doi:10.3969/j.issn.1000-6362.2017.08.001

胡诚,张弥,肖薇,等.通量及其不确定性对农业区高塔 CO2浓度模拟的影响[J].中国农业气象,2017,38(8):469-480

# 通量及其不确定性对农业区高塔 $CO_2$ 浓度模拟的影响<sup>\*</sup>

胡 诚<sup>1,2</sup>,张 弥<sup>1,2\*\*</sup>,肖 薇<sup>1,2</sup>,王咏薇<sup>1,2</sup>,王 伟<sup>1,2</sup>,Tim Griffis<sup>3</sup>,刘寿东<sup>1,2</sup>,李旭辉<sup>1</sup>

(1.南京信息工程大学大气环境中心,南京 210044; 2.南京信息工程大学大气环境与装备技术协同创新中心,南京 210044; 3.明尼苏达大学,美国圣保罗市,55108)

**摘要**:利用 WRF-STILT 模型模拟玉米种植区生长季(6-9 月)小时 CO<sub>2</sub>浓度,并基于美国最大农业种植区 '玉米带'100m 高塔 CO<sub>2</sub>浓度观测数据,对 WRF-STILT 模型的模拟能力及 CO<sub>2</sub>通量的不确定性对模拟结果 的影响进行分析。结果表明:(1)WRF-STILT 能够模拟高塔观测的 CO<sub>2</sub>浓度日变化特征,模拟值与观测值 的均方根误差为 13.70µmol·mol<sup>-1</sup>,模拟结果偏高 7.26µmol·mol<sup>-1</sup>。(2)EDGAR 和 Carbon Tracker 两种典型化 石燃料的 CO<sub>2</sub>通量,其区域平均值相差<6%,但两者对 CO<sub>2</sub>浓度增加值的模拟结果相差约 10%;(3)CO<sub>2</sub> 通量空间分辨率的差异会导致模拟结果产生偏差,使用区域边长为 1°的 EDGAR 化石燃料 CO<sub>2</sub>通量模拟的浓 度贡献值仅为 0.1°的 0.4 倍,且空间分辨率越低,模拟误差越大;(4)白天和夜晚 Carbon Tracker 模拟的植 被生态系统净交换数据是高塔涡度相关方法观测结果的 2.26 和 1.56 倍,下垫面分类的误差以及相应的通量 模拟误差使模拟的 CO<sub>2</sub>浓度贡献出现 12µmol·mol<sup>-1</sup>的差异,这是模拟结果偏高 7.26µmol·mol<sup>-1</sup>的潜在误差来 源。研究认为,WRF-STILT 模型和高空间及时间分辨率的 CO<sub>2</sub>通量能够较好模拟出农业区生长季的 CO<sub>2</sub>强 日变化特征,CO<sub>2</sub>通量的误差是模拟结果误差的主要来源,研究结果表明该方法具有评估和优化通量的巨大 潜力。

关键词: WRF-STILT 模型; 涡度相关; 化石燃料; 通量不确定性

# Effect of Flux and its Uncertainty on Tall Tower CO<sub>2</sub> Concentration Simulation in the Agricultural Domain

# HU Cheng<sup>1,2</sup>, ZHANG Mi<sup>1,2</sup>, XIAO Wei<sup>1,2</sup>, WANG Yong-wei<sup>1,2</sup>, WANG Wei<sup>1,2</sup>, TIM Griffis<sup>3</sup>,LIU Shou-dong<sup>1,2</sup>, LI Xu-hui<sup>1</sup>

(1.Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China;2. Collaborative Innovation Center of Atmospheric Environment and Equipment Technology, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China;3. University of Minnesota-Twin Cities, Saint Paul 55108, U.S.A)

**Abstract:** Based on the CO<sub>2</sub> concentration observations in U.S. corn belt, which was measured at 100m height of a tall tower, hourly CO<sub>2</sub> concentration was simulated for the growing season (June–September, 2008) with the WRF-STILT model. And the effect of flux uncertainty on modeled CO<sub>2</sub> concentration was also analyzed. The results showed as: (1) WRF-STILT model can simulate the observed strong diurnal variation in growing season, with RMSE be 13.70µmol·mol<sup>-1</sup>, and it was overestimated by 7.26µmol·mol<sup>-1</sup>, the shape and area of intense footprint zonesare different for different months (September > August > June > July) .(2) The difference of regional average

<sup>\*</sup>收稿日期: 2016-12-21 \*\*通讯作者。E-mail: zhangm.80@nuist.edu.cn

基金项目:国家自然科学基金项目(41575147;41475141;41505005);江苏省高校优势学科建设工程项目(PAPD); 教育部长江学者和创新团队发展计划项目(PCSIRT);2016年度江苏省高校研究生科技创新项目 (1354051601006);国家公派联合培养博士研究生项目(201508320287)

