杨 樱,马心怡,黄文晶,等.基于 WRF-STILT 模式的长三角大气 CO_2 排放反演 [J]. 中国环境科学, 2025,45(7):3622-3633.
Yang Y, Ma X Y, Huang W J, et al. Inversion of atmospheric CO_2 emissions in Yangtze River Delta based on WRF-STILT model [J]. China Environmental Science, 2025,45(7):3622-3633.

基于 WRF-STILT 模式的长三角大气 CO_2 排放反演

杨 樱[1,2],马心怡[3],黄文晶[3],胡 诚[4],胡 凝[2],张 弥[1],曹 畅[1],柳艺博[1],肖 薇[2*] (1 南京信息工程大学,中国气象局生态系统碳源汇重点开放实验室,大气环境中心,江苏 南京 210044；2.南京信息工程大学,气象灾害预报预警与评估省部共建协同创新中心,江苏 南京 210044；3.航天新气象科技有限公司,江苏 无锡 214000；4.南京林业大学生态与环境学院,江苏 南京 210018)

摘要：准确估算区域尺度特别是大城市群的 CO_2 排放对温室气体减排工作至关重要,利用 WRF-STILT 模式结合三种先验人为 CO_2 排放清单(EDGAR v6.0、EDGAR v6.0 与 GCG v1.0 相结合的改进清单、ODIAC 清单)模拟 2018 年冬季长三角地区大气 CO_2 浓度,并以安徽全椒 70m 高塔的大气 CO_2 浓度观测数据作为参考值,通过比例因子贝叶斯反演的方法对模拟结果进行优化,实现了长三角区域人为 CO_2 排放通量的估算.结果表明:WRF-STILT 模式模拟的 CO_2 浓度能够较好地显示长三角的 CO_2 排放特征.冬季,改进清单模拟的 CO_2 浓度值较仅使用 EDGAR v6.0 模拟的 CO_2 浓度值更接近于观测值;基于EDGAR清单和改进清单估算的后验 CO_2 排放通量分别为(0.199±0.005)和(0.200±0.007) mg/(m^2·s),相较于这两个清单的先验 CO_2 排放通量,后验排放通量分别下降了 0.02 和 0.01mg/(m^2·s),比例因子贝叶斯反演法对基于 EDGAR 清单先验排放的优化幅度较大,用改进清单计算长三角 CO_2 排放总量时电力与工业排放是不确定性的最大来源;夜晚边界层高度较低,模型在模拟时将边界层外的排放计算进来导致模拟值的高估.在未来进行模拟时首先应确保 WRF 模型模拟的夜晚小时边界层高度是准确的,其次排放清单产品在制作过程中还应考虑垂直方向上不同排放源的高度信息.

关键词：温室气体；WRF-STILT 模式；长三角区域；CO_2
中图分类号：X511 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2025)07-3622-12

Inversion of atmospheric CO_2 emissions in Yangtze River Delta based on WRF-STILT model.

YANG Ying[1,2], MA Xin-yi[3], HUANG Wen-jing[3], HU Cheng[4], HU Ning[2], ZHANG Mi[1], CAO Chang[1], LIU Yi-bo[1], XIAO Wei[2*] (1.Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, Key Laboratory of Ecosystem Carbon Source and Sink-China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China；2.Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China；3.Aerospace New Meteorological Technology Co., Ltd, Wuxi 214000, China；4.Department of Ecology and Environment, Nanjing Forestry University, Nanjing 210018, China). *China Environmental Science*, 2025,45(7)：3622~3633

Abstract：Accurate estimation of CO_2 emissions at the regional scale, particularly in large urban agglomerations, is essential for effective greenhouse gas mitigation. In this study, the WRF-STILT model, combined with three prior anthropogenic CO_2 emission inventories (EDGAR v6.0, an improved version of EDGAR v6.0 integrated with GCG v1.0, and the ODIAC inventory) was used to simulate atmospheric CO_2 concentrations in the Yangtze River Delta during winter 2018. Observational data from a 70-meter tower in Quanjiao, Anhui province, served as the reference. A scale factor Bayesian inversion method was applied to optimize the simulation results, allowing estimation of anthropogenic CO_2 emission fluxes in the region. The results indicate that the CO_2 concentrations simulated by the WRF-STILT model effectively reflect the emission characteristics of the Yangtze River Delta. In winter, simulations based on the improved inventory aligned more closely with observations than those using EDGAR v6.0alone. The posterior CO_2 emission fluxes estimated using the EDGAR and improved inventories were (0.199 ± 0.005) and (0.200 ± 0.007) mg/(m^2·s), respectively—representing decreases of 0.02 and 0.01mg/(m^2·s) compared to the prior flux estimates. The Bayesian inversion method significantly optimized the prior emissions from the EDGAR inventory. When calculating total CO_2 emissions for the region using the improved inventory, power generation and industrial sectors were identified as the primary sources of uncertainty. Additionally, due to the low nocturnal boundary layer height, the model tended to overestimate the contribution of elevated emission sources near the observation site. Future simulations should ensure the WRF model accurately captures hourly boundary layer heights, and that vertical emission profiles of point sources are incorporated into emission inventories.

Key words：greenhouse gases；WRF-STILT model；Yangtze River Delta；CO_2
收稿日期：2024-11-25
基金项目：江苏省碳达峰碳中和科技创新专项资金资助(前沿基础)项目(BK2022020);国家自然科学基金项目(U24A20590,41975143,42021004);江苏省杰出青年基金项目(BK20220055);江苏省“333 人才”领军型人才团队(BRA2022023)
* 责任作者, 教授, wei.xiao@nuist.edu.cn

减少城市地区的CO_2排放对减缓未来气候变化至关重要.然而,目前城市尺度 CO_2 排放清单的不确定性可高达 50%[1-4],准确量化城市地区的排放量是评估 CO_2 排放政策有效性的关键所在.区域尺度上估算人为 CO_2 排放的方法主要有“自下而上”的清单方法和“自上而下”的大气反演法.“自下而上”法是由区域小尺度的通量结果推算到更大的空间尺度上,如 IPCC 算法、涡度相关法等[5-8].其计算原理和过程相对简单,所以在温室气体通量研究中被广泛应用,但受下垫面空间高异质性、模型系数等因素,估算结果通常会有很大的误差[9-12].以往研究发现这种方法对垃圾填埋、水稻种植等人为源的估算不确定性较大[13-15].“自上而下”法是通过观测数据反算或者模型间接反演区域尺度的温室气体排放量,如卫星遥感观测和边界层算法等[16-19].该方法最初是被用于研究植被生态系统净交换[20],从 2010 年逐步被运用到反演城市温室气体排放量[21].但由于城市下垫面复杂、人为排放的高空间异质性等难点,使得城市温室气体的排放反演仍存在一定的问题.

近年来,大气传输(欧拉和拉格朗日)模式结合温室气体浓度观测的反演算法,为准确估算人为 CO_2 排放提供了新的解决方案[22-26].最常用的大气传输模式——拉格朗日大气传输模式(WRF-STILT)模拟法,将先验排放清单的 CO_2 通量与大气传输模式结合可以得到模拟的 CO_2 浓度,再根据观测的大气 CO_2 浓度来评估先验通量的偏差并得到优化系数,使得模拟值更接近于真实值.该方法在使用时将先验排放清单作为输入项,需要与大气传输模型模拟的足迹权重在空间上相结合,而先验排放清单在数据更新时间、排放点源空间分布以及排放分配方案等方面存在不确定性,以往在中国、波兰和阿根廷开展的区域尺度上的研究均发现估算结果存在一定的误差,也存在空间分配不合理及排放源点定位不准确的问题[27-31],这会对模拟的 CO_2 浓度及 CO_2 排放反演结果带来一定的误差[32-37].此外,城市边界层由于受到城市冠层输送、建筑物阻力、粗糙度及多重反射等导致其结构复杂,影响巨大[38].

本文将 3 种清单及其组合清单中的大气 CO_2 排放数据与 WRF-STILT 模式相结合通过对大气 CO_2 浓度数据进行模拟来探讨适用于区域尺度CO_2排放反演的先验排放清单的组合方式,并针对边界层高度对模拟及反演的影响这一问题,通过比对 ERA5 和 WRF 模拟的边界层高度来分析研究.

