥站所取得的主要研究成果和总体构想, 未来合肥站预计将开展以下方面科学研究。

(1) 利用地基柱总量或廓线反演结果开展不同尺度的大气研究, 并在不同观测平台之间提供标准转换, 将地基 FTS 数据集转换为与世界气象组织 (WMO) 尺度相同的验证尺度。目前还未将合肥观测站的地基 FTS 数据进行基于机载观测的原位廓线测量结果的验证。这种校验将提高地基 FTS 观测的精度水平。本研究简单地假设其他 TCCON 站点的有效校准值也适用于合肥站, 并根据 Wunch 等[17]的观测偏差来定标本文 NIR 观测结果。因此, 未来的研究期待使用机载廓线测量来进一步提高合肥站点 FTS 观测的准确性。

(2) 为了解大气成分与气候变化之间的相互作用, 需要对很多种大气成分进行长期测量。因此, 合肥站将继续高质量、稳定测量所有大气成分。未来更多的物种将被研究, 如 PAN、OCS、NH₃、含氯氟烃 (CFC), 随着反演技术和新光谱数据的发展, 这些物种数量将随着时间的推移而不断增加。与 TCCON/NDACC 观测网的其他光谱仪相比, 合肥站的 IFS125HR 光谱仪覆盖了紫外光谱范围, 但在常规观测中没有尝试采集紫外光谱。计划在未来采集紫外光谱, 这将进一步增加可观测大气成分的数量。合肥站将为中国政府制定绿色经济政策、实现碳中和和《巴黎协定》目标提供科学支持。

(3) 作为大气环境观测与模拟基础设施的一部分, 高精度 FTS 数据集将被广泛用于验证大气环境观测与模拟框架内的其他仪器。尽管 IFS125HR 光谱仪在精度和稳定性等方面表现出色, 但也有局限性。IFS125HR 是一种昂贵而笨重的光谱仪, 它的运行需要大量的基础设施。定期维护其光学准直度既繁琐又受限于操作人员的专业技能。为了克服这些问题, 国际上开发了更小、更便宜且更容易运输的光谱仪, 如 EM27/SUN 和 VERTEX-80/SUN。已有研究表明 EM27/SUN 和 VERTEX-80/SUN 对于某些气体 (如 CO₂、CO 和 H₂CO) 具有与 IFS125HR 相似的探测特性, 但具有更好的流动性[70,85]。在使用 EM27/SUN 和 VERTEX-80/SUN 仪器计算城市或工业设施的排放通量之前, 将利用高分辨率 FTS 的数据集对其进行验证。经验证的 EM27/SUN 和 VERTEX-80/SUN 观测数据可以补充中国现有的高分辨率 FTS 观测数据集。此外, 合肥站点的 FTS 数据集还将用于验证未来的中国环境卫星。

(4) 合肥站积累了近 7 年的高质量大气成分观测数据。这些数据将与其他平台或 CTM 模拟数据一起使用, 并将继续提供给国内外科研团体, 以更好地了解中国和全球的气候变化、空气污染、来源、传输及其对农作物和人类健康的影响。

(5) 合肥站取得的研究成果得益于合肥站点的研究团队与 TCCON/NDACC 观测网的密切合作。合肥站未来将更多地参与国际 TCCON/NDACC 的观测和科学活动, 为深入研究全球范围内的碳循环和气候变化做出贡献。

(6) 利用合肥站的高光谱分辨率和高精度地基 FTS 数据集研究新的光谱特性。光谱特性的深入研究将有助于提高大气成分的反演精度和准确度。本文研究团队将与光谱学研究团体合作, 改进大气吸收和消光的解释。

最后, 合肥站的研究成果表明, 新建一个观测站可以在区域和全球范围内提高人们对气候变化、空气污染和传输的认识。考虑人类正面临着前所未有的气候变化挑战,

有必要在全球不同地区, 特别是在只有少量地基观测的非洲、南美洲和亚洲建立更多这样的观测站。只有充分的测量和各站点之间的密切合作, 人们才能更好地了解大气, 并利用气候模式预测“未来气候”。

