

车载甲烷排放检测方法在石油天然气行业生产中的应用*

赵一炜^{1,2,3} 薛明^{1,2} 李兴春^{1,2} 刘光全^{1,2} 刘双星^{1,2} 孙学文³

(1. 石油石化污染物控制与处理国家重点实验室;

2. 中国石油集团安全环保技术研究院有限公司; 3. 中国石油大学(北京))

摘 要 如何实现甲烷减排是当前油气行业应对气候变化的重点工作,而甲烷排放的准确定量对于推动确定减排目标与对应技术手段至关重要。从目前油气行业采用的甲烷排放检测方法来看,车载甲烷检测方法具有不需要进入场站内部、检测覆盖范围较大、可以准确定位甲烷泄漏位置的优势,具备较强的推广应用潜力。文章详细介绍了示踪剂、下风向和走航式检测 3 类车载移动式甲烷排放检测方法的原理、移动实验平台搭建、现场检测数据处理,并结合国外油气行业生产过程的应用情况,分析了检测方法的优势与不足。示踪剂法检测较易操作,甲烷排放量计算方法相对简单,但在现场实际应用时,示踪气体获取、场站安全许可(示踪气体扩散通过场站)等方面可能存在一定困难;下风向检测法估算结果较为准确,但风向、风速等现场条件会影响方法的准确性,误差在 30%;走航式检测法目前更多用于天然气管网泄漏点定位,对于甲烷排放的估算还需继续开展研究。在针对石油天然气生产过程甲烷排放检测的实践中,建议充分考虑现场道路、气象、源强特征、油气地面工程布置特点等因素,针对性地选择检测方法,并考虑同步开展多种方法的对比检测。

关键词 甲烷; 石油与天然气生产; 车载检测; 温室气体排放

DOI:10.3969/j.issn.1005-3158.2021.04.001

文章编号: 1005-3158(2021)04-0001-06

Application of Vehicle-mounted Methane Detection Method in the Oil and Gas Industry

Zhao Yiwei^{1,2,3} Xue Ming^{1,2} Li Xingchun^{1,2} Liu Guangquan^{1,2} Liu Shuangxing^{1,2} Sun Xuewen³

(1. State Key Laboratory of Petroleum Pollution Control;

2. CNPC Research Institute of Safety & Environment Technology;

3. China University of Petroleum(Beijing))

ABSTRACT Methane reduction is the top priority challenges to tackle climate change in the oil and gas industry. A more accurate methane emission quantification is crucial for the following selection of reduction target and technologies. According to the current methane emission detection methods adopted internationally, vehicle-mounted methane detection method has the advantages including no need to enter the facility, large spatial coverage, and accurate location of methane leakage. It has showed strong popularization and application potential. This paper mainly introduced three kinds of vehicle-mounted methane detection methods such as tracer-flux method, downwind measurement (OTM 33A) and mobile patrolling method. From the construction of the experimental platform, data processing, combined with their application in the oil and gas production, the advantages and shortages of each detection method were analyzed. Tracer-flux method was easy to apply both on setting and data processing. However, there may be some difficulties in obtaining tracer gas and safety permit of the station (diffusion of tracer gas through the station) in-field application. Downwind measurements had a relatively high precision, and the successful deployment of the method relies on the external conditions such as wind direction and wind speed. The error was within 30%. Mobile patrolling method was suitable for leakage detection, and need more work on methane quantification study. When

* 基金项目: 国家油气重大专项课题(2016ZX05040-004); 中国石油集团重大科技专项课题(2016E-1208)。

赵一炜, 2021 年毕业于中国石油大学(北京)化学工程专业, 硕士, 主要从事油气行业温室气体检测技术研究工作。通信地址: 北京市昌平区黄河北街 1 号院 1 号楼, 102206。E-mail: zhaoyw96@163.com。

the above methods applied in the oil and gas value chain, we recommend targeted selection of detection methods with considerations on site path, meteorology, emission source feature and the characteristics of the oil and gas surface engineering setting. The application of more than one method could be considered to reduce uncertainty.