1　材料与方法

1.1　大气 CO_2 浓度观测和配套数据

1.1.1　观测站点　大气 CO_2 浓度观测站点位于长三角中心的安徽省全椒县武岗镇官渡村(31.97°N, 118.26°E,海拔高度 10m)的 70m 高塔.该站点距安徽省和江苏省的省界 9.6km,下垫面类型单一且空旷,以大片农田和鱼塘为主,远离城市的直接影响.研究使用的观测仪器为基于波长扫描光腔衰荡光谱技术的 CO_2/CH_4/H_2O 温室气体分析仪(型号为 G1301 和 G2301, Picarro Inc., Sunnyvale, CA, USA),观测时间段为 2018 年 12 月到 2019 年 2 月.2018 年 12 月观测仪器型号为 G1301,2019 年 1 月和 2 月观测仪器型号为 G2301,进气口都位于塔顶,初始采样频率为 1Hz,5 分钟内两型号仪器 CO_2 的测量精度 $<50\times10^{-9}$,测量范围在$(0\sim1000)\times10^{-6}$.月尺度上,标准温压的情况下,仪器对于 CO_2 的最大漂移$<500\times10^{-9}$.由于气体分析仪观测比较稳定,无需频繁的实时校准,所以每年使用中国国家计量科学研究院制定的国家一级标准 490×10^{-6}的 CO_2 标准气体进行对仪器进行一次线下标定,通过对标定期间数据分析得到的校正方程对仪器的读数进行校正.标定的主要过程为:测量 15min CO_2 浓度梯度的国家一级标准气体,去除前后 5min 的数据,仅使用中间观测稳定的 5min 数据计算标气对应的平均仪器浓度读数.由于分析仪具有高度线性,可以将两个梯度的标气真实浓度值与各自对应的仪器浓度读数结合,从而得到通过这两点定义的校准方程,进而对仪器读数进行校正.通过将观测到的原始数据在半小时尺度上求平均,使用 0.5h 内的标准差和五点滑动平均法对离群值进行剔除,并根据工作日志剔除更换过滤器期间的数据来保证数据质量[39].

1.1.2　背景浓度　大气 CO_2 背景浓度采用全球背景场瓦里关大气本底站(WLG, 36°17′N, 100°53′ E, 海拔高度 3810m)和乌兰乌尔蒙古大气本底站(UUM, 44°26′N, 111°5′E,海拔高度 992m)的观测数据,通过线性插补分别将 WLG 站每日和 UUM 站每周的大气 CO_2 浓度观测数据插补成小时尺度的数据,并将二者的算术平均值作为本研究的大气CO_2浓度背景

值.此线性插值方法与美国国家海洋和大气管理局碳循环组开发的数字滤波曲线拟合程序(CCGCRV)回归结果非常相似,相差不到 0.5%[40-41].因此考虑到风向及数据的可获得性,本文选取位于研究区域北方的瓦里关站和乌兰乌尔蒙古站线性插值后的平均浓度作为本研究的背景浓度.

1.1.3 风向观测 除上述气体分析仪观测浓度外,同一高度处还安装有三维超声风速仪(型号 CSAT3, Campbell Scientific, Inc., Logan, UT, USA)用来观测风向,采样频率为 10Hz.

1.2 CO_2 排放清单和再分析资料

1.2.1 人为 CO_2 排放清单 本研究使用的先验人为 CO_2 排放清单有 3 个:全球大气研究排放数据库(Emissions Database for Global Atmospheric Research, EDGAR)v6.0 版本、全球高分辨率碳排放网格数据集(Global Carbon Grid, GCG) v1.0 版本、人为 CO_2 开放数据清单(Open-Data Inventory for Anthropogenic Carbon dioxide, ODIAC).

EDGAR 清单是一种全球性的 CO_2 排放清单产品,空间分辨率为 0.1°×0.1°,时间分辨率为月.EDGAR 主要采用国际能源机构(IEA)的能源统计数据和政府间气候变化专门委员会(IPCC)默认的排放因子(EFs),点源排放则源于一个追踪 CO_2 的全球数据库"碳监测行动"数据库(Carbon Monitoring for Action, CARMA)[42-43].EDGAR v6.0 提供了 20 种人为 CO_2 排放类别,包括电力行业、制造业燃烧、钢铁生产、建筑能源、道路运输、船运、农业土壤、化学过程、化石燃料火灾、燃料非能源使用、有色金属生产、非金属矿产生产、燃料开采、溶剂和产品使用、炼油厂和转型行业、固体废物焚烧、铁路管道越野运输、航空信息(飞机爬升、飞机巡航和飞机起降).本研究选取 2018 年 12 月~2019 年 2 月的 EDGAR 人为 CO_2 排放作为先验排放数据.

GCG v1.0 版本来源于清华大学开发的全球能源基础设施碳排放数据库(Global Energy Infrastructure Emissions Database, http://gidmodel.org.cn/,GID).GCG v1.0 的空间分辨率为 0.1°×0.1°,提供了 2019 年全球六类人为排放源(电力、工业、住宅、运输、船运和航空)的 CO_2 空间分布图.该数据集的信息每年更新,包括点源数据、国家层面各部门的活动和排放数据及其分布,以提供最新的全球排放情况.以往研究发现,GCG v1.0 中约 70%的排放位置相对准确,在排放点源定位准确度方面高于 EDGAR[44].但是,GCG v1.0 提供的 6 种人为 CO_2 排放类别仅涵盖了 EDGAR v6.0 中的 20 种人为排放源中的 9 种,另外 11 种排放量较小的 CO_2 源(如农业土壤等)则并未考虑.

ODIAC 的能源统计数据来自美国国家海洋和大气局 CO_2 信息分析中心(Carbon Dioxide Information Analysis Center, CDIAC)以及英国石油公司发布的世界能源统计年鉴(BP Statistical Review of World Energy).其排放因子采用了政府间气候变化专门委员会(IPCC)提供的默认值,而空间分布则是基于空间代理数据,如卫星夜间照明数据和 CARMA 数据库的点源数据等.ODIAC 提供的全球人为 CO_2 排放分布图的空间分辨率为 1km×1km.但是 ODIAC 产品仅包含 CO_2 总排放的空间分布图,并未发布各类排放源的具体排放数据[45-46].

1.2.2 自然 CO_2 排放清单 净生态系统 CO_2 交换和生物质燃烧 CO_2 排放数据来源于 Carbon Tracker 全球大气 CO_2 模型估算的 CO_2 通量,其时间分辨率为 3h,空间分辨率为 1°×1°[47].本研究采用线性插值法将时间分辨率转化为每小时,空间上将 1°×1°的网格线性插值为 0.1°×0.1°.由于本研究只关注冬季的 CO_2 排放,而冬季是非生长季节,植物生态系统的净交换和生物质燃烧的贡献都较低且为正值[48-49],因此将植被生态系统净 CO_2 交换量和生物质燃烧 CO_2 排放量统称为自然 CO_2 排放.

1.2.3 ERA5 边界层高度信息 ERA5 是欧洲中期天气预报中心(ECMWF)发布的第五代全球气候和天气再分析产品.该数据集结合了模型数据与全球各地的观测数据,并基于物理定律构建,时间分辨率为小时.由于缺乏边界层高度直接的观测数据,所以本研究使用 ERA5 数据集中的大气边界层高度(Planetary Boundary Layer Height, PBLH)数据作为参考,以便与后续 WRF 模式模拟的边界层高度进行对比分析.

1.3 大气 CO_2 浓度模拟

1.3.1 大气 CO_2 浓度模拟组成 局地大气 CO_2 浓度模拟值由 3 部分组成:大气 CO_2 浓度背景值($CO_{2,bg}$)、各类人为活动引起的 CO_2 贡献值(人为源)、植被生态系统净交换和生物质燃烧 CO_2 贡献值(自

然源)[50-51](公式(1)),ΔCO_2 为人为源与自然源之和,可以由先验清单中的 CO_2 通量与 WRF-STILT 模式模拟的足迹权重计算得到(公式(2)).

$$CO_{2,model}=CO_{2,bg}+\Delta CO_2 \tag{1}$$

$$\Delta CO_2=\sum_{i=1}^{n}[foot_i\cdot(flux_{CO_2})_i] \tag{2}$$

式中: n 代表对某一时刻模拟的 CO_2 增加量有贡献的累积时间;i 为 n 小时中的任意时刻,$foot_i$ 为第 i 时刻模型模拟的足迹权重,为第 i 小时研究区域内的 CO_2 通量(包括人为 CO_2 通量和自然 CO_2 通量).由于 7d 能够充分累积对观测站点大气 CO_2 浓度产生影响的 CO_2 排放源的贡献,因此本研究将模型中的 n 设定为 168h(7d),时间步长为 1h .以往研究通常将足迹权重大于 $10^{-4}\times10^{-6}$[μmol/(m^2·s)]$^{-1}$ 的区域定义为对观测站点贡献最敏感的区域,即大气浓度观测的强贡献区[52-53].