作者简介:胡诚(1989-),博士生,主要研究方向为基于高塔浓度观测的区域尺度温室气体通量反演。 E-mail: nihaohucheng@163.com

anthropogenic CO<sub>2</sub> flux for EDGAR and Carbon Tracker was within 6%, when both of them were at the same spatial resolution, the simulated CO<sub>2</sub> enhancement difference was close to 10%. (3) Spatial resolution can lead to large bias in the modeled CO<sub>2</sub> enhancement, when using 1° emissions, the simulated CO<sub>2</sub> enhancement was only 0.4 times of the results using 0.1° emissions, and with the decreases of spatial resolution, the modeled bias increases. (4) Daytime and nighttime NEE of Carbon Tracker is 2.26 and 1.56 times that of tall tower NEE observations, and the misrepresentatives of underlying land use categories can lead to about 12µmol·mol<sup>-1</sup> bias in the modeled results, which may be the potential reason of bias high for 7.26µmol·mol<sup>-1</sup>. Our study concludes that when combing WRF-STILT model with high quality CO<sub>2</sub> flux, the strong diurnal variation of CO<sub>2</sub> concentration can be well simulated, and the uncertainty of CO<sub>2</sub> flux is the main reason for modeled CO<sub>2</sub> concentration bias, it also indicates the potential of evaluating and retrieving prior CO<sub>2</sub> flux.

Key words: WRF-STILT model; Eddy covariance; Fossil emissions; Flux uncertainty

对陆地生态系统 CO<sub>2</sub> 通量的准确估算是预测未 来气候变化的基础<sup>[1-5]</sup>。传统的计算和观测方法,如 植被生物量清单调查法、涡度相关方法、陆面过程 模型或 IPCC 算法等由于自身的局限性,对陆地生态 系统在区域尺度(10<sup>2</sup>~10<sup>6</sup>km<sup>2</sup>)碳交换估算上存在 较大不确定性,这主要来自空间异质性大以及不同 方法观测和模拟能力的限制<sup>[1,6-8]</sup>。基于大气传输模型 和先验(初始假设)温室气体通量,并结合高精度 的大气浓度实际观测,反演区域甚至全球尺度的后 验(真实)通量,已经被越来越多地应用于对温室 气体(CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O)通量的估算上<sup>[9-12]</sup>。而大气 传输模型对 CO<sub>2</sub> 浓度的模拟能力则是其反演陆地生 态系统 CO<sub>2</sub> 通量结果准确性的基础。

基于拉格朗日原理的 WRF-STILT (Stochastic Time Inverted Lagrangian Transport model) 大气传输 模型[13],相对于欧拉传输模型,主要有以下两点优 势:(1)在已知观测和模拟站点的情况下,对靠近 站点的区域进行气象驱动场的多重嵌套模拟,使模 拟的浓度贡献源区(足迹权重)更准确:(2)通过 释放大量空气粒子的形式来模拟大气的湍流运动比 参数化方案更接近真实空气随机运动的情况<sup>[14]</sup>。此 外,WRF-STILT 模型更以其计算效率高,数值模拟 稳定等优势,逐渐被用于区域尺度的植被生态系统 净交换(NEE)的反演。不过,由于反演过程均假设 化石燃料燃烧 CO2 通量无误差,而仅调整陆地生态 系统 CO2 通量, 所以模型中所使用的先验化石燃料 燃烧 CO2 通量的不确定性可能会对最终的浓度模拟 和生态系统净交换的反演带来很大误差,这包括不 同化石燃料燃烧 CO2通量的选取,及其与真实通量 大小和空间分布的差异;除此之外生态系统净交换 CO<sub>2</sub> 通量在空间上的分布也会影响最后的通量优化 结果,因此,CO<sub>2</sub> 通量及其不确定性对 WRF-STILT 模型模拟结果的影响是反演生态系统净交换的基 础。农田生态系统作为陆地生态系统的重要组成部 分,占全球陆地面积的 12%<sup>[15]</sup>,且其在所有陆地生 态系统中受人为活动干扰最强,碳存储量短期变化 最大<sup>[16-17]</sup>,但研究农田生态系统 CO<sub>2</sub> 通量及其不确 定性对区域 CO<sub>2</sub>浓度模拟的影响却少有报道<sup>[18-19]</sup>。

本文基于美国玉米带(U.S. Corn Belt)农业区 CO<sub>2</sub>浓度观测和WRF-STILT 模型开展研究,观测站 点高塔位于美国最大的农业种植区,其 100m 高度处 观测的 CO<sub>2</sub>浓度表现出强季节变化和夏季强日变化 特征,生长季高塔浓度受下垫面内 C<sub>4</sub>农作物和牧草 强 CO<sub>2</sub> 吸收的影响,同时其区域内还拥有多种类型 的化石燃料燃烧排放源(石油提炼、道路交通、居 民区、能源工业),其 CO<sub>2</sub>浓度和通量综合观测为 WRF-STILT 模型模拟 CO<sub>2</sub>浓度提供了验证基础。本 研究的主要目的包括(1)评估 WRF-STILT 模型对 农业区观测的 CO<sub>2</sub> 浓度强日变化特征的模拟能力, (2)评估 CO<sub>2</sub> 通量及其不确定性对模型模拟结果的 影响。以期为中国建立高塔 CO<sub>2</sub>浓度观测,以及反 演和评估区域尺度 CO<sub>2</sub>通量提供技术和理论支撑。