KEY WORDS methane; oil and gas production; vehicle-mounted detection; greenhouse gases emissions

0 引言

工业革命以来,化石燃料燃烧造成了全球碳排放增长、温室效应加剧等一系列环境问题。甲烷作为天然气的主要成分,在百年尺度上的增温潜势(Global Warming Potential,GWP)是二氧化碳的 21 倍左右^[1],是近期油气行业实现有效减排可以优先控制的一类温室气体。根据美国环保署(EPA)最新统计,油气系统是目前最大的人为甲烷排放源,占人为甲烷排放总量的 31%,仅油气生产过程就占整个油气系统甲烷排放量的 70%^[2]。全面、准确的甲烷排放数据是油气行业制定减排方案、跟踪甲烷减排效果的前提和基础^[3],因此对甲烷排放的现场实测与量化是关键环节之一。

甲烷排放估算具有较大不确定性,目前针对油气行业甲烷排放检测的方法主要分为自上而下与自下而上两大类。传统的自下而上的方法为现场直接检测^[4],通过对单个设备进行直接测量,从而汇总并外推至整个场站、区域以及国家的整体甲烷排放量。自上而下的方法利用车载、飞机、卫星或发射塔网络来量化环境甲烷的增强,并推断出大型地理区域所有来源的总排放量^[5-6]。大量现场实际检测结果表明^[7-12],油气行业甲烷的实际排放与核算结果存在较大差异,需要开展进一步持续的观测。

2020 年国内天然气消费比重达到 10%^[13],随着天然气消费的快速增长,天然气的清洁低碳角色得到了社会更多的关注,从而对我国油气行业的甲烷排放检测与量化提出了更高的要求。我国对于油气行业甲烷排放的研究尚处于起步阶段,且主要集中在针对单个生产环节中^[14-17],检测方法也尚未统一。

结合国际油气行业采用的甲烷排放检测技术应用现状,本文梳理了示踪剂、下风向和走航式检测 3 类用于油气产业链的车载移动式甲烷检测方法,通过车载实验平台搭建、分析方法,以及甲烷排放现场检测分析等内容的总结,全面阐述车载移动式甲烷排放检测方法的应用情况,为完善我国油气行业温室气体排放检测技术体系提供参考。

1 车载甲烷排放检测方法

1.1 车载示踪剂法

车载示踪剂法(Tracer-flux method)是一种用于

量化油气生产场站总体甲烷排放水平的技术。通过在排放源周围释放具有已知排放速率的示踪气体,一般是氧化亚氮(N_2O)和乙炔(C_2H_2)^[18-25],然后在释放位置的下风向一定距离处利用车载实验平台测定示踪剂、甲烷等气体浓度。当甲烷与示踪气体在大气混合后,由于扩散方式类似,在空间分布上保持了基本恒定的浓度比^[26]。基于这一原理,车载示踪剂法计算目标气体实时排放速率见公式(1)^[27]。

$$E_{CH_4} = Q_{示踪剂} \times \frac{(C_{CH_4} - C_{目标气体背景浓度})}{(C_{示踪剂} - C_{示踪剂背景浓度})} \quad (1)$$

式中: E_{CH_4} 为甲烷的质量排放速率,kg/h; $Q_{示踪剂}$ 为已知示踪剂的质量释放速率,kg/h; $C_{示踪剂}$ 和 C_{CH_4} 分别为测量得到的示踪剂与甲烷的浓度,mg/L 或 $\mu g/L$; $C_{目标气体背景浓度}$ 和 $C_{示踪剂背景浓度}$ 分别为示踪剂和甲烷的背景浓度,mg/L。