1.3.2　WRF-STILT 模式　中尺度天气预报 WRF 模式由美国环境预报中心(NCEP)和美国国家大气研究中心(NCAR)等多个部门联合研发.WRF 模式模拟出的气象场可为 STILT 模式提供所需的气象数据.本研究具体的 WRF 参数化方案设置和模拟的区域设置可参考文献[31].

STILT 模式是一种基于拉格朗日原理的粒子随机游走理论的大气传输模式[54].通过在观测站点位置释放大量空气粒子,计算这些粒子在研究区域内的数量及其停留时间,从而模拟出不同网格点对观测站点 CO_2 浓度的影响权重,称为足迹权重(foot):

$$foot(x_r,t_r\mid x_i,y_j,t_m)=\frac{m_{air}}{h\rho(x_i,y_j,t_m)}\frac{1}{N_{tot}}\sum_{p=1}^{Ntot}\Delta t_{p,m,i,j,k} \tag{3}$$

式中: foot 为模拟过程中各网格点(x_i, y_j)在时间(t_m)累计下的 CO_2 通量对观测站点 CO_2 浓度贡献的足迹权重;m_{air} 为空气的摩尔质量;h 为受下垫面影响的大气层高度,通常采用模型默认设定值为边界层高度的一半[55];ρ 为下垫面影响层高度以下的空气密度;N_{tot} 为模拟过程中释放的总粒子数,本研究设定 $N_{tot}=500$[56];$\Delta t_{p,m,i,j,k}$ 为每个粒子(p)随时间步长(m)在某一空间格点内(i,j,k)停留的总时间.

1.3.3　贝叶斯反演　贝叶斯反演的原理是通过分离特定信息中的源汇项来估算碳收支[57].这种方法是以大气 CO_2 浓度观测值作为约束,使通过先验排放清单计算的模拟值与观测值更加接近.具体做法是:先挑选出人为 CO_2 排放中排放靠前的 4 个类别,其余的人为源统称为第 5 类别,自然源归为第 6 类别.然后将这 6 类排放源每月引起的 CO_2 增量通过贝叶斯反演法进行计算,最后可以分别得到被低估或者高估排放源的比例因子,据此可以判断排放清单产品中排放源的不确定情况,同时可以依据得出的比例因子在月尺度上对先验清单进行优化,从而得到优化的后验排放,最终使得模型模拟值更加接近于观测值.

贝叶斯反演的目的是使先验排放与后验排放二者的差异最小化,用 $J(\Gamma)$表示[58]:

$$2J(\Gamma)=(y-\boldsymbol{K}\Gamma)^T\boldsymbol{S}_e^{-1}(y-\boldsymbol{K}\Gamma)+(\Gamma-\Gamma a)^T S_a^{-1}(\Gamma-\Gamma a) \tag{4}$$

式中:$(y-\boldsymbol{K}\Gamma)^T\boldsymbol{S}_e^{-1}(y-\boldsymbol{K}\Gamma)$表示大气 CO_2 浓度模拟值与观测值之间的偏差;$(\Gamma-\Gamma_a)^T\boldsymbol{S}_a^{-1}(\Gamma-\Gamma_a)$表示先验与后验通量之间的偏差;$y$ 表示大气 CO_2 浓度增加值即大气 CO_2 浓度观测值与背景值之差;$\boldsymbol{K}$ 是雅可比矩阵,表示观测值对于主要贡献源的敏感性; Γ 为表征 CO_2 通量分布的后验比例因子;Γ_a 为先验估计的调整系数,通常为 1;$\boldsymbol{S}_e$ 和 $\boldsymbol{S}_a$ 分别表示观测误差和先验排放误差的协方差矩阵,因此函数 $J(\Gamma)$的最小化方法是将$\Delta_\Gamma J(\Gamma)=0$,进而解得:

$$\Gamma_{post}=(\boldsymbol{K}^T\boldsymbol{S}_e^{-1}\boldsymbol{K}+\boldsymbol{S}_a^{-1})^{-1}(\boldsymbol{K}^T\boldsymbol{S}_e^{-1}y+\boldsymbol{S}_a^{-1}\Gamma_a) \tag{5}$$

在进行比例因子贝叶斯反演的过程中造成 $\boldsymbol{S}_e$ 观测误差和模型误差的原因主要有以下 4 点:WRF 模拟的边界层高度(10%)[59-60]、气象场和 STILT 模型模拟的粒子后向轨迹(13%)[53-54,61]、大气CO_2浓度观测值[41]和背景值[62].造成 $\boldsymbol{S}_a$ 的先验误差被称为模拟浓度过程中的系统偏差,前人将其设定为 100%[61-64].通过贝叶斯反演后得到的后验比例因子 Γ_{post} 可以将上述误差最小化.所以可以把 Γ_{post} 作为最优的比例因子对先验 CO_2 排放和大气 CO_2 浓度模拟值进行最优化.

1.3.4　3 种先验排放算法　EDGAR 的人为排放源分配不均,差异较大,高排放和低排放的网格较多;GCG 中有很多排放较小的源未考虑进来;ODIAC 清单的空间分辨率虽然较高(1km×1km),可以更精准地定位高排放热点位置,但由于很多地区如长三角西部的大部分地区缺乏夜间灯光的卫星观测数据,排放通量被设置为零.因此本研究采用的算法安排如下:第一种模拟方法采用 EDGAR v6.0 清单作为先验人为源排放数据;第二种模拟方法是将 GCG v1.0 提供的 6 种人为排放源与 EDGAR v6.0 中提供但 GCG 未考虑的 11 种人为排放源的 CO_2 排放信息

相结合作为先验人为 CO_2 排放数据,将其称为改进清单;第三种模拟方法是采用 ODIAC 清单的人为排放信息作为先验排放数据,但是只提供了总人为 CO_2 排放量,没有发布各个排放源的排放数据,只能利用 ODIAC 清单进行大气 CO_2 浓度模拟,不能进行比例因子贝叶斯反演,也就无法生成基于 ODIAC 清单优化的后验排放,所以本研究只展示了 ODIAC 清单的先验 CO_2 排放量.

2 结果与讨论

2.1 足迹权重与风向分析

2018 年 12 月~2019 年 2 月各月及整个冬季的平均足迹权重如图 1 所示,观测站点的 CO_2 浓度受周围区域的显著影响,主要集中在安徽省中东部和江苏省中西部.距离观测点越近,足迹权重越大,对观测点 CO_2 浓度的影响也就越显著.本研究将足迹权重阈值大于 $10^{-4}\times10^{-6}$[μmol/(m^2·s)]$^{-1}$ 的区域定义为强贡献区,以确定观测站点 CO_2 浓度受排放影响较大的区域.这些区域的排放对观测点 CO_2 浓度增量的贡献约为 75%[54].图中强贡献区几乎覆盖了长三角的大部分地区,表明基于 WRF-STILT 模式模拟的 CO_2 浓度能够较好地反映长三角的 CO_2 排放情况.