致谢

本文受中国科学院青年创新促进会(2019434)和中德国际合作与交流项目(M-0036)资助。感谢 NDACC/TC-CON 观测网提供了最先进的反演软件, 感谢伍伦贡大学的 David Griffith 教授和 Nicholas Jones 教授、美国国家大气研究中心(NCAR)的 James Hannigan 教授、卡尔斯鲁厄理工学院(KIT)的 Thomas Blumenstock 教授和 Frank Hase 教授、比利时皇家空间航空研究所(BIRA-IASB)的 Corinne Vigouroux 教授、Liège 大学的 Emmanuel Mahieu 教授以及 NDACC/TCCON 观测网的许多其他同事在合肥观测站建立、运行和反演过程中给予的帮助。

Compliance with ethics guidelines

Cheng Liu, Youwen Sun, Changgong Shan, Wei Wang, Justus Notholt, Mathias Palm, Hao Yin, Yuan Tian, Jixi Gao, and Huiqin Mao declare that they have no conflict of interest or financial conflicts to disclose.

Authors' contribution

Cheng Liu and Youwen Sun designed and wrote the paper with inputs from all coauthors. Changgong Shan is in charge of TCCON retrieval, analysis, and plotting. The rest of the authors contributed to this work by providing constructive comments.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.eng.2021.11.022>.

Data availability

Dataset retrieved from the NIR spectra suite is archived in the TCCON database <https://tccodata.org/>.

Dataset retrieved from the MIR spectra suite can be available from <https://doi.org/10.5281/zenodo.5205257>. Data format and usage of the NIR and MIR datasets at the Hefei station follow the TCCON and NDACC conventions, respectively.