在进行误差分析时,一般使用误差系数对检测结果进行评估,将单个羽流(R_{plume})中测得的示踪剂比率与释放的示踪剂比率 R_{flow} 按公式(2)进行比较。

$$\text{误差系数} = \frac{R_{plume}}{R_{flow}} = \frac{\left(\frac{C_2H_2 \text{测量值}}{N_2O \text{测量值}}\right)}{\left(\frac{C_2H_2 \text{释放值}}{N_2O \text{释放值}}\right)} \quad (2)$$

在理想情况下,测得的气体羽流中示踪剂浓度升高的比率应等于已知的示踪剂释放速率的比率,此时误差系数为 1。当误差系数大于 1 时,存在高估的风险;相反,会低估真实示踪剂的比率。由于在上式中两种示踪剂(N_2O 或 C_2H_2)充当分母是任意的,所以误差系数 2 和 0.5 表示相同程度的示踪剂释放数据质量。此外,数据质量指标可以比较两个羽状流的相关程度,具体由相关系数(R^2)来衡量。一般情况下,数据质量分析要求误差系数在 0.5~2, R^2 大于 0.5。

1.2 车载下风向法

大气污染地理空间远距离测量技术(GMAP-REQ)是指使用具备快速响应功能的检测设备,结合 GPS 系统,通过远距离移动测量对空气污染进行时空解析^[28]。2014 年,EPA 发布了一种基于 GMAP-REQ 的车载下风向检测方法,即 Other Test Method(OTM) 33A。该方法主要用于:①定位排放源位置或评估排放对当地大气浓度的相对贡献;②通过 OTM 33A 的

辅助测量,了解已知排放源的排放特点;③对排放源的排放强度进行定量。

车载下风向法需要实时的甲烷浓度数据,以及三维或二维的实时风速和风向,测量地点距排放源的距离及检测地区的大气压力,空气温度、湿度等气象条件数据。根据高斯扩散方程(公式2),利用 Matlab® 程序计算排放源甲烷的质量扩散速率 Q ,见公式(3)。

$$Q = 2\pi \times \bar{U} \times \sigma_y \times \sigma_z \times C_{\text{peak}} \quad (3)$$

式中: Q 为甲烷的质量扩散速率,g/s或kg/h; $\bar{U}$ 为测量平均风速,m/s; σ_y 、 σ_z 为水平和垂直扩散系数,是关于下风向测量距离(x)和大气稳定度(ASI)的函数; C_{peak} 由甲烷浓度测量值的高斯分布拟合得到。

1.3 车载走航式检测

区别于车载示踪剂法与车载下风向法针对目标地区的固定点测量,车载走航式检测通过检测路线的制定,可对待测区域内的大气气体组分进行在线检测,并对泄漏源进行快速、准确地定位,其检测范围更广,气体组分的地理分布特征更明显。

走航式检测同样依赖于移动实验平台对现场数据的获取,包括甲烷浓度、三维风速、风向、位置和气象信息。如何将离散的甲烷泄漏从测量浓度中区分,是快速识别、定位泄漏源的关键,常见的方法是 Tau 方法^[29]。该方法是一种基于线性回归模型的统计学方法,用来筛选数据中的异常值。通过甲烷浓度样本大小、样本平均值、样本标准偏差和所需置信水平,计算满足异常值类别的甲烷阈值水平,高于甲烷临界水平的异常值表明存在泄漏。对泄漏源甲烷排放的量化主要基于大气扩散模型反演估算。常见的模型有高斯扩散模型^[30]、拉格朗日粒子扩散模型^[31]。或者采用碳同位素标记的方法^[32],区分甲烷生物来源(垃圾填埋场、农田、下水道等)和热成因来源(化石燃料),确定甲烷排放的贡献比。