# 1 材料与方法

# 1.1 观测站点及资料来源

观测站点位于美国(图 1a 中红色线条区域)玉 米带北部<sup>[11]</sup>,包括9个州,作为世界面积最大、产 量最高的玉米种植区,玉米带贡献了全美80%和全 球40%的玉米产量<sup>[20]</sup>。观测塔位于明尼苏达首府"明 尼阿波利斯-圣保罗市"东南25km,塔高244m (44°41'19"N,93°4'22"W;海拔高度290m,黑色'+' 所在位置),对 CO<sub>2</sub>浓度进行连续观测的进气口位于 离地面 100m 高度处,塔南为玉米种植区(图 1b 中 深黄色区域),塔北是牧草种植区(如图 1b 浅绿色 区域)。每小时对仪器进行标定<sup>[21]</sup>,标定后的 CO<sub>2</sub> 浓度误差小于 0.03µmol·mol<sup>-1[22]</sup>,2007-2016 年数据 由明尼苏达大学提供,鉴于 2008 年 CO<sub>2</sub>浓度观测数 据相对其它年份的生长季缺测最少,且该年同时包 含其它涡度相关等辅助观测,所以本文选取 2008 年 6-9 月小时 CO<sub>2</sub>浓度资料进行模拟和对比研究。

在100m处安装的涡度相关观测系统,包括三维

超声风速仪(型号 CSAT3, Campbell Scientific) 和闭路式浓度测量仪(型号 TGA 100A, Campbell Scientific),对生态系统 CO<sub>2</sub>通量进行直接观测, 通量数据均经过数据校正和质量控制,详见 Griffis 等<sup>[22]</sup>;在 32m 和 56m 处同时进行 CO<sub>2</sub>浓度观测(型 号 TGA 100A, Campbell Scientific),用于计算从 地面至 100m 高度的 CO<sub>2</sub>储存项,本文所使用的高 塔生态系统净交换数据为涡度相关直接观测和储 存项之和<sup>[8,23]</sup>,观测时段为与浓度观测相同的 2008 年 6-9 月。





注:图 a 中蓝色、浅黄色和深黄色区域分别表示 WRF 三层嵌套气象场,红色线条区域代表美国各州边界;图 b 中深黄色区域为玉米作物,浅绿色为牧草,灰色为城市用地,测点高度 100m

Note: The color of blue, light yellow and rich yellow represent 3 domains in WRF meterological setup, and the red line is states boundary for U.S.A in subfigure a; with yellow, light green and gray color indicating corn, pasture, and ruban land use categories in subfigure b

#### 1.2 CO2浓度模拟

# 1.2.1 模拟大气 CO<sub>2</sub>浓度组成

在本研究中,模型中模拟的 CO<sub>2</sub>浓度 (CO<sub>2,m</sub>) 由 CO<sub>2</sub> 初始场浓度 (CO<sub>2,bg</sub>)、植被生态系统净交换 贡献值 ( $\Delta$ CO<sub>2,NEE</sub>) 与燃料燃烧贡献值 ( $\Delta$ CO<sub>2,comb</sub>) 组成<sup>[24-25]</sup>;其中燃料燃烧贡献值又包含生物质燃烧 ( $\Delta$ CO<sub>2,bb</sub>) 和化石燃料燃烧 ( $\Delta$ CO<sub>2,ff</sub>),如简化公式 (1) – (3) 所示,浓度单位为 $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>。

$$CO_{2,m} = CO_{2,bg} + \Delta CO_{2,comb} + \Delta CO_{2,NEE}$$
(1)

$$\Delta \text{CO}_{2,\text{comb}} = \Delta \text{CO}_{2,\text{ff}} + \Delta \text{CO}_{2,\text{bb}}$$
(2)

$$\Delta = \sum_{i=1}^{n} [\text{foot}_{i} \times S(x, t)_{i}]$$
(3)

式(1)-式(3)中, Δ代表CO2浓度模拟过程

中由于不同源汇项 S(x,t),即  $CO_2$ 通量(mol·m<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>), 包括植被生态系统净交换  $\Delta CO_{2,NEE}$ 、化石燃料燃烧  $\Delta CO_{2,ff}$ 和生物质燃烧  $\Delta CO_{2,bb}$ 的影响产生的浓度贡献 值,它由  $CO_2$ 通量及 WRF-STILT 模型模拟的足迹 权重(footprint)计算得出(见 1.2.2)<sup>[13,26]</sup>。式(3) 中,foot<sub>i</sub> 是小时尺度的足迹权重,由于气流从刚入 模拟区域流到观测塔所在位置会不断累积局地源 汇项贡献,而产生最终的浓度贡献值  $\Delta$ ,所以, n 为模型设置的浓度贡献值的累积时间, $S(x, t)_i$ 为 第 i 小时的足迹权重 foot<sub>i</sub> 所对应  $CO_2$ 通量。 $CO_2$ 初始场浓度( $CO_{2,bg}$ )则采用 Pillai<sup>[27]</sup>的方法,平均 n 小时后 500 个粒子所在背景场位置的 Carbon Tracker (http://carbontracker.noaa.gov)全球高分辨率  $CO_2$ 浓 度数据<sup>[9]</sup>。详细流程如图 2 所示。



图 2 CO<sub>2</sub> 通量及其不确定性对 WRF-STILT 模型模拟 CO<sub>2</sub> 浓度影响的流程图 Fig. 2 Overview of the effect of CO<sub>2</sub> flux and its uncertainty on WRF-STILT concentration modeling