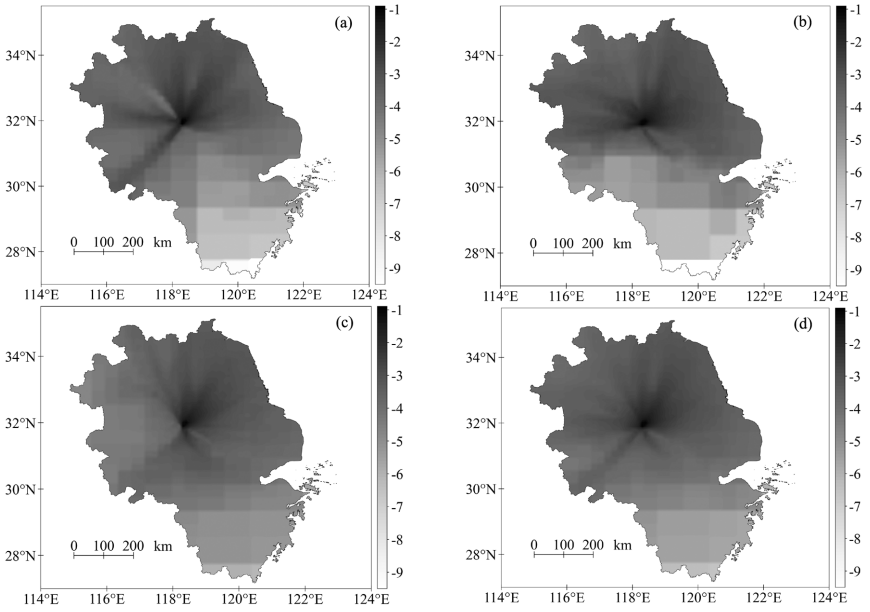


图 1 观测时段内各月和整个冬季的平均足迹权重

Fig.1 Average footprint in each month and the whole winter during the observation period

(a)2018 年 12 月,(b)2019 年 1 月,(c)2019 年 2 月,(d)2018 年 12 月~2019 年 2 月;色柱表示足迹权重,单位为 10^{-6}[μmol/(m^2·s)]$^{-1}$ (用对数 lg 表示)

审图号:GS(2024)0650 号

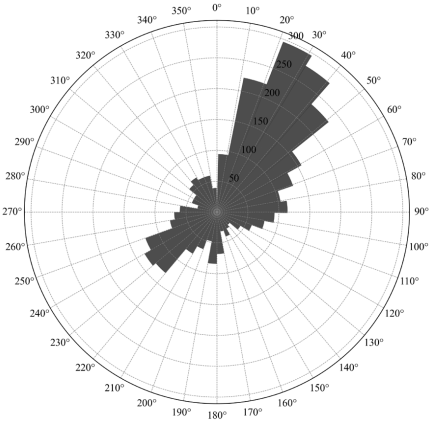


图 2 观测时段内的平均风向玫瑰图

Fig.2 Rose chart of the average wind direction during the observation period

足迹权重受到风速、风向以及湍流运动的影响,因此不同月份的足迹权重分布存在差异,强贡献区的范围和形状也有所不同.整体来看,各月的足迹权重分布得较为分散,而整个冬季的足迹权重分布比其他月份更均匀、更集中.冬季,长三角地区主要盛行东北风(图 1).风向对 WRF-STILT 模式模拟的结果具有重要影响,因此在冬季足迹权重受东北风影响最大,也就出现了观测站点东北方向的强贡献区面积较大的情况,相应地对 CO_2 浓度变化的贡献也更为显著.因此,观测站点的 CO_2 浓度模拟值主要来源于东北方向的人为 CO_2 排放源,进而重点反映了观测点东北方向的 CO_2 排放情况.

2.2　基于比例因子优化 CO_2 排放量及源解析

2.2.1　比例因子解析　根据两种排放清单在 2018 年冬季的模拟结果,通过贝叶斯反演方法获得的主要 CO_2 排放源在月尺度上的比例因子如表 1 所示.首先,利用这一比例因子评估并校正先验清单中不同排放源的通量,然后借助得到的各排放源比例因子来调整其对大气 CO_2 浓度的贡献值,从而提高或降低整体的大气 CO_2 浓度模拟值.当比例因子大于 1 时,表示先验清单中该排放源的排放通量被低估,此时需提高其排放通量;而当比例因子小于 1 时,则表明该排放源的通量被高估,相应地应降低其排放通量.在研究期间,EDGAR 清单和改进清单中人为 CO_2 排放源的通量普遍被高估,尤其是 EDGAR 清单中的制造业燃烧,排放通量被高估的情况尤为明显.对于 EDGAR 清单,除制造业燃烧外,其他人为 CO_2 排放源的比例因子均在 0.90~0.98 之间波动.由此可见,异常偏高的制造业燃烧排放通量是导致基于 EDGAR 清单模拟的大气 CO_2 浓度偏高的主要原因.相较之下,改进清单中不同人为排放源的比例因子波动范围为 0.89~1,虽然个别排放源的通量稍显偏高,但没有出现远低于 1 的比例因子,表明改进清单对各排放源的通量分配较为合理.自然源的比例因子变化范围为 0.99~1,原因在于冬季为非生长季节,自然源的 CO_2 通量较少,与人为排放相比几乎可以忽略不计,对模型模拟的 CO_2 浓度影响也有限[64,50].

表 1　月尺度上基于两种排放清单反演的主要 CO_2 排放源的比例因子

Table 1　Scale factors of major CO_2 emission sources based on the inversion of two emission inventories at the monthly scale

月份	基于 EDGAR 清单						基于改进清单					
	制造业燃烧	电力行业	炼油及改造行业	钢铁生产	其他人为源	自然源	电力	工业	住宅	交通	其他人为源	自然源
2018-12	0.60	0.97	0.90	0.92	0.98	1.00	0.98	0.95	1.00	1.00	0.96	1.00
2019-01	0.81	0.95	0.92	0.95	0.96	0.99	0.94	0.89	0.99	0.99	0.96	1.00
2019-02	0.84	0.97	0.92	0.95	0.97	0.99	0.96	0.92	1.00	1.00	0.96	1.00

2.2.2　先验和后验 CO_2 排放量对比　将贝叶斯反演所得的 5 大人为排放源类别对应的各月比例因子分别对 EDGAR 与改进清单中各排放源的排放通量进行优化调整,其中排放通量指的是根据模型与排放清单相结合计算的人为排放通量和 Carbon Tracker 中的自然通量相加的结果.如表 2 所示,基于 EDGAR 清单、改进清单和 ODIAC 清单估算的长三角先验 CO_2 排放通量分别为 0.219, 0.210,0.202mg/(m^2·s).在该冬季,基于 EDGAR 清单和改进清单估算的后验 CO_2 排放通量分别为 0.199±0.005 和 0.200±0.007mg/(m^2·s),相较于这两个清单的先验 CO_2 排放通量,后验排放通量分别下降了 0.02 和 0.01mg/(m^2·s),基于 EDGAR 清单估算的后验排放通量下降的幅度比较大,比例因子贝叶斯反演法对该清单先验排放的优化幅度较大.而相较于 2017~2018 年冬季的后验排放结果,2018~2019 年冬季的后验排放通量均有所升高[31]:基于 EDGAR 清单的后验排放通量上升了 0.003mg/(m^2·s);基于改进清单的后验排放通量上升了 0.004mg/(m^2·s).

表 2　基于 3 种排放清单估算长三角 CO_2 排放通量

Table 2　Estimation of CO_2 emission fluxes in the Yangtze River Delta based on three emission inventories

清单	时间	长三角 CO_2 排放通量
EDGAR 先验模拟	2018-12~2019-02	0.219
EDGAR 后验模拟	2018-12~2019-02	0.199±0.008
改进清单先验模拟	2018-12~2019-02	0.210
改进清单后验模拟	2018-12~2019-02	0.200±0.005
ODIAC 先验模拟	2018-12~2019-02	0.202

注:通量单位为mg/(m^2·s).

2.2.3　先验和后验主要 CO_2 排放源估算分析　在 2018 年冬季,EDGAR 和改进清单中主要排放源的排放通量与 Carbon Tracker 的自然 CO_2 排放通量在各月的先验和后验通量如表 3 所示.EDGAR 清单中排放通量下降幅度最大的人为源是制造业燃烧,2018 年 12 月~2019 年 2 月的后验排放通量分别下降了 0.022、0.011 和 0.009mg/(m^2·s),平均下降幅度为 0.014mg/(m^2·s).电力行业的后验排放通量下降幅度次之,各月分别下降了 0.004、0.004 和 0.003mg/(m^2·s),平均降幅为 0.003mg/(m^2·s).炼油厂、转型行业、钢铁生产和非金属生产等其他人为排放

源的后验结果与先验结果基本一致.在2018年12月至2019年2月期间,后验排放总量分别下降了0.028,0.017,0.015mg/(m^2·s),平均为0.020mg/(m^2·s).这表明,EDGAR清单显示长三角后验排放总量的变化主要源自制造业燃烧和电力行业,其中制造业燃烧的贡献更为显著;同时也反映出长三角地区制造业燃烧的先验排放存在最高的不确定性,需进行比例因子校正以优化.