2 移动实验平台的搭建

车载甲烷排放检测方法主要依靠搭建的移动实验平台进行实时和连续地甲烷浓度定点或移动测量。移动平台内一般搭载高精度、响应时间短的甲烷浓度分析仪、GPS接收器、三维超声风速仪、便携式气象站以及数据采集器。甲烷浓度分析主要采用 Picarro 公司的光腔衰荡光谱(CRDS)技术(G2203和G2301, Picarro, Santa Clara, CA, USA)^[33-38],精度可分别达到 $3 \mu\text{g/L}$ (2 s)和 $0.5 \mu\text{g/L}$ (5 s)。示踪气体浓度检测主要采用安捷伦公司的量子级联激光器(QCL)技术^[18-25],灵敏度可达到 C_2H_2 200 ng/L、 N_2O 100 ng/L。

在现场检测过程中,取样口通常置于车辆前保险杠上方3~5 m,环境空气通过特氟龙管进入到分析仪器中。另外,通常为了避免来自汽车本身尾气的干扰,可搭载便携式电源提供不间断的供电。

3 车载甲烷排放检测方法的应用

2017年EPA公布的温室气体排放清单数据显示^[39],全美油气行业产业链每年大约排放8.1 Tg的甲烷,涵盖了生产、集气、加工以及储运过程。从2011年起,美国多家高校、研究院先后开展了针对不同盆地、单元的甲烷排放现场检测^[40]。根据检测结果,实测数据与温室气体核算清单数据存在较大差异。Alvarez等^[8]通过对油气产业链的相关研究结果整理,估算出整个油气产业链的甲烷排放结果是EPA发布的1.65倍,其中生产区块和集气站贡献了78%。Allen等^[9]在美国油气生产过程观察到的气动阀门、气动泵、设备泄漏等甲烷排放数据也明显高于清单上报数据。2011年ERG咨询公司(Eastern Research Group, Inc)公布Barnett盆地的甲烷组件级检测(使用红外热成像仪和大流量采样器)结果平均为0.14 g/s,而Brantley等^[12]利用车载甲烷检测方法估算的结果是前者的近两倍。Shaw等^[10]在英国一处水力压裂平台开展了对环境空气甲烷浓度共计21 d的下风向检测,该平台在检测期排放了大约 $(7.1 \pm 2.1) \text{ t}$ 甲烷,与英国环境保护署发布的该井环境影响评估报告的上限值6.8 t相近。

在以往的研究中,超级排放源导致大量的甲烷排放,使许多油气生产设施的排放呈现拖尾分布,影响了自下而上甲烷排放估算的准确性。Zimmerle等^[11]在对Barnett页岩气开采现场进行场站尺度排放测量中发现10%的场站贡献了将近90%的甲烷排放,这些高排放来自场站的日常维护(井口卸液、井喷)和设备故障。Lyon等^[41]统计了在可以观察到的甲烷超级排放事件中储罐阀门和通风口泄漏占到了90%。然而由于甲烷排放的随机性,短期“快照式”的现场车载检测不一定能捕捉到这一甲烷排放信号,因此,采用长周期(两周或以上)检测手段对于捕捉油气生产过程中的甲烷排放信号非常必要。

除了油气生产量与甲烷排放强度无显著的相关性外,不同盆地间的甲烷排放特征也有差异。Allen等^[9]在对美国的油气生产场站利用组件级和车载示踪剂方法结合检测过程中,覆盖的生产场站天然气日均生产量从560~1 330 000 m^3 不等,其中小于2 800 m^3/d 的场站占比为10%。Brantley等^[12]在采样过程中提

高到了 37%,从而可以更好的描述低产量场站的甲烷排放特征。结果表明,生产场站的甲烷排放量与天然气生产量的线性拟合 R^2 为 0.083,相关性不明显。Robertson 等^[42]关注了美国具有不同生产特征的 4 个油气盆地,在 95% 置信区间下,4 个盆地的甲烷绝对排放量有明显差异,含油的天然气盆地甲烷绝对排放量与天然气产量呈负相关,而未含油的天然气盆地甲烷绝对排放量与产量无显著相关性,并且甲烷绝对排放量都低于含油盆地。