#### 1.2.2 WRF-STILT 模型

由 1.2.1 可知, WRF-STILT 模型对足迹权重 (footprint)的准确计算是模拟 CO<sub>2</sub> 浓度的关键,而 足迹权重是在 WRF 模型模拟和输出的气象场驱动下 运行 STILT 模型得出。WRF 模型是由美国国家大气 研究中心于 20 世纪 90 年代研发并经不断改进的中 尺度天气预报模型; STILT (http://stilt-model.org/ pmwiki/pmwiki.php)是基于拉格朗日原理的粒子随 机游走模型。模型通过释放大量的空气粒子来模拟 大气的运动过程以计算足迹权重,即通量的倒数, 代表单位 CO<sub>2</sub>通量产生的 CO<sub>2</sub>浓度贡献值,它与下 垫面所有格点的 CO<sub>2</sub>通量相乘可得到 CO<sub>2</sub>浓度贡献 值,如式(3)<sup>[13]</sup>。

STILT 模型由 WRF3.5 模型输出的高精度(小时 分辨率率)气象场驱动<sup>[11-12]</sup>,主要包括不同模拟层高 度的三维风速、气压、虚位温度、相对湿度、空气 密度等,以及用于计算下垫面湍流交换参数的粗糙 度长度、感热、潜热、摩擦风速等,所有输出参数 见 Nehrkorn 等<sup>[23]</sup>。WRF 模型所采用的参数化方案见 文献[11-12],其所基于的气象场初始和边界条件采 用 NCEP(National Centers for Environmental Prediction) 的 FNL 资料(http://rda.ucar.edu/datasets/ds083.2), 气象场的模拟时间段为与高塔 CO<sub>2</sub>浓度相同的 2008 年的生长季 6-9 月,时间分辨率为小时。为给 STILT 模型提供更准确的 WRF3.5 气象驱动场,在 WRF3.5 模型中采用 3 层嵌套(Domain1、Domain2、Domain3) 双向反馈的设置,把 3 层嵌套的模拟区域的空间分 辨率分别设置为 27、9、3km,东西和南北格点数分 别为 250×180、385×409、670×532; 3 层模拟分别为 图 1a 中深蓝、浅黄和深黄色区域。而在 STILT 模型 中设置空气粒子运动范围为 125-65°W, 25-62°N, 区域覆盖美国本土。式(1)-式(3)可进一步由式 (4) 表达,即

$$CO_{2,m}(x_{r},t_{r}) = \int_{t_{0}}^{t_{r}} dt \int_{V} d^{3}x I(x_{r},t_{r} \mid x,t) S(x,t) + \int_{V} d^{3}x I(x_{r},t_{r} \mid x,t_{0}) C(x,t_{0})$$
(4)

式中,  $CO_{2,m}$  ( $x_r$ ,  $t_r$ ) 为位于  $x_r$ 位置  $t_r$ 时刻模拟 的  $CO_2$ 浓度,本研究中,模型设置  $x_r$ 为浓度观测所 在位置 44°41'19"N, 93°4'22"W 和高度 100m,  $t_r$ 则与 高塔浓度观测时间对应,右边第一项为  $CO_2$ 浓度贡 献项,表示气体流经上游所有模拟区域时,由于源 汇项 S(x, t) (即式 (1) –式 (3) 中  $CO_2$ 通量)的影 响产生的  $t_0$ - $t_r$ 时间段累积浓度贡献值  $\Delta$ ,因为模型 显示绝大多数粒子在 7d 前来源于相对干净的背景场 浓度区域 (如东太平洋和加拿大北部),所以模型设 置该累积过程时间为 168h (即 n=168)。第二项为初 流从流入模拟区域开始,经过的所有区域 CO<sub>2</sub> 通量 在累计时间段(t<sub>0</sub>-t<sub>r</sub>)对浓度模拟的影响, I(x<sub>r</sub>,t<sub>r</sub>|x,t<sub>0</sub>)则是在初始 t<sub>0</sub>时刻的影响函数。在 STILT 模型中通过设置每小时在 100m 高度处释放 500 个粒子,计算在任意时间段和模拟区域内任意格 点所含粒子数占总粒子数的总停留时间比例,可得 到最终需要的足迹权重,换算过程详见 Lin 等<sup>[13,26]</sup>。 模型输出的足迹权重的时间分辨率为小时,空间分 辨率为 0.1°。

#### 1.2.3 CO2通量

如 1.2.1 所述,本研究所使用的 CO2 通量即源汇 项 S(x, t)由 3 部分组成, (1) 化石燃料燃烧 CO2 通 量(CO<sub>2.ff</sub>), 来自 EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research, 4.2 FT2010; European Commission, 2009<sup>[28]</sup>) 和 Carbon Tracker<sup>[9]</sup>, 两者是 被广泛使用的化石燃料燃烧 CO<sub>2</sub>排放源, EDGAR 的 空间分辨率为 0.1°×0.1°,时间分辨率为年,为了得 到与足迹权重和浓度观测相同的小时 CO2 通量,基 于"VULCAN"提供的小时变化系数得到小时尺度 的化石燃料燃烧 CO2 通量<sup>[29]</sup>; Carbon Tracker 的空 间分辨率为 1°×1°,时间分辨率为月,其化石燃料 通量取自 Miller (Boden 等<sup>[30]</sup>) 和 ODIAC (Carbon Dioxide Information and Analysis Center, Oda and Maksyutov<sup>[31]</sup>),取两者的平均值,这两种数据在国 家尺度上差异很小,但是在区域尺度上却有较大差 异。为了定量研究 EDGAR 和 Carbon Tracker 两种化 石燃料燃烧 CO2 通量对浓度模拟结果的影响,本文 将对比两者浓度模拟的差异。