改进清单中,工业排放通量最大,并且在比例因子优化后,其排放通量的下降幅度也最大.在2018年12月~2019年2月期间,这三个月的工业排放通量分别下降了0.004、0.009、0.006mg/(m^2·s),平均下降0.008mg/(m^2·s).其次是电力排放,其CO_2排放量略低于工业排放,比例因子优化后的排放通量下降幅度较小,三个月平均下降仅为0.002mg/(m^2·s).住宅、交通及其他人为源的后验排放通量变化很小,后验与先验的排放通量基本一致.基于改进清单的后验总排放量在这三个月分别下降0.006,0.014, 0.01mg/(m^2·s),平均下降0.011mg/(m^2·s).因此,对于改进清单来说,后验人为排放通量与CO_2排放总量的变化主要来源于电力与工业排放,这两个人为排放源是基于改进清单计算长三角CO_2排放总量时的不确定性最大来源.

2.3 大气CO_2浓度模拟值与观测值对比

2.3.1 CO_2浓度模拟值与观测值时间序列变化

基于3种先验排放清单(EDGAR清单、GCG和EDGAR相结合的改进清单以及ODIAC清单)的人为CO_2排放信息与Carbon Tracker的自然CO_2排放信息作为先验排放数据,与小时尺度的足迹权重相结合,如图3与图4所示,就基于EDGAR排放清单的模拟结果而言,逐时的模拟值和观测值的变化趋势在大多数情况下较为一致,但在一些时段存在模拟值较观测值明显偏高和偏低的情况,模拟值偏高幅度高达407.1μmol/mol,模拟值偏低幅度高达79.3 μmol/mol,观测值与模拟值的相关系数R为0.25(P < 0.01),一致性指数为0.40,均方根误差为42.17μmol/mol(图4(a)).基于改进清单的模拟结果优于基于EDGAR排放清单的模拟结果,模拟值与观测值的变化趋势有更高的一致性,相关系数(R = 0.36, P < 0.01)、一致性指数(0.55)、均方根误差(25.09μmol/mol)均更优(图4(b)).此外,基于改进清单的模拟结果还略优于基于ODIAC的模拟结果(图4(c),R = 0.30, P < 0.01,IoA = 0.52,RMSE = 25.37 μmol/mol).基于EDGAR清单的先验模拟值也在部分时段存在模拟偏高的情况,而经比例因子优化后得到了改进,降低了不符合实际情况的模拟高值,与观测值的一致性有所改进,相关系数R略有上升,IoA由0.40增加到0.47(图4(a)和4(d)),RMSE降低了9.30 μmol/mol.

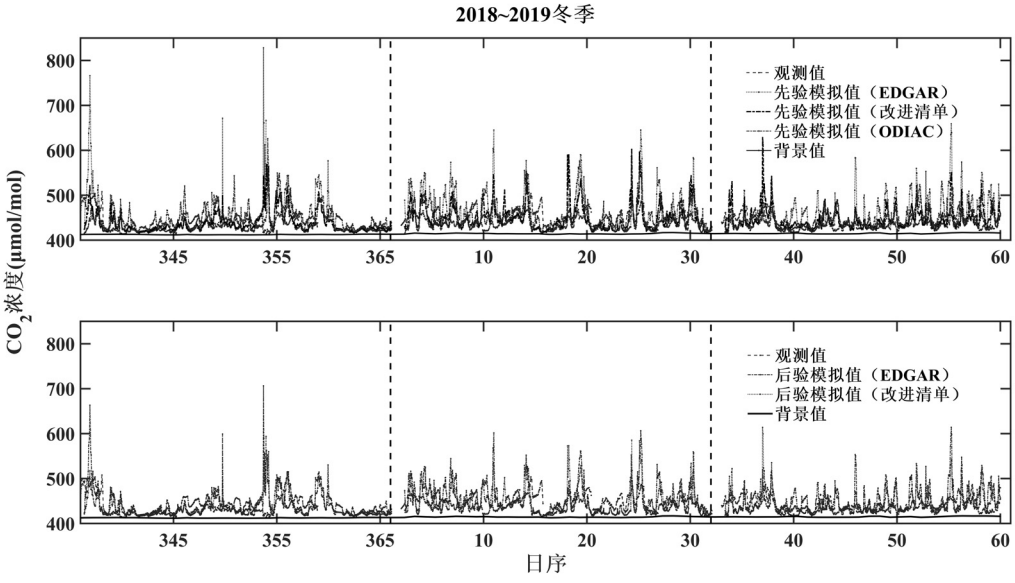


图3 观测期间CO_2浓度背景值、观测值、先验模拟值与后验模拟值对比

Fig.3 Comparison of the background, observed and simulated atmospheric CO_2 concentration during the observation period

日序:指按照日期排序的数据序列,如2018年12月1日的日序为335,12月31日的日序为365,下同

比例因子降低了基于 EDGAR 和改进清单的先验模拟平均值,使得基于 EDGAR 清单模拟的大气 CO_2 浓度平均值由 453.8μmol/mol 降低至 447.0μmol/mol,基于改进清单模拟的大气 CO_2 浓度平均值由 444.5μmol/mol 降低至 442.9μmol/mol,与观测平均值更为接近(442.0μmol/mol),基于改进清单的后验模拟平均值是最接近观测平均值的结果.由此可见,基于改进清单的后验模拟值优于单独使用 EDGAR 清单的后验模拟值.

2.3.2　CO_2 浓度模拟值与观测值的昼夜变化　基于两种清单的后验模拟值与先验模拟值相比,整体的昼夜变化趋势没有改变,但浓度均有一定程度的下降,如图 5 所示.基于 EDGAR 清单的后验模拟值下降得更明显,幅度更大;而基于改进清单的后验模拟值下降的幅度很小.基于 EDGAR 的后验模拟值较先验模拟值,在 0:00CO_2 浓度下降得最多,下降幅度为 10.3μmol/mol,每小时平均下降了 7.0μmol/mol.比例因子的优化使得在夜间过于偏高的模拟值得到了改进,更加符合实际的大气 CO_2 浓度情况.基于 EDGAR 的模拟值与观测值的最大差值由先验的 27.3μmol/mol 改进为后验的 17.0μmol/mol,最小差值由先验的 1.8μmol/mol 改进为后验的 0.4μmol/mol,提高了模拟值与观测值的一致性.基于改进清单的后验模拟值比其先验模拟值下降的幅度小,二者差值最大仅 2.2μmol/mol.与基于 EDGAR 的后验模拟值相比,基于改进清单的后验模拟值整体偏低,在夜间二者的差值较大,差值最高可达 9.8μmol/mol;在白天二者的差值较小,12:00~16:00 时段差值仅为 0.5~1.7μmol/mol.相比较而言,基于改进清单的后验模拟值更符合观测值的动态变化趋势和实际 CO_2 浓度变化情况,但与观测值在个别时段的差值仍较大,还需继续改进.

表 3　EDGAR 清单和改进清单中主要排放源与 Carbon Tracker 自然源的先验与后验 CO_2 排放通量[mg/(m^2·s)]对比

Table 3　The priori and posteriori CO_2 emission fluxes from major emitters and Carbon Tracker natural sources in the EDGAR and improved inventories[mg/(m^2·s)]

清单	部门	2018-12		2019-01		2019-02	
		先验	后验	先验	后验	先验	后验
EDGAR 清单	制造业燃烧	0.056	0.034	0.055	0.046	0.059	0.050
	电力行业	0.094	0.090	0.078	0.074	0.081	0.078
	炼油厂和转型行业	0.011	0.010	0.011	0.010	0.012	0.011
	钢铁生产	0.005	0.004	0.005	0.004	0.005	0.005
	非金属生产	0.013	0.012	0.013	0.012	0.014	0.014
	住宅	0.018	0.017	0.019	0.018	0.016	0.015
	道路运输	0.011	0.010	0.010	0.010	0.011	0.011
	其他人为源	0.006	0.006	0.006	0.006	0.007	0.007
	人为排放总量	0.213	0.185	0.196	0.179	0.205	0.190
	自然通量	0.005	0.005	0.021	0.021	0.017	0.017
	排放总量	0.218	0.190	0.217	0.200	0.222	0.207
改进清单	电力	0.064	0.063	0.064	0.060	0.064	0.062
	工业	0.078	0.074	0.078	0.069	0.078	0.072
	住宅	0.012	0.012	0.012	0.012	0.012	0.012
	交通	0.011	0.011	0.011	0.011	0.011	0.011
	其他人为源	0.029	0.028	0.029	0.028	0.031	0.030
	人为排放总量	0.195	0.189	0.195	0.181	0.197	0.187
	自然通量	0.005	0.005	0.021	0.021	0.017	0.017
	排放总量	0.200	0.194	0.216	0.202	0.214	0.204

在大气 CO_2 模拟中,模拟值与观测值相比常出现夜间偏高、白天偏低的现象,原因之一在于现有排放清单未能充分考虑人为排放源的日变化特征,例如早晚高峰等,在未来的研究应提高排放清单的时间和空间分辨率,将数据从月尺度提升至日或小时尺度,同时将空间分辨率从 0.1°×0.1°提升至 1km×1km,以便更精细地模拟和更准确地反映实际大气排放情况;原因之二在于模式的模拟误差,在未来的大气 CO_2 浓度模拟中,首先需要准确模拟夜间小时尺度的边界层高度,其次,当前的排放清单仅在水平方向上估算每个网格点的

排放量,在垂直方向上未考虑不同排放源的高度信息, 后续的排放清单产品应在这方面进行改进.