References

- [1] Sun YW, Liu C, Chan KL, Xie PH, Liu WQ, Zeng Y, et al. Stack emission monitoring using non-dispersive infrared spectroscopy with an optimized nonlinear absorption cross interference correction algorithm. *Atmos Meas Tech* 2013;6(8):1993–2005.
- [2] Sun Y, Liu C, Xie P, Hartl A, Chan K, Tian Y, et al. Industrial SO₂ emission monitoring through a portable multichannel gas analyzer with an optimized retrieval algorithm. *Atmos Meas Tech* 2016;9(3):1167–80.
- [3] Chan CK, Yao X. Air pollution in mega cities in China. *Atmos Environ* 2008; 42(1):1–42.
- [4] Ding A, Nie W, Huang X, Chi X, Sun J, Kerminen VM, et al. Long-term observation of air pollution – weather/climate interactions at the SORPES station: a review and outlook. *Front Environ Sci Eng* 2016;10(5):15.
- [5] He KB, Huo H, Zhang Q. Urban air pollution in China: current status, characterizes and progress. *Annu Rev Energy Environ* 2002;27:397–431.
- [6] Huang RJ, Zhang Y, Bozzetti C, Ho KF, Cao JJ, Han Y, et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China. *Nature* 2014;514(7521):218–22.
- [7] Richter A, Burrows JP, Nüss H, Granier C, Niemeier U. Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space. *Nature* 2005; 437(7055):129–32.
- [8] Sun Y, Liu C, Palm M, Vigouroux C, Notholt J, Hu Q, et al. Ozone seasonal evolution and photochemical production regime in the polluted troposphere in eastern China derived from high-resolution Fourier transform spectrometry (FTS) observations. *Atmos Chem Phys* 2018;18(19):14569–83.
- [9] Xu X, Lin W, Wang T, Yan P, Tang J, Meng Z, et al. Long-term trend of surface ozone at a regional background station in eastern China 1991–2006: enhanced variability. *Atmos Chem Phys* 2008;8(10):2595–607.
- [10] Sun Y, Liu C, Zhang L, Palm M, Notholt J, Yin H, et al. Fourier transform infrared time series of tropospheric HCN in eastern China: seasonality, interannual variability, and source attribution. *Atmos Chem Phys* 2020;20(9): 5437–56.
- [11] Zheng B, Tong D, Li M, Liu F, Hong C, Geng G, et al. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions. *Atmos Chem Phys* 2018;18(19):14095–111.
- [12] Lu X, Hong J, Zhang L, Cooper OR, Schultz MG, Xu X, et al. Severe surface ozone pollution in China: a global perspective. *Environ Sci Technol Lett* 2018; 5(8):487–94.
- [13] Sun Y, Yin H, Liu C, Zhang L, Cheng Y, Palm M, et al. Mapping the drivers of formaldehyde (HCHO) variability from 2015 to 2019 over eastern China: insights from Fourier transform infrared observation and GEOS-Chem model simulation. *Atmos Chem Phys* 2021;21(8):6365–87.
- [14] Lu X, Zhang L, Chen Y, Zhou M, Zheng B, Li K, et al. Exploring 2016–2017 surface ozone pollution over China: source contributions and meteorological influences. *Atmos Chem Phys* 2019;19(12):8339–61.
- [15] Sun Y, Yin H, Liu C, Mahieu E, Notholt J, Té Y, et al. The reduction in C₂H₆ from 2015 to 2020 over Hefei, eastern China, points to air quality improvement in China. *Atmos Chem Phys* 2021;21(15):11759–79.
- [16] Hannigan J, Coffey M, Goldman A. Semiautonomous FTS observation system for remote sensing of stratospheric and tropospheric gases. *J Atmos Ocean Technol* 2009;26(9):1814–28.
- [17] Wunch D, Toon GC, Wennberg PO, Wofsy SC, Stephens BB, Fischer ML, et al. Calibration of the total carbon column observing network using aircraft profile data. *Atmos Meas Tech* 2010;3(5):1351–62.
- [18] De Mazière M, Thompson AM, Kurylo MJ, Wild JD, Bernhard G, Blumenstock T, et al. The network for the detection of atmospheric composition change (NDACC): history, status and perspectives. *Atmos Chem Phys* 2018;18(7):4935–64.
- [19] Franco B, Mahieu E, Emmons LK, Tzompa-Sosa ZA, Fischer EV, Sudo K, et al. Evaluating ethane and methane emissions associated with the development of oil and natural gas extraction in North America. *Environ Res Lett* 2016;11(4):044010.
- [20] Davis SP, Abrams MC, Brault JW. Fourier transform spectrometry. Cambridge: Academic Press; 2001.
- [21] Messerschmidt J, Macatangay R, Notholt J, Petri C, Warneke T, Weinzierl C. Side by side measurements of CO₂ by ground-based Fourier transform spectrometry (FTS). *Tellus B Chem Phys Meteorol* 2010;62(5):749–58.