(2) 生物质燃烧 (CO<sub>2,bb</sub>), 其空间分辨率为 1°×1°,时间分辨率为 3h,由 Carbon Tracker 提供(ftp://aftp.cmdl.noaa.gov/products/carbontracker/co2/fluxes/),是 GFED4.1s (Global Fire Emissions Database)<sup>[32-33]</sup>和 FINN (Fire Inventory from NCAR)<sup>[34]</sup>两个数据集的平均。其中 GFED4.1s (http://www.globalfiredata.org/)基于 MODIS 观测到的过火面积与程度, CASA 模拟的作物生物量以及释放 CO<sub>2</sub> 的排放因子等计算得到; FINN (https://www2.acom.ucar.edu/modeling/finn-fire-inventory-ncar)的火点信息和作物生物量数据均基于 MODIS 卫星遥感观测,结合排放因子,转化为生物质燃烧 CO<sub>2</sub> 通量; Carbon Tracker 同化系统使用 Mu 等<sup>[32]</sup>的方法降尺度至 3h 时间分辨率,由于

CO2 通量来自其 3h 资料。 (3) 植被生态系统净交换,虽然涡度相关方法 能进行植被生态系统净交换的直接观测,但由于代 表源区面积小,且代表下垫面类型单一,远不能满 足模型中所需要的模拟区域内包含不同下垫面的 CO2 通量,所以本文所使用的模拟区域内植被生态系 统净交换来自 Carbon Tracker,它是一种基于大气的 浓度观测,在 CASA (Carnegie-Ames Stanford Approach)模型模拟的基础上进行优化后的结果 <sup>[9,35]</sup>,使植被生态系统净交换更接近于真实值,其空

间分辨率为 1°×1°,时间分辨率为 3h,本文用线性内插的方法得到小时分辨率的通量,高塔涡度相关观测数据将用于其所在格点的 Carbon Tracker 对比分析,以探讨其不确定性的影响。

# 1.3 集合误差

集合误差(Aggregation error)<sup>[18]</sup>是指由于数据 观测和计算手段的限制,把非均质下垫面的通量在 格点里用区域平均值表示时所带来的模拟大气 CO<sub>2</sub> 浓度的误差。采用 Zhao 等<sup>[10]</sup>的方法,本文基于已有 高空间分辨率的 0.1°×0.1°CO<sub>2</sub>通量数据,将其进行 平均得到不同空间分辨率的通量资料,再进行 CO<sub>2</sub> 浓度模拟,利用 CO<sub>2</sub> 浓度贡献值的差异计算相应的 集合误差(S),即

$$S = \frac{\Delta CO_2(x^{\circ})}{\Delta CO_2(0.1^{\circ})}$$
(5)

式中, $\Delta CO_2(0.1^{0})$ 和 $\Delta CO_2(x^{0})$ 分别为使用空间分 辨率 0.1°和 x° CO<sub>2</sub>通量数据时模拟的 CO<sub>2</sub>浓度贡献 值 ( $\mu mol \cdot mol^{-1}$ )。

# 2 结果与分析

#### 2.1 生长季的足迹权重

在本研究中,WRF-STILT 模型首先模拟了生长 季的小时足迹权重。图 3 为生长季 4 个月的平均足迹 权重,由于足迹权重的空间变异性可达 7 个数量级, 所以采用常用对数 log<sub>10</sub>的形式在图中展示。按照 Chen 等<sup>[11-12]</sup>的定义,把足迹权重大于-4 的区域定义为对高 塔浓度观测的强贡献区,它代表对高塔 100m 观测点 CO<sub>2</sub>浓度模拟影响最大的范围。由图可知,由于湍流 强度和平均风速风向的差异,不同月份的强贡献区面 积(9 月>8 月>6 月>7 月)和形状差异显著。从其 覆盖范围可知,不仅有位于塔南的农业作物和塔北牧 草植被生态系统净交换影响,也有人为活动化石燃料



图 3 WRF-STILT 模型 期面的生 太学 內 月平均 CO<sub>2</sub> 走 迹 仪 里 Fig. 3 Monthly average footprint modeled by WRF-STILT model

燃烧的 CO<sub>2</sub>源的贡献。

#### 2.2 CO2 通量对浓度模拟的影响

#### 2.2.1 不同化石燃料的影响

为评估 Carbon Tracker 和 EDGAR 这两种被广 泛使用的化石燃料燃烧排放源的差异,以观测塔为 中心,分别以 4°、6°、10°、14°、20°为边长所在区 域(其中 1°代表的长度约为 90~100km),计算两者 2008 年的区域平均化石燃料燃烧 CO<sub>2</sub>通量,结果显 示,对应区域的差异都在 6%以内,其中边长为 4° 时两者相对误差为 5.9%,随着区域面积的增加,相 对误差呈现逐渐减小的趋势,当区域边长为 20°时相 对误差降至 1.8% (图 4)。