天然气管网的泄漏也是油气生产过程中甲烷的主要排放源之一。EPA 公布的温室气体排放清单显示,天然气输配系统的管网泄漏、计量站和用户终端仪表的甲烷年排放量为 0.401 Tg^[39]。这一结果主要通过排放系数(每次泄漏的排放量)和活度系数(不同材质管道单位长度的泄漏点个数)的乘积估算得到。Weller 等^[43]通过走航式检测调查了全美 12 个区域的天然气输送系统,估算出全美天然气管道年排放量为 0.69 Tg,这一结果是 EPA 公布的 4.8 倍。这一差异主要来自个别较大泄漏点的检测,其中 3% 的泄漏点贡献了 25% 的甲烷排放量。在不同管道材料的甲烷泄漏量对比中,Weller 等的结果与 EPA 的相一致,铁制管道每英里的泄漏个数最高,而塑料这种最新材质的天然气管道每英里泄漏个数最少。在波士顿,Mckain 等^[44]通过绘制 1 263 km 街道的甲烷排放地图,观察到天然气管网的老化导致较高的甲烷排放。同样 Ars 等^[45]在多伦多发现天然气终端输配系统是该地区甲烷的主要来源。

4 方法总结与比较

车载示踪剂法满足了油气行业在设施、场站、盆地等不同检测空间尺度上的需求,该方法的优势是不需要使用大气扩散模型开展反演,检测结果计算较为简便,在针对一定区域内甲烷整体排放水平进行测算时不确定性为 $\pm 20\%$ ^[27]。在现场实际应用时,示踪气体获取、场站安全许可(示踪气体扩散通过场站)等方面可能存在一定困难。另外,我国油气生产现场覆盖了平原、高原、山地、戈壁等多种地形,油气场站所处的地理环境相对较复杂,油气长输管线跨越多个生态区域类型,类似国外研究中平坦、开阔的地理条件较少,因此,示踪剂法检测甲烷排放在我国油气生产过程中的实际应用情况仍有待验证。

OTM 33A 作为油气行业检测方法的一种补充,在不入场站的条件下对于定位排放源和量化排放速率具有较好的精度^[46],并且可以扩展到海上平台^[47-48]

以及 VOCs 排放的检测^[49],是一种较为简单、易操作的甲烷排放检测方法。利用 OTM 33A 开展甲烷排放普查,获得油气生产场站甲烷排放基线,将有利于后期快速识别高排放场景,并指导现场泄漏检测修复工作的开展。然而,该方法比较依赖现场具备开阔的场地及持续稳定的风速条件。不同排放源的高度差异,排放气体的温度差异都可能导致下风向捕捉到甲烷信号的不同,在我国部分油气生产区域,如山区、常年风速较低的区域等可能不适用。而且由于检测过程风向的不确定,可能会造成井场甲烷排放的低估,因此,通过延长检测时间,或使用车载平台根据主风向位置调整检测位置,保证始终处于被检测对象的下风向区域,将有助于减小检测误差。

相比于前两种方法在油气行业内对甲烷排放量化的广泛使用,走航式检测目前更多的应用场景是针对估算得到的甲烷排放量级进行排序,并优先选择对排放量级较大的泄漏源进行修复。从该方法的应用情况来看,研究人员更多将其作为一种半定量的分析手段,针对不同应用场景,如油气长输管线^[50]、城市燃气管网^[51]等,还需要根据地区气象特征、管线埋深、管道材质、管道上覆土壤特点等,开展针对性的测试分析,建立基于地区与检测对象特点的甲烷排放量反演方法。已有的研究表明,车载走航式检测方法在城市天然气管道检测中对于一些较小的排放源可能存在高估^[47]。