- [22] Wunch D, Toon GC, Blavier JF, Washenfelder RA, Notholt J, Connor BJ, et al. The total carbon column observing network. *Philos Trans Royal Soc Math Phys Eng Sci* 2011;369(1943):2087–112.
- [23] Washenfelder RA. Column abundances of carbon dioxide and methane retrieved from ground-based near-infrared solar spectra [dissertation]. California: California Institute of Technology; 2006.
- [24] Chevallier F, Deutscher NM, Conway TJ, Ciais P, Ciattaglia L, Dohe S, et al. Global CO₂ fluxes inferred from surface air-sample measurements and from TCCON retrievals of the CO₂ total column. *Geophys Res Lett* 2011;38(24):1–5.
- [25] Deutscher NM, Sherlock V, Fletcher SE, Griffith DWT, Notholt J, Macatangay R, et al. Drivers of column-average CO₂ variability at Southern Hemispheric total carbon column observing network sites. *Atmos Chem Phys* 2014;14(18): 9883–901.
- [26] Guerlet S, Basu S, Butz A, Krol M, Hahne P, Houweling S, et al. Reduced carbon uptake during the 2010 Northern Hemisphere summer from GOSAT. *Geophys Res Lett* 2013;40(10):2378–83.
- [27] Keppel-Aleks G, Wennberg PO, Schneider T. Sources of variations in total column carbon dioxide. *Atmos Chem Phys* 2011;11(8):3581–93.
- [28] Keppel-Aleks G, Wennberg PO, Washenfelder RA, Wunch D, Schneider T, Toon GC, et al. The imprint of surface fluxes and transport on variations in total column carbon dioxide. *Biogeosci* 2012;9(3):875–91.
- [29] Sussmann R, Forster F, Rettinger M, Bousquet P. Renewed methane increase for five years (2007–2011) observed by solar FTIR spectrometry. *Atmos Chem Phys* 2012;12(11):4885–91.
- [30] Wunch D, Wennberg PO, Messerschmidt J, Parazoo NC, Toon GC, Deutscher NM, et al. The covariation of Northern Hemisphere summertime CO₂ with surface temperature in boreal regions. *Atmos Chem Phys* 2013;13(18):9447–59.
- [31] Lutsch E, Dammers E, Conway S, Strong K. Long-range transport of NH₃, CO, HCN, and C₂H₆ from the 2014 Canadian Wildfires. *Geophys Res Lett* 2016; 43(15):8286–97.
- [32] Viatte C, Strong K, Walker KA, Drummond JR. Five years of CO, HCN, C₂H₆, C₂H₂, CH₃OH, HCOOH and H₂CO total columns measured in the Canadian high Arctic. *Atmos Meas Tech* 2014;7:1547–70.
- [33] Viatte C, Strong K, Hannigan J, Nussbaumer E, Emmons LK, Conway S, et al. Identifying fire plumes in the Arctic with tropospheric FTIR measurements and transport models. *Atmos Chem Phys* 2015;15(5):2227–46.
- [34] Vigouroux C, Stavrakou T, Whaley C, Dils B, Dufloot V, Hermans C, et al. FTIR time-series of biomass burning products (HCN, C₂H₆, C₂H₂, CH₃OH, and HCOOH) at Reunion Island (21° S, 55° E) and comparisons with model data. *Atmos Chem Phys* 2012;12(21):10367–85.
- [35] Gordon IE, Kassi S, Campargue A, Toon GC. First identification of the a₁Δg-X₃ Σ_g electric quadrupole transitions of oxygen in solar and laboratory spectra. *J Quant Spectrosc Radiat Transf* 2010;111(9):1174–83.
- [36] Gordon IE, Rothman LS, Toon GC. Revision of spectral parameters for the B- and γ-bands of oxygen and their validation against atmospheric spectra. *J Quant Spectrosc Radiat Transf* 2011;112(14):2310–22.
- [37] Hartmann JM, Tran H, Toon GC. Influence of line mixing on the retrievals of atmospheric CO₂ from spectra in the 1.6 and 2.1 μm regions. *Atmos Chem Phys* 2009;9(19):7303–12.
- [38] Long DA, Hodges JT. On spectroscopic models of the O₂ A-band and their impact upon atmospheric retrievals. *J Geophys Res* 2012;117(D12):309.
- [39] Miller CE, Wunch D. Fourier transform spectrometer remote sensing of O₂ A-band electric quadrupole transitions. *J Quant Spectrosc Radiat Transf* 2012; 113(11):1043–50.
- [40] Reuter M, Bovensmann H, Buchwitz M, Burrows JP, Connor BJ, Deutscher NM, et al. Retrieval of atmospheric CO₂ with enhanced accuracy and precision from SCIAMACHY: validation with FTS measurements and comparison with model results. *J Geophys Res* 2011;116(D4):D04301.
- [41] Reuter M, Bovensmann H, Buchwitz M, Burrows J, Deutscher N, Heymann J, et al. On the potential of the 2041–2047 nm spectral region for remote sensing of atmospheric CO₂ isotopologues. *J Quant Spectrosc Radiat Transf* 2012; 113(16):2009–17.
- [42] Scheepmaker R, Frankenberg C, Galli A, Butz A, Schrijver H, Deutscher NM, et al. Improved water vapour spectroscopy in the 4174–4300 cm⁻¹ region and its impact on SCIAMACHY HDO/H₂O measurements. *Atmos Meas Tech* 2013;