为了单独分析两者空间分布差异对 CO<sub>2</sub> 浓度模 拟的影响,先把 0.1°×0.1°空间分辨率的 EDGAR 数 据集合到与 Carbon Tracker 相同的 1°×1°分辨率,再



图 4 不同边长区域内 Carbon Tracker 和 EDGAR 的化石燃 料 CO<sub>2</sub> 通量平均值的对比

Fig. 4 Comparison of Carbon Tracker and EDGAR fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions

计算模拟得到的 CO<sub>2</sub>浓度贡献值的差异(如表 1), 结果显示,除 7 月外(R<sup>2</sup>=0.65),两者相关系数都大 于 0.97,表明相关性很高(P<0.001),这主要是因 为两者的区域平均通量相近;比例系数的比较也表 现出了相同的规律,除 7 月外(0.79),6、8、9 月 分别为 0.87、0.91 和 0.91,说明在区域平均上两者 差异均小于 6%,但是区域内空间分布的差异会导致 最后模拟 CO<sub>2</sub>浓度贡献值相差近 10%。

# 表 1 Carbon Tracker 和 EDGAR 空间分布差异对 CO<sub>2</sub> 浓度增加值影响的比较

Table 1The distribution difference effect on simulatedCO2 enhancement for Carbon Tracker and EDGAR

	6月 June	7月 July	8 月 Aug.	9月 Sep.
拟合斜率 Slope	0.91	0.79	0.93	0.98
月系数 Monthly ratio	0.87	0.79	0.91	0.91
决定系数 R <sup>2</sup>	0.98	0.65	0.98	0.98

#### 2.2.2 集和误差对 CO<sub>2</sub>浓度模拟的影响

研究区域位于下垫面均一的农业区,故选择 0.1° 高空间分辨率的 EDGAR 农业土壤,其 CO<sub>2</sub>通量可 近似代表生态系统净交换的空间分布状况,从而定 量探讨化石燃料燃烧和植被生态系统净交换集合误 差对模拟 CO<sub>2</sub> 浓度的影响。所以基于化石燃料和农 业土壤 0.1°的 CO<sub>2</sub> 通量数据,集合到 13 组不同空间 分辨率 (0.2°, 0.3°, 0.4°, 0.5°, 0.6°, 0.7°, 0.8°, 0.9°, 1°, 1.5°, 2°, 3°, 4°),再模拟得到 CO<sub>2</sub> 浓度 贡献值。

结果表明(图 5),化石燃料燃烧 CO<sub>2</sub>通量空 间分辨率与模拟的生长季平均 CO<sub>2</sub>浓度贡献值为 幂函数关系,随着分辨率的降低,集合误差增大 (集合误差率越小);当空间分辨率为 1°时,模拟 的 CO<sub>2</sub>浓度贡献值仅 0.1°的 0.4 倍,说明若使用 空间分辨率为 1°的 Carbon Tracker,或者更低空 间分辨率的化石燃料燃烧 CO<sub>2</sub>源,模拟结果会严 重偏低。而由于在农业种植区,下垫面均一,不 同空间分辨率农业土壤释放 CO<sub>2</sub>通量模拟得到的 CO<sub>2</sub>浓度贡献值变化都在 5%以内,说明生态系统 净交换的集合误差和分辨率并无明显的关系。所 以在模拟 CO<sub>2</sub>通量过程中,对于下垫面空间异质 性高的人为化石源排放区域,应使用更高空间分 辨率的 CO<sub>2</sub>通量数据。





注:误差线为 6-9 月的标准差

Note: The error bar represents standard deviation in the 4 months

2.2.3 生态系统净交换的不确定性

为了评估 Carbon Tracker 生态系统净交换的误差, 对高塔 100m 处涡度相关的观测数据与其所在格点的 Carbon Tracker 的生态系统净交换通量进行对比分析, 选择白天(10:00-15:00)和夜晚(1:00-6:00) 两个时间段进行对比。如图 6 所示,散点表示在生长 季相对应的 3h 平均值。虽然 Carbon Tracker 的格点代 表的是边长为 1°(-90km)区域的平均,而 100m 高塔 涡度相关的通量平均源区半径小于 10km<sup>[36-37]</sup>,但是由 于该农业种植区下垫面均一,可认为两者都能观测到 相同下垫面类型的 CO<sub>2</sub> 通量。由图可见,对于夜晚和 白天,其对应的拟合斜率分别为 1.56 和 2.26,说明所 使用的生态系统净交换偏高,而两者呈极显著相关 (P<0.001)。观测点西北边的牧草区域由于没有直接的 涡度相关观测,所以本研究不作分析。