总体而言,不同的车载甲烷排放检测方法存在不同的优势和问题,在未来的实际应用中应根据我国油气生产的特点展开针对性的对比和研究。

5 结论与展望

车载甲烷排放检测方法在检测范围上可以实现从油气生产场站到油气生产区块级别甲烷排放的量化,是对现有自下而上设备组件级检测方法的有效补充。通过发挥这类方法检测耗时相对较短、不需要入场站的优势,能够实现在短时间内多区域的覆盖。考虑到当前油气生产单井、处理场站、长输管线、城市燃气管网等的泄漏检测需要耗费较多人力,使用车载检测方法开展巡检,建立甲烷浓度与排放水平基线,将有助于快速判断场站泄漏水平,为进场检测泄漏提供参考依据。

此外,我国油气开采行业将全面开展 VOCs 排放管控工作,针对甲烷/VOCs 等开展泄漏检测修复(生产者),场站排放水平核查(管理者)、场界甲烷/VOCs 浓度检测(监管者)将面临大量的应用需求。考虑到油气产业链各设施,尤其是油/气井分布较为分散,除

了油气处理场站/接转站适用采取常规泄漏检测修复工作(LDAR)外,其它分散井口/平台采取自上而下的检测方法将更为实用高效。

实际应用过程中,如何使“快照式”的检测更准确的表征油气产业链各环节甲烷排放的时空变化规律,成为评估检测方法准确度的关键因素。除了提高采样频率,延长单次采样时长等方法外,结合前端一般工况建立储罐、压缩机等关键设备在不同负荷条件下的甲烷/VOCs排放模型与大气扩散机制,对于准确解读自上而下的检测结果至关重要。

在下一步的研究工作中,建议尽快在国内油气行业开展不同检测方法对比测试,与温室气体清单数据进行对比,建立不同甲烷排放过程、排放源的大气扩散特征,并基于我国油气地面工程实际开展方法的适用性与准确性分析。