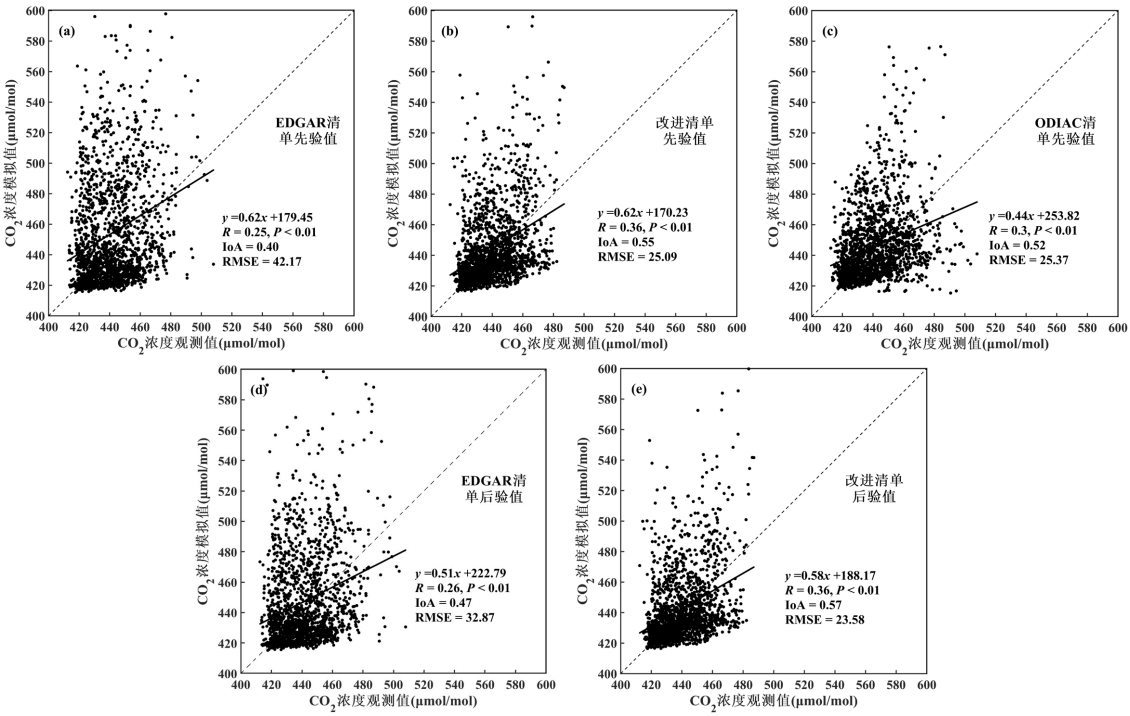


图 4 观测期间 CO_2 浓度观测值、先验模拟值与后验模拟值对比

Fig.4 Comparison of the observed, prior simulated and posterior simulated CO_2 concentration during the observation period

R 为相关系数,RMSE 为均方根误差,IoA 为一致性指数

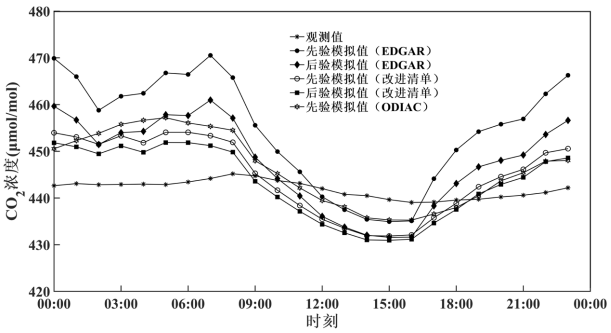


图 5 观测期间 CO_2 浓度观测值、先验模拟值与后验模拟值的平均日变化

Fig.5 Average diurnal composition of the observtion, prior and posterior simulation of the atmospheric CO_2 concentration during the observation period

2.4 边界层高度对反演的影响

由于缺乏直接的边界层高度观测数据,本研究利用 ERA5 数据集对观测站点的边界层高度进行分析,以验证 WRF 模式的模拟效果.如图 6 所示,二者的变化趋势一致,都是先升高,在 14:00 左右最大,然后逐渐降低,这与黄鑫[62]的日变化研究是一致的.图中发现二者在夜间(00:00~7:00)的边界层高度相差很小,但在白天的 8:00~16:00,WRF 模拟结果较 ERA5 数据集低,而在 15:00~23:00,WRF 模拟结果较 ERA5 数据集高.二者相差最大值达到 197m,出现在 18:00.此时,WRF 模拟的边界层高度仍有 421m,但 ERA5 同化的边界层高度仅为 225m.以往的研究曾指出 WRF 模拟的大气边界层高度存在偏差会引起温室气体排放反演的偏差[41,65].

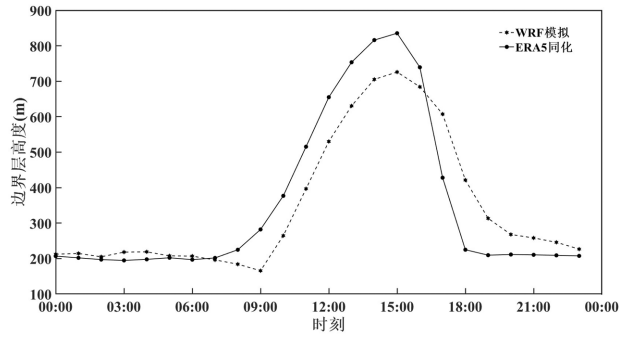


图 6 WRF 模拟与 ERA5 同化的边界层高度平均日变化对比

Fig.6 Comparison of the mean diurnal composition of the boundary layer height simulated by WRF and assimilated by ERA5

如图 7 所示,边界层高度经常低于 200m,甚至有时仅为几十米或十几米,有的排放温室气体的烟囱高度已远高于边界层高度,当大气边界层高度超过观测仪器的高度但仍低于烟囱高度时,烟囱排放物就会位于大气边界层以上,无法被观测仪器捕捉到.然而,目前的先验排放清单均默认所有排放源都位于地表[66-67],即所有排放均发生在大气边界层内部,导致实际上位于大气边界层之上的、未被观测仪器探测到的排放源在模拟时也被考虑进来,造成模拟值偏差[30,68-69].因此在未来的模拟研究中将边界层动态变化与排放高度相耦合是必要的[67].

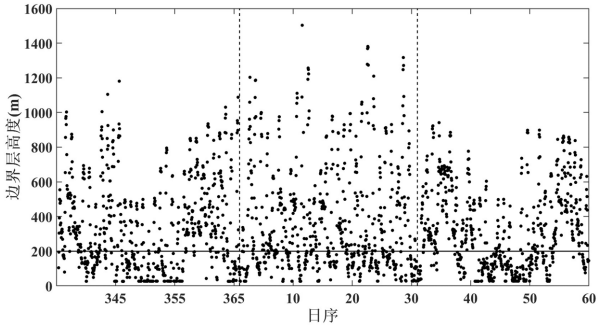


图 7　冬季 WRF 模拟的边界层高度的时间序列

Fig.7　Time series of the boundary layer height simulated by WRF in winter

日序:指按照日期排序的数据序列,如 2018 年 12 月 1 日的日序为 335,12 月 31 日的日序为 365

3　结论

3.1　基于EDGAR清单和改进清单估算的后验CO_2排放通量分别为(0.199±0.005),(0.200±0.007)mg/(m^2·s),相较于这两个清单的先验CO_2排放通量,后验排放通量分别下降了 0.02,0.01mg/(m^2·s),基于EDGAR 清单估算的后验排放通量下降的幅度比较大,比例因子贝叶斯反演法对该清单先验排放的优化幅度较大.