2.2.4 生态系统净交换与 CO<sub>2</sub>浓度模拟的定量关系

由于观测塔北部为牧草区域,南部为玉米种植区,



图 6 不同时段涡度相关法观测值与模型使用生态系统净交 换 CO<sub>2</sub> 通量的对比



两者植被类型差异大,所以风向或下垫面类型的误差 带来差异显著的生态系统净交换信号。为了分析下垫 面作物类型和其相应的通量对 CO<sub>2</sub> 浓度贡献值的影 响,在模型中分别把所有下垫面换作牧草和玉米地, 其通量分别对应 Carbon Tracker 中牧草和玉米地, 其通量分别对应 Carbon Tracker 中牧草和玉米地生态 系统净交换的通量,结果如表 2 所示。由表可见, 8 月下垫面为牧草, 9 月下垫面为玉米时,两者的月平均 生态系统净交换均为负,然而玉米下垫面的浓度贡献 值为负,牧草下垫面的浓度贡献值为正,这反映了不 同月份的足迹权重的差异。整个生长季草地的平均生 态系统净交换为-1.29μmol·m<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>(碳汇),然而其 CO<sub>2</sub> 浓度贡献值为正(2.46μmol·mol<sup>-1</sup>),说明对于 CO<sub>2</sub>浓 度,夜晚正生态系统净交换的贡献权重高于白天负通 量,这是因为夜晚边界层低于白天,所以导致即使是 相同的 CO<sub>2</sub> 通量却产生了差异显著的浓度贡献值。而 当下垫面全为玉米时,7、8 月的浓度贡献值分别为 -9.09μmol·mol<sup>-1</sup>和-11.19μmol·mol<sup>-1</sup>,且其平均 CO<sub>2</sub>浓 度贡献值与下垫面全为草地的差异达到 12μmol·mol<sup>-1</sup>, 说明下垫面分类产生的生态系统净交换差异和模拟风 向误差会导致 CO<sub>2</sub>浓度的显著模拟偏差。

Table 2	NEE of different underlying land use an	nd the corresponding CO <sub>2</sub> enhancement
---------	---	--

		6月 June	7月 July	8 月 Aug.	9月 Sep.
牧草区 Pasture	NEE $(\mu mol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1})$	-1.31	-0.74	-2.41	-0.68
	浓度贡献值 Enhancement(µmol·mol <sup>-1</sup> )	2.29	3.26	3.07	1.21
玉米区 Corn	NEE $(\mu mol \cdot m^{-2} \cdot s^{-1})$	0.03	-5.1	-4.83	-1.07
	浓度贡献值 Enhancement(µmol·mol <sup>-1</sup> )	4.11	-9.09	-11.19	-2.67
CarbonTracker 模型	浓度贡献值 Enhancement(µmol·mol <sup>-1</sup> )	1.28	-1.25	-1.54	0.07

# 2.3 CO2浓度模拟

基于 CO2 通量及其不确定性对 CO2 浓度模拟的 影响分析,本研究选取 0.1°空间分辨率的 EDGAR 化石燃料燃烧通量和 Carbon Tracker 生态系统净交 换 CO2 通量进行浓度模拟研究, 如图 7a 所示, WRF-STILT 能够模拟出 CO2 强的日变化特征,结果 显示, 整个生长季观测和模拟的 CO2 浓度均方根误 差为 13.70μmol·mol<sup>-1</sup>。生长季平均生物质燃烧浓度 贡献为 0.07µmol·mol<sup>-1</sup>,相对于化石燃料浓度贡献值  $6.43 \mu mol mol^{-1}$ ,可以被忽略,但是在某些时段,如 6 月 30 日, 生物质燃烧浓度贡献的最大值达到  $1.39\mu mol · mol^{-1}$ ,表明北方的火点燃烧在特定天气条 件下也会对高塔的 CO2 浓度产生明显影响。植被生 态系统净交换的浓度贡献值为-0.36µmol·mol<sup>-1</sup>,而  $CO_2$  的背景值浓度为 381.99 $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>。对比 WRF-STILT 模拟的浓度贡献值,更能客观反映 WRF-STILT 真实的模拟能力。从图 7b 可以看出,模 拟的浓度贡献值与观测值相关系数高(R=0.52, P<0.001),由模拟方程可知,其模拟值偏高  $7.26 \mu mol \cdot mol^{-1}$  .

# 3 结论与讨论

(1)本研究通过 WRF-STILT 模型,对位于美国 玉米带的高塔 100m 处 CO<sub>2</sub>浓度进行模拟,结果表明,

模型能够很好地模拟出生长季 CO<sub>2</sub>浓度日变化特征, 但模拟结果偏高 7.26µmol·mol<sup>-1</sup>,这可能是模型气象 场(风速和边界层高度等)和所使用的 CO<sub>2</sub> 通量误 差导致的(石油化石燃料燃烧的高估和植被生态系 统净交换的低估)。刁一伟等<sup>[38]</sup>使用 WRF-VPRM 模 型,模拟了位于长三角区域地面站点夏季 6d 的 CO<sub>2</sub> 浓度,发现模拟结果偏低 5~15µmol·mol<sup>-1</sup>,认为模 拟误差由气象场和 CO<sub>2</sub> 通量偏差导致,其误差大于 本研究的方法,且其研究时段短。Mallia 等<sup>[25]</sup>使用 WRF-STILT 模型对盐湖城的高塔 CO<sub>2</sub>浓度模拟结果 显示,模型能很好地表示其日变化特征,而日变化 的主要贡献是由化石燃料燃烧导致的,而本研究由 于在农业区进行,所以植被生态系统净交换是 CO<sub>2</sub> 浓度的主要贡献。