参考文献

- [1] 薛明,翁艺斌,刘光全,等.石油与天然气生产过程甲烷逃逸排放检测与核算研究现状及建议[J].气候变化研究进展,2019,15(2):187-196.
- [2] U.S. Environmental Protection Agency. Inventory of U. S. greenhouse gas emissions and sinks:1990—2014[R]. 2016.
- [3] 杨罕玲,秦虎,汪维.美国油气行业甲烷减排措施及启示[J].环境影响评价,2019,41(1):20-23.
- [4] ALLEN D T, SULLIVAN D W, ZAVALA-ARAIZA D, et al. Methane emissions from process equipment at natural gas production sites in the United States: Liquid unloadings[J]. Environmental science & technology, 2015, 49(1):641-648.
- [5] 崔翔宇,邓皓,刘光全,等.油气田温室气体排放测试与评估方法[J].天然气工业,2011,31(4):117-120.
- [6] CHENG G J, YANG S, LV C F, et al. An improved method for estimating GHG emissions from onshore oil and gas exploration and development in China [J]. Science of the total environment, 2017, 574:707-715.
- [7] RAVIKUMAR A P, SREEDHARA S, WANG J F, et al. Single-blind inter-comparison of methane detection technologies-results from the Stanford/EDF mobile monitoring challenge[J]. Elem Sci Anth, 2019, 7:37.
- [8] ALVAREZ R A, ZAVALA-ARAIZA D, LYON D R, et al. Assessment of methane emissions from the U. S. oil and gas supply chain [J]. Science, 2018, 361 (6398): 186-188.
- [9] ALLEN D T, TORRES V M, THOMAS J, et al. Measurements of methane emissions at natural gas production sites in the United States[J]. Proceedings of the national academy of sciences of the United States of America, 2013, 110(44):17768-17773.
- [10] SHAW J T, ALLEN G, PITT J, et al. Methane flux from flowback operations at a shale gas site[J]. Journal of the air & waste management association, 2020, 70 (12):1324-1339.
- [11] ZIMMERLE D J, WILLIAMS L L, VAUGHN T L, et al. Methane emissions from the natural gas transmission and storage system in the United States[J]. Environmental science & technology, 2015, 49(15):9374-9383.
- [12] BRANTLEY H L, THOMA E D, SQUIER W C, et al. Assessment of methane emissions from oil and gas production pads using mobile measurements[J]. Environmental science & technology, 2014, 48(24):14508-14515.
- [13] 国家发展改革委,国家能源局.能源发展“十三五”规划[J].浙江节能,2019(1):6-23.
- [14] YANG S, YANG W, CHEN G J, et al. Greenhouse gas emissions from oilfield-produced water in Shengli Oil-field, Eastern China [J]. Journal of environmental sciences, 2016, 46:101-108.
- [15] 仲佳爱,陈国俊,张中宁,等.四川盆地气矿天然气开发过程中温室气体的排放特征[J].环境科学研究,2015, 28(3):355-360.
- [16] 杨爽,陈国俊,杨巍,等.胜坨油田原油温室气体排放特征及其影响因素[J].环境科学研究,2016,29(7):978-984.
- [17] CHEN G J, YANG S, LV C F, et al. An improved method for estimating GHG emissions from onshore oil and gas exploration and development in China[J]. Science of the total environment, 2017, 574:707-715.
- [18] YACOVITCH T I, DAUBE C, VAUGHN T L, et al. Natural gas facility methane emissions: Measurements by tracer flux ratio in two US natural gas producing basins [J]. Elem Sci Anth, 2017, 5:69.
- [19] WELLER Z D, ROSCIOLI J R, DAUBE W C, et al. Vehicle-based methane surveys for finding natural gas leaks and estimating their size: validation and uncertainty[J]. Environmental science & technology, 2018, 52 (20): 11922-11930.
- [20] SUBRAMANIAN R, WILLIAMS L L, VAUGHN T L, et al. Methane emissions from natural gas compressor stations in the transmission and storage sector: Measurements and comparisons with the EPA greenhouse gas reporting program protocol[J]. Environmental science & technology, 2015, 49(5):3252-3261.
- [21] ROSCIOLI J R, HERNDON S C, YACOVITCH T I, et al. Characterization of methane emissions from five cold heavy oil production with sands(CHOPS) facilities [J]. Journal of the air & waste management association, 2018, 68(7):671-684.
- [22] DELRE A, MONSTER J, SCHEUTZ C. Greenhouse gas