3.2　对于改进清单来说,后验人为排放通量与 CO_2 排放总量的变化主要来源于电力与工业排放,这两个人为排放源是基于改进清单计算长三角CO_2排放总量时的不确定性最大来源.

3.3　基于改进清单模拟的大气 CO_2 浓度平均值由 444.5μmol/mol 降低至 442.9μmol/mol,与观测平均值 442.0μmol/mol 更为接近,基于改进清单的后验模拟平均值是最接近观测平均值的结果,更符合观测值的动态昼夜变化趋势和实际 CO_2 浓度变化情况,但与观测值在个别时段的差值仍较大.

3.4　先验排放清单默认所有排放均发生在大气边界层内部,导致位于大气边界层之上的、未被观测仪器探测到的排放源在模拟时也被考虑进来,造成模拟值偏差.

参考文献:

[1] Ciais P, Paris J D, Marland G, et al. The European carbon balance. Part 1: Fossil fuel emissions [J]. Global Change Biology, 2009,16:1395–1408.

[2] Gately C K, Hutyra L R, Wing I S. Cities, traffic, and CO_2: A multidecadal assessment of trends, drivers, and scaling relationships [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2015,112:4999–5004.

[3] Gately C K, Hutyra L R. Large uncertainties in urban-scale carbon emissions [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2017,122(20):11.

[4] 胡　诚,张俊清,刘慧丽,等.城市尺度温室气体排放量的反演研究进展及未来发展趋势 [J]. 中国环境科学, 2024,44(12):7036-7045.
Hu C, Zhang J Q, Liu H L, et al. Review of the greenhouse gas emission inversion approaches at city scale and future development trends [J]. China Environmental Science, 2024,44(12):7036–7045.

[5] Desai A R, Noormets A, Bolstad P V, et al. Influence of vegetation and seasonal forcing on carbon dioxide fluxes across the Upper Midwest, USA: Implications for regional scaling [J]. Agricultural & Forest Meteorology, 2008,148(2):288–308.

[6] Tang X, Wang Z, Liu D, et al. Estimating the net ecosystem exchange for the major forests in the northern United States by integrating MODIS and AmeriFlux data [J]. Agricultural & Forest Meteorology, 2012,156(1):75–84.

[7] Xiao J, Zhuang Q, Baldocchi D D, et al. Estimation of net ecosystem carbon exchange for the conterminous United States by combining MODIS and AmeriFlux data [J]. Agricultural and Forest Meteorology, 2008,148(11):1827–1847.

[8] 张　娜,于贵瑞,赵士洞,等.基于遥感和地面数据的景观尺度生态系统生产力的模拟 [J]. 应用生态学报, 2003,14(5):643–652.
Zhang N, Yu G R, Zhao S D, et al. Ecosystem productivity process model for landscape based on remote sensing and surface data [J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 2003,14(5):643–652.

[9] Chen B, Chen J M, Mo G, et al. Comparison of regional carbon flux estimates from CO_2 concentration measurements and remote sensing based footprint integration [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2008, 22(2):148–161.

[10] Lian J, Lauvaux T, Utard H, et al. Can we use atmospheric CO_2 measurements to verify emission trends reported by cities? Lessons from a 6-year atmospheric inversion over Paris [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2023,23:8823–8835.

[11] Vardag S N and Maiwald R. Optimising urban measurement networks for CO_2 flux estimation: a high-resolution observing system simulation experiment using GRAMM/GRAL [J]. Geoscientific Model Development, 2024,17:1885–1902.

[12] Zhang X, Lee X, Griffis T J, et al. Estimating regional greenhouse gas

fluxes: an uncertainty analysis of planetary boundary layer techniques and bottom-up inventories [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014,14(19):10705–10719.

[13] IPCC. 2006IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories, Prepared by the National Greenhouse Gas Inventories Programme; Eggleston H S, Buendia L, Miwa K, et al., Eds.; IGES: Kanagawa, Japan, 2006.

[14] Hu C, Griffis T, Liu S, et al. Anthropogenic methane emission and its partitioning for the Yangtze River Delta region of China [J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2019,124(5):1148–1170.

[15] 乐 群,张国君,王 铮.中国各省甲烷排放量初步估算及空间分布 [J]. 地理研究, 2012,31(9):1559–1570.
Yue Q, Zhang G G, Wang Z. Preliminary estimation of methane emission and its distribution in China [J]. Geographical Research, 2012,31(9):1559–1570.

[16] Gao Y, Wang S, Chen L, et al. Achieving accurate regional carbon-sink accounting and its significance for “missing” carbon sinks [J]. The Innovation, 2024,5(1):100552.

[17] Nisbet E, Weiss R. Top-down versus bottom-up [J]. Science, 2010,328(5983):1241–1243.

[18] Weiss R, Prinn R. Quantifying greenhouse-gas emissions from atmospheric measurements: a critical reality check for climate legislation [J]. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 2011,369(1943): 1925–1942.

[19] Wang Y, Tian X, Duan M, et al. Optimal design of surface CO_2 observation network to constrain China’s land carbon sink [J]. Science Bulletin, 2023,68(15):1678–1686.

[20] Lin J C, Gerbig C, Wofsy S C, et al. A near-field tool for simulating the upstream influence of atmospheric observations: The Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport (STILT) model [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2003,108(d16):4493.

[21] Hu C, Xu J, Liu C, et al. Anthropogenic and natural controls on atmospheric $^{\delta}13C-CO_2$ variations in the Yangtze River delta: insights from a carbon isotope modeling framework [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2021,21(13):10015–10037.

[22] Boon A, Broquet G, Clifford D J, et al. Analysis of the potential of near-ground measurements of CO_2 and CH_4in London, UK, for the monitoring of city-scale emissions using an atmospheric transport model [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016,16(11):6735–6756.

[23] Cheng Z Z, Thomas P, Sally N, et al. Decadal decrease in Los Angeles methane emissions is much smaller than bottom-up estimates [J]. Nature Communications, 2023,14(1):5353.

[24] Hedelius K J, Liu J, Oda T, et al. Southern California megacity CO_2, CH_4, and CO flux estimates using ground-and space-based remote sensing and a Lagrangian model [J]. Atmospheric and Chemistry Physics, 2018,18(22):16271–16291.

[25] Staufer J, Broquet G, Breon F M, et al. The first 1-year-long estimate of the Paris region fossil fuel CO_2 emissions based on atmospheric inversion [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016,16(22): 14703–14726.

[26] Turner A J, Kim J, Fitzmaurice H, et al. Observed impacts of COVID-19 on urban CO_2 emissions [J]. Geophysical Research Letters, 2020,47(22):e2020GL090037.

[27] Dayalu A, Munger J W, Wang Y X, et al. Evaluating China's anthropogenic CO_2 emissions inventories: a northern China case study using continuous surface observations from 2005 to 2009 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020,20(6):3569–3588.

[28] Hu C, Xiao W, Timothy J. Griffis, et al. Estimation of Anthropogenic CH_4 and CO_2 Emissions in Taiyuan-Jinzhong Region: One of the World's Largest Emission Hotspots [J]. Atmospheres, 2023,128(8): e2022JD037915.

[29] Charkovska N, Halushchak M, Bun R, et al. A high-definition spatially explicit modelling approach for national greenhouse gas emissions from industrial processes: reducing the errors and uncertainties in global emission modeling [J]. Mitigation and Adaptation Strategies for Global Change, 2019,24(6):907–939.

[30] Puliafito S E, Allende D G, Castesana P S, et al. High-resolution atmospheric emission inventory of the argentine energy sector. Comparison with Edgar global emission database [J]. Heliyon, 2017, 3(12):e00489.

[31] 马心怡,黄文晶,胡 凝,等.基于不同排放清单的长三角人为 CO_2 排放模拟 [J]. 环境科学, 2023,44(4):2009-2021.
Ma X Y, Hang W J, Hu N, et al. Simulation of Anthropogenic CO_2 Emissions in the Yangtze River Delta Based on Different Emission Inventories [J]. Environmental Science, 2023,44(4):2009-2021.