- 6(4):879–94.
- [43] Tran H, Hartmann JM. An improved O₂ A band absorption model and its consequences for retrievals of photon paths and surface pressures. *J Geophys Res* 2008;113(D18):D18104.
- [44] Tran H, Hartmann JM, Toon GC, Brown L, Frankenberg C, Warneke T, et al. The 2ν₃ band of CH₄ revisited with line mixing: consequences for spectroscopy and atmospheric retrievals at 1.67 μm. *J Quant Spectrosc Radiat Transf* 2010;111(10):1344–56.
- [45] Thompson DR, Benner DC, Brown LR, Crisp D, Malathy Devi V, Jiang Y, et al. Atmospheric validation of high accuracy CO₂ absorption coefficients for the OCO-2 mission. *J Quant Spectrosc Radiat Transf* 2012;113(17):2265–76.
- [46] Butz A, Guerlet S, Hasekamp O, Schepers D, Galli A, Aben I, et al. Toward accurate CO₂ and CH₄ observations from GOSAT. *Geophys Res Lett* 2011;38(14):L14812.
- [47] Boesch H, Deutscher NM, Warneke T, Byckling K, Cogan AJ, Griffith DWT, et al. HDO/H₂O ratio retrievals from GOSAT. *Atmos Meas Tech* 2013;6(3):599–612.
- [48] Deng F, Jones D, Henze D, Bousserez N, Bowman K, Fisher J, et al. Inferring regional sources and sinks of atmospheric CO₂ from GOSAT X_{CO₂} data. *Atmos Chem Phys* 2014;14(7):3703–27.
- [49] Frankenberg C, Wunch D, Toon G, Risi C, Scheepmaker R, Lee JE, et al. Water vapor isotopologue retrievals from high-resolution GOSAT shortwave infrared spectra. *Atmos Meas Tech* 2013;6(2):263–74.
- [50] Morino I, Uchino O, Inoue M, Yoshida Y, Yokota T, Wennberg PO, et al. Preliminary validation of column-averaged volume mixing ratios of carbon dioxide and methane retrieved from GOSAT short-wavelength infrared spectra. *Atmos Meas Tech* 2011;4(6):1061–76.
- [51] Oshchepkov S, Bril A, Yokota T, Yoshida Y, Blumenstock T, Deutscher NM, et al. Simultaneous retrieval of atmospheric CO₂ and light path modification from space-based spectroscopic observations of greenhouse gases: methodology and application to GOSAT measurements over TCCON sites. *Appl Opt* 2013;52(6):1339–50.
- [52] Parker R, Boesch H, Cogan A, Fraser A, Feng L, Palmer PI, et al. Methane observations from the Greenhouse Gases Observing Satellite: comparison to groundbased TCCON data and model calculations. *Geophys Res Lett* 2011;38(15):L15807.
- [53] Reuter M, Bösch H, Bovensmann H, Bril A, Buchwitz M, Butz A, et al. A joint effort to deliver satellite retrieved atmospheric CO₂ concentrations for surface flux inversions: the ensemble median algorithm EMMA. *Atmos Chem Phys* 2013;13(4):1771–80.
- [54] Schneising O, Bergamaschi P, Bovensmann H, Buchwitz M, Burrows JP, Deutscher NM, et al. Atmospheric greenhouse gases retrieved from SCIAMACHY: comparison to ground-based FTS measurements and model results. *Atmos Chem Phys* 2012;12(3):1527–40.
- [55] Schepers D, Guerlet S, Butz A, Landgraf J, Frankenberg C, Hasekamp O, et al. Methane retrievals from Greenhouse Gases Observing Satellite (GOSAT) shortwave infrared measurements: performance comparison of proxy and physics retrieval algorithms. *J Geophys Res* 2012;117(D10):D10307.