- emission quantification from wastewater treatment plants, using a tracer gas dispersion method[J]. *Science of the total environment*, 2017, 605/606:258-268.
- [23] ZAVALA-ARAIZA D, HERNDON S C, ROSCIOLI J R, et al. Methane emissions from oil and gas production sites in Alberta, Canada[J]. *Elem Sci Anth*, 2018, 6:27.
- [24] VAUGHN T L, BELL C S, YACOVITCH T I, et al. Comparing facility-level methane emission rate estimates at natural gas gathering and boosting stations[J]. *Elem Sci Anth*, 2017, 5:71.
- [25] OMARA M, ZIMMERMAN N, SULLIVAN M R, et al. Methane emissions from natural gas production sites in the United States: Data synthesis and national estimate [J]. *Environmental science & technology*, 2018, 52(21): 12915-12925.
- [26] MONSTER J, SAMUELSSON J, KJELDSSEN P, et al. Quantification of methane emissions from 15 Danish landfills using the mobile tracer dispersion method[J]. *Waste management*, 2015, 35:177-186.
- [27] SCHEUTZ C, SAMUELSSON J, FREDENSLUND A M, et al. Quantification of multiple methane emission sources at landfills using a double tracer technique[J]. *Waste management*, 2011, 31(5):1009-1017.
- [28] U.S. EPA. Other test method(OTM) 33 and 33A geospatial measurement of air pollution-remote emissions quantification-direct assessment (GMAP-REQ-DA) [EB/OL]. (2014-09-12) [2020-10-12]. <https://www.epa.gov/emc>.
- [29] KEYES T, RIDGE G, KLEIN M, et al. An enhanced procedure for urban mobile methane leak detection[J]. *Heliyon*, 2020, 6(10):e04876.
- [30] FISCHER J C V, COOLEY D, CHAMBERLAIN S, et al. Rapid, vehicle-based identification of location and magnitude of urban natural gas pipeline leaks[J]. *Environmental science & technology*, 2017, 51(7):4091-4099.
- [31] LI H Z, REEDER M D, LITTEN J, et al. Identifying under-characterized atmospheric methane emission sources in Western Maryland[J]. *Atmospheric environment*, 2019, 219:117053.
- [32] PHILLIPS N G, ACKLEY R, CROSSON E R, et al. Mapping urban pipeline leaks: Methane leaks across Boston[J]. *Environmental pollution*, 2013, 173:1-4.
- [33] ROBERTSON A M, EDIE R, SNARE D, et al. Variation in methane emission rates from well pads in four oil and gas basins with contrasting production volumes and compositions[J]. *Environmental science & technology*, 2017, 51(15):8832-8840.
- [34] BELL C S, VAUGHN T L, ZIMMERLE D, et al. Comparison of methane emission estimates from multiple measurement techniques at natural gas production pads [J]. *Elem Sci Anth*, 2017, 5:79.
- [35] RIDDICK S N, MAUZERALL D L, CELIA M, et al. Methane emissions from oil and gas platforms in the North Sea[J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2019, 19(15):9787-9796.
- [36] LOWRY D, FISHER R E, FRANCE J L, et al. Environmental baseline monitoring for shale gas development in the UK: Identification and geochemical characterization of local source emissions of methane to atmosphere[J]. *Science of the total environment*, 2020, 708:134600.
- [37] YACOVITCH T I, DAUBE C, VAUGHN T L, et al. Natural gas facility methane emissions: Measurements by tracer flux ratio in two US natural gas producing basins [J]. *Elem Sci Anth*, 2017, 5:69.
- [38] KARION A, SWEENEY C, PÉTRON G, et al. Methane emissions estimate from airborne measurements over a western United States natural gas field[J]. *Geophysical research letters*, 2013, 40(16):4393-4397.
- [39] U.S. EPA. Inventory of U. S. Greenhouse gas emissions and sinks; Environmental system science data infrastructure for a virtual ecosystem 2018[EB/OL]. (2019-05-11) [2020-10-19]. <https://www.epa.gov/ghgemissions/inventory-us-greenhouse-gas-emissions-and-sinks>.
- [40] Environmental Defense Fund. Methane research series: 16 studies[EB/OL]. (2018-01-23) [2020-10-19]. <https://www.edf.org/climate/methane-research-series-16-studies>.
- [41] LYON D R, ALVAREZ R A, ZAVALA-ARAIZA D, et al. Aerial surveys of elevated hydrocarbon emissions from oil and gas production sites[J]. *Environmental science & technology*, 2016, 50(9):4877-4886.
- [42] ROBERTSON A M, EDIE R, SNARE D, et al. Variation in methane emission rates from well pads in four oil and gas basins with contrasting production volumes and compositions[J]. *Environmental science & technology*, 2017, 51(15):8832-8840.
- [43] WELLER Z D, HAMBURG S P, FISCHER J C. A national estimate of methane leakage from pipeline mains in natural gas local distribution systems[J]. *Environmental science & technology*, 2020, 54(14):8958-8967.
- [44] MCKAIN K, DOWN A, RACITI S M, et al. Methane emissions from natural gas infrastructure and use in the urban region of Boston, Massachusetts [J]. *Proceedings of the national academy of sciences of the United States of America*, 2015, 112(7):1941-1946.
- [45] ARS S, VOGEL F, ARROWSMITH C, et al. Investigation of the spatial distribution of methane sources in the Greater Toronto Area using mobile gas monitoring systems[J]. *Environmental science & technology*, 2020, 54(24):15671-15679.