[32] Cai B, Lou Z, Wang J, et al. CH_4 mitigation potentials from China landfills and related environmental co-benefits [J]. Science Advances, 2018,4(7):eaar8400.

[33] Kirschke S, Bousquet P, Ciais P, et al. Three decades of global methane sources and sinks [J]. Nature Geoscience, 2013,6(10):813–823.

[34] Le Q C, Jackson R B, Jones M W, et al. Temporary reduction in daily global CO_2 emissions during the COVID-19forced confinement [J]. Nature Climate Change, 2020,10(7):647–653.

[35] Miller S M, Michalak A M, Detmers R G, et al. China's coal mine methane regulations have not curbed growing emissions [J]. Nature Communications, 2019,10(1):303.

[36] Peng S S, Piao S, Bousquet P, et al. Inventory of anthropogenic methane emissions in China's mainland from 1980 to 2010 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016,16(22):14545–14562.

[37] Saunois M, Jackson B R, Bousquet P, et al. The growing role of methane in anthropogenic climate change [J]. Environmental Research Letters, 2016,11(12):120207.

[38] 张 强,胡隐樵.大气边界层物理学的研究进展和面临的科学问题 [J]. 地球科学进展, 2001,16(4):526–532.
Zhang Q, Hu Y Q. Research progress and scientific problems in atmospheric boundary layer physics [J]. Advance in Earth Sciences, 2001,16(4):526–532.

[39] Huang W, Xiao W, Zhang M, et al. Anthropogenic CH_4 emissions in the Yangtze River Delta based on a “Top-Down” method [J]. Atmosphere, 2019,10(4):185.

[40] Hu C, Griffis T J, Liu S D, et al. Anthropogenic methane emission and its partitioning for the Yangtze River Delta region of China [J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2019,124(5):1148–1170.

[41] Thoning K W, Tans P P, Komhyr W D. Atmospheric carbon dioxide at Mauna Loa observatory:2. Analysis of the NOAA GMCC data, 1974–1985 [J]. Journal of Geophysical Research, 1989,94(D6):8549–8565.

[42] Janssens-Maenhout G, Crippa M, Guizzardi D, et al. EDGAR v4.3.2global atlas of the three major greenhouse gas emissions for the period 1970–2012 [J]. Earth System Science Data, 2019,11(3):959–1002.

[43] Crippa M, Guizzardi D, Solazzo E, et al. GHG emissions of all world countries [R]. 2021, Luxemburg: Publications Office of the European Union.

[44] Dou X Y, Wang Y L, Ciais P, et al. Near-real-time global gridded daily CO_2 emissions [J]. The Innovation, 2022,3(1):100182.

[45] Oda T, Maksyutov S. A very high-resolution(1km×1km)global fossil fuel CO_2 emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011,11(2):543–556.

[46] Oda T, Maksyutov S, Andres R J. The open-source data inventory for anthropogenic CO_2, version 2016 (ODIAC2016): a global monthly fossil fuel CO_2 gridded emissions data product for tracer transport simulations and surface flux inversions [J]. Earth System Science Data, 2018,10(1):87-107.

[47] Peters W, Jacobson A R, Sweeney C, et al. An atmospheric perspective on North American carbon dioxide exchange: Carbon Tracker [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2007,104(48):18925–18930.

[48] Hu C, Xu J P, Liu C, et al. Anthropogenic and natural controls on atmospheric $^{\delta 13}C$-CO_2 variations in the Yangtze River Delta: insights from a carbon isotope modeling framework [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2021,21(13):10015–10037.

[49] Xu J P, Lee X, Xiao W, et al. Interpreting the $^{13}C/^{12}C$ ratio of carbon dioxide in an urban airshed in the Yangtze River Delta, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017,17(5):3385–3399.

[50] Hu C, Griffis T J, Lee X, et al. Top-down constraints on anthropogenic CO_2 emissions within an agricultural-urban landscape [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2018,123(9):4674–4694.

[51] Hu C, Liu S D, Wang Y W, et al. Anthropogenic CO_2 emissions from a megacity in the Yangtze River Delta of China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2018,25(23):23157–23169.

[52] Chen Z C, Griffis T J, Millet D B, et al. Partitioning N_2O emissions within the U.S. corn belt using an inverse modeling approach [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2016,30(8):1192–1205.

[53] Chen Z C, Griffis T J, Baker J M, et al. Source partitioning of methane emissions and its seasonality in the U.S. Midwest [J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2018,123(2):646–659.

[54] Kim S Y, Millet D B, Hu L, et al. Constraints on carbon monoxide emissions based on tall tower measurements in the U.S. upper Midwest [J]. Environmental Science & Technology, 2013,47(15):8316–8324.

[55] Lin J C, Gerbig C, Wofsy S C, et al. A near-field tool for simulating the upstream influence of atmospheric observations: the stochastic time-inverted Lagrangian transport (STILT) model [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2003,108(D16):4493.

[56] Boschetti F, Thouret V, Maenhout G J, et al. Multi-species inversion and IAGOS airborne data for a better constraint of continental-scale fluxes [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018,18(13):9225–9241.

[57] Jeong S, Zhao C, Andrews A E, et al. Seasonal variation of CH_4 emissions from central California [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2012,117:D11306.

[58] Guo J, Miao Y, Zhang Y, et al. The climatology of planetary boundary layer height in China derived from radiosonde and reanalysis data [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016,16(20):13309–13319.

[59] Huang W, Griffis T J, Hu C, et al. Seasonal variations of CH_4emissions in the Yangtze River Delta Region of China are driven by agricultural activities [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 2021,38(9):1537–1551.

[60] Gerbig C, Lin J C, Wofsy S C, et al. Toward constraining regional-scale fluxes of CO_2 with atmospheric observations over a continent: 1. Observed spatial variability from airborne platforms [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2003,108(D24):4756.

[61] Conway T J, Tans P P, Waterman L S, et al. Evidence for interannual variability of the carbon cycle from the National Oceanic and Atmospheric Administration/Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory global air sampling network [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1994,99(D11):22831–22855.

[62] 黄　鑫.北京和南京地区气溶胶特性对大气边界层高度影响的对比研究 [D]. 南京:南京信息工程大学, 2023.
Huang X. Contrasting the effect of aerosol properties on the planetary boundary layer height in Beijing and Nanjing [D]. Nanjing: The Nanjing University of Information Science and Technology, 2023.

[63] Shen S H, Yang D, Xiao W, et al. Constraining anthropogenic CH_4emissions in Nanjing and the Yangtze River Delta, China, using atmospheric CO_2 and CH_4mixing ratios [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 2014,31(6):1343–1352.

[64] Thompson R L, Stohl A, Zhou L X, et al. Methane emissions in east Asia for 2000~2011 estimated using an atmospheric Bayesian inversion [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2015, 120(9):4352–4369.

[65] Bagley J E, Jeong S, Cui X G, et al. Assessment of an atmospheric transport model for annual inverse estimates of California greenhouse gas emissions [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2017,122(3):1901–1918.

[66] Maier F, Gerbig C, Levin I, et al. Effects of point source emission heights in WRF–STILT: A step towards exploiting nocturnal observations in models [J]. Geoscientific Model Development, 2022, 15(13):5391–5406.

[67] Peng Y Y, Hu C, Ai X Y, et al. Improvements of simulating urban atmospheric CO_2 concentration by coupling with emission height and dynamic boundary layer variations in WRF-STILT model [J]. Atmosphere, 2023,14(2):223–223.

[68] Ma X, Zheng G, Chi X, et al. Mapping fine-scale building heights in urban agglomeration with spaceborne lidar [J]. Remote Sensing of Environment, 2023,285:113392.

[69] 马　倩,王咏薇,苗世光,等.中国大城市具有建筑物分类的土地利用分类数据集构建研究 [J]. 大气科学学报, 2022,45(1):135–147.
Ma Q, Wang Y W, Miao S G, et al. Study on construction of land use classification datasets with building type in large cities of China [J]. Transactions of Atmospheric Sciences, 2022,45(1):135–147.

作者简介：杨　樱(1998-),女,山西太原人,南京信息工程大学硕士研究生,研究方向为城市温室气体观测与反演.发表论文 2 篇.Yyange1@163.com.