- [56] Wunch D, Wennberg PO, Toon GC, Connor BJ, Fisher B, Osterman GB, et al. A method for evaluating bias in global measurements of CO₂ total columns from space. *Atmos Chem Phys* 2011;11(23):12317–37.
- [57] Basu S, Houweling S, Peters W, Sweeney C, Machida T, Maksyutov S, et al. The seasonal cycle amplitude of total column CO₂: factors behind the model observation mismatch. *J Geophys Res* 2011;116(D23):D10307.
- [58] Houweling S, Aben I, Breon FM, Chevallier F, Deutscher N, Engelen R, et al. The importance of transport model uncertainties for the estimation of CO₂ sources and sinks using satellite measurements. *Atmos Chem Phys* 2010;10(20):9981–92.
- [59] Keppel-Aleks G, Randerson JT, Lindsay K, Stephens BB, Keith Moore J, Doney SC, et al. Atmospheric carbon dioxide variability in the community earth system model: evaluation and transient dynamics during the twentieth and twenty-first centuries. *J Clim* 2013;26(13):4447–75.
- [60] Mu M, Randerson JT, van der Werf GR, Giglio L, Kasibhatla P, Morton D, et al. Daily and 3 hourly variability in global fire emissions and consequences for atmospheric model predictions of carbon monoxide. *J Geophys Res* 2011;116(D24):D24303.
- [61] Messerschmidt J, Parazoo N, Wunch D, Deutscher NM, Roehl C, Warneke T, et al. Evaluation of seasonal atmosphere–biosphere exchange estimations with TCCON measurements. *Atmos Chem Phys* 2013;13(10):5103–15.
- [62] Wang W, Tian Y, Liu C, Sun Y, Liu W, Xie P, et al. Investigating the performance of a greenhouse gas observatory in Hefei, China. *Atmos Meas Tech* 2017;10(7):2627–43.
- [63] Tian Y, Sun Y, Liu C, Wang W, Shan C, Xu X, et al. Characterisation of methane variability and trends from near-infrared solar spectra over Hefei, China. *Atmos Environ* 2018;173:198–209.
- [64] Liu HY, Jacob DJ, Bey I, Yantosca RM, Duncan BN, Sachse GW. Transport pathways for Asian pollution outflow over the Pacific: interannual and seasonal variations. *J Geophys Res Atmos* 2003;108(D20):8786.
- [65] Geibel MC, Gerbig C, Feist DG. A new fully automated FTIR system for total column measurements of greenhouse gases. *Atmos Meas Tech* 2010;3(5):1363–75.
- [66] Sun Y, Liu C, Chan K, Wang W, Shan C, Hu Q, et al. The influence of instrumental line shape degradation on the partial columns of O₃, CO, CH₄ and N₂O derived from high-resolution FTIR spectrometry. *Remote Sens* 2018;10(12):2041.
- [67] Yin H, Sun YW, Liu C, Wang W, Shan C, Zha L, et al. Remote sensing of atmospheric hydrogen fluoride (HF) over Hefei, China with ground-based high-resolution Fourier transform infrared (FTIR) spectrometry. *Remote Sens* 2021;13(4):791.
- [68] Rodgers CD. Inverse methods for atmospheric sounding-theory and practice. Singapore: World Scientific Publishing Co., Pte, Ltd.; 2000.
- [69] Dammers E, Vigouroux C, Palm M, Mahieu E, Warneke T, Smale D, et al. Retrieval of ammonia from ground-based FTIR solar spectra. *Atmos Chem Phys* 2015;15(22):12789–803.
- [70] Vigouroux C, Bauer Aquino CA, Bauwens M, Becker C, Blumenstock T, De Mazière M, et al. NDACC harmonized formaldehyde time series from 21 FTIR stations covering a wide range of column abundances. *Atmos Meas Tech* 2018;11(9):5049–73.
- [71] Yin H, Sun Y, Liu C, Zhang L, Lu X, Wang W, et al. FTIR time series of stratospheric NO₂ over Hefei, China, and comparisons with OMI and GEOS-Chem model data. *Opt Express* 2019;27(16):A1225–40.
- [72] Hase F. Improved instrumental line shape monitoring for the ground-based, high-resolution FTIR spectrometers of the network for the detection of atmospheric composition change. *Atmos Meas Tech* 2012;5(3):603–10.
- [73] Sun Y, Palm M, Liu C, Hase F, Griffith D, Weinzierl C, et al. The influence of instrumental line shape degradation on NDACC gas retrievals: total column and profile. *Atmos Meas Tech* 2018;11(5):2879–96.
- [74] Pougatchev NS, Connor BJ, Rinsland CP. Infrared measurements of the ozone vertical-distribution above Kitt Peak. *J Geophys Res Atmos* 1995;100(D8):16689–97.
- [75] Sun Y, Palm M, Weinzierl C, Petri C, Notholt J, Wang Y, et al. Technical note: sensitivity of instrumental line shape monitoring for the ground-based high-resolution FTIR spectrometer with respect to different optical attenuators. *Atmos Meas Tech* 2017;10(3):989–97.
- [76] Shan C, Wang W, Liu C, Sun Y, Hu Q, Xu X, et al. Regional CO emission estimated from ground-based remote sensing at Hefei site, China. *Atmos Res* 2019;222:25–35.
- [77] Hedelius JK, He TL, Jones DBA, Baier BC, Buchholz RR, De Mazière M, et al. Evaluation of MOPITT Version 7 joint TIR–NIR X_{CO} retrievals with TCCON. *Atmos Meas Tech* 2019;12(10):5547–72.
- [78] Yin H, Sun Y, Liu C, Lu X, Smale D, Blumenstock T, et al. Ground-based FTIR observation of hydrogen chloride (HCl) over Hefei, China, and comparisons with GEOS-Chem model data and other ground-based FTIR stations data. *Opt Express* 2020;28(6):8041–55.
- [79] Oshio H, Yoshida Y, Matsunaga T, Deutscher NM, Dubey M, Griffith DWT, et al. Bias correction of the ratio of total column CH₄ to CO₂ retrieved from GOSAT spectra. *Remote Sens* 2020;12(19):3155.
- [80] Shan C, Wang W, Liu C, Guo Y, Xie Y, Sun Y, et al. Retrieval of vertical profiles and tropospheric CO₂ columns based on high-resolution FTIR over Hefei, China. *Opt Express* 2021;29(4):4958–77.
- [81] Shan C, Zhang H, Wang W, Liu C, Xie Y, Hu Q, et al. Retrieval of stratospheric HNO₃ and HCl based on ground-based high-resolution Fourier transform spectroscopy. *Remote Sens* 2021;13(11):2159.
- [82] Vigouroux C, Blumenstock T, Coffey M, Errera Q, García O, Jones NB, et al. Trends of ozone total columns and vertical distribution from FTIR observations at eight NDACC stations around the globe. *Atmos Chem Phys* 2015;15(6):2915–33.
- [83] Yoshida Y, Kikuchi N, Morino I, Uchino O, Oshchepkov S, Bril A, et al. Improvement of the retrieval algorithm for GOSAT SWIR X_{CO₂} and X_{CH₄} and their validation using TCCON data. *Atmos Meas Tech* 2013;6(6):1533–47.
- [84] Rodgers CD, Connor BJ. Intercomparison of remote sounding instruments. *J Geophys Res Atmos* 2003;108(D3):4116.
- [85] Gisi M, Hase F, Dohe S, Blumenstock T, Simon A, Keens A. X_{CO₂}-measurements with a tabletop FTS using solar absorption spectroscopy. *Atmos Meas Tech* 2012;5(11):2969–80.