(2)通过定量评估 CO<sub>2</sub>通量对模型模拟的影响, 发现 CO<sub>2</sub>通量大小和分辨率的差异是模拟结果的主 要误差来源,这是因为其空间异质性大,当观测塔 附近有明显的强点源化石燃料燃烧释放 CO<sub>2</sub>时,低 空间分辨率会降低其对高塔浓度的影响,进而导致 模拟的 CO<sub>2</sub>浓度偏低,使用 1°空间分辨率的化石燃 料 CO<sub>2</sub>通量模拟的 CO<sub>2</sub>浓度增加值仅 0.1°模拟结果 的 0.4 倍,且分辨率越低,模拟误差越大;因此集合 误差是模拟高塔 CO<sub>2</sub>浓度和反演 CO<sub>2</sub>通量的潜在误



图 7 CO<sub>2</sub> 浓度(a)和贡献值(b)观测值与模拟值的对比分析

Fig. 7 Comparison of CO<sub>2</sub> concentrations (a) and CO<sub>2</sub> enhancement (b) bewtween observation and simulation

差来源。Kaminski 等<sup>[18-19]</sup>也强调了分析集合误差的 重要性, Zhao 等<sup>[10]</sup>发现不同分辨率的 CH4通量同样 会导致模拟和反演结果的误差,本研究更定量分析 了误差大小随分辨率变化的关系,建议今后基于 WRF-STILT 模型对其它气体进行浓度模拟和通量反 演时,首先需要对所使用通量进行集合误差分析。 模型使用的白天和夜晚生态系统净交换分别是高塔 涡度相关观测的 2.26 和 1.56 倍,而这是模拟 CO<sub>2</sub>浓 度偏高的原因,麦博儒等<sup>[39]</sup>分别使用代表珠江三角 洲的 3 个不同类型下垫面的生态系统净交换观测值, 与 Carbon Tracker 模拟值进行对比,发现虽然两者相 关系数较高,但是后者同样会高于观测值。Carbon

Tracker 和 EDGAR 两种重要的化石燃料通量,其区 域平均值相差<6%,而对模拟的 CO<sub>2</sub>浓度增加值的 平均差异约为 10%,这主要是由于两者区域平均和 空间分布差异所导致,Miller 等<sup>[40-41]</sup>同样认为 EDGAR 燃烧对模拟的 CO<sub>2</sub>浓度增加值误差在国家 尺度上为 5%~10%,但在区域尺度上,其不确定性 甚至会远远超出该范围,所以降低其 CO<sub>2</sub> 通量的误 差是未来准确模拟 CO<sub>2</sub>浓度的基础。研究结果也表 明下垫面类型的差异产生的植被生态系统净交换模 拟的误差,同样是导致模拟 CO<sub>2</sub>偏差的原因。

研究结果表明 WRF-STILT 模型具有强的 CO<sub>2</sub> 浓度模拟能力, CO<sub>2</sub> 通量的偏差及其在空间分布上的

差异是主要误差来源,该方法表明 WRF-STILT 模型 在浓度模拟和区域通量反演上具有可行性,可为将 来在中国农业种植区建立高塔 CO<sub>2</sub> 浓度观测网络, 反演区域尺度的生态系统净交换和计算区域植被生 产力提供理论和技术指导。由于观测的原因,本研 究并未分析 WRF 模型输出的气象驱动场与实际观测 的差异(主要包括风速和边界层高度),将在未来研 究中加以开展。

#### 参考文献 References

[1]于贵瑞,王秋凤,朱先进.区域尺度陆地生态系统碳收支评估 方法及其不确定性[J].地理科学进展,2011,30(1):103-113.

Yu G R,Wang Q F,Zhu X J.Method and uncertainties in evaluating the carbon budgets of regional terrestrial ecosystems[J].Progress in Geography,2011,30(1):103-113.(in Chinese)

- [2]Maki T,Ikegami M,Fujita T,et al.New technique to analyse global distributions of CO<sub>2</sub>,concentrations and fluxes from non-processed observational data[J].Tellus Series B-chemical & Physical Meteorology, 2010, 62(5):797-809.
- [3]Saeki T,Maksyutov S,Sasakawa M,et al.Carbon flux estimation for Siberia by inverse modeling constrained by aircraft and tower CO<sub>2</sub>,measurements[J].Journal of Geophysical Research Atmospheres, 2013,118(2):1100-1122.
- [4]Houghton R A.Balancing the global carbon budget[J].Earth and Planetary Sciences,2007,35(35):313-347.
- [5]Quéré C L,Raupach M R,Canadell J G,et al.Trends in the sources and sinks of carbon dioxide[J].Nature Geoscience, 2009,2(12):831-836.
- [6]于成龙,刘丹.小兴安岭天然阔叶混交林生长季 CO<sub>2</sub> 通量特 征分析[J].中国农业气象,2011,32(4):525-529.

Yu C L,Liu D.Analysis on CO<sub>2</sub> flux during growth season of natural broadleaved mixed forest in Xiaoxinganling Mountains[J].Chinese Journal of Agrometeorology,2011, 32(4):525-529.(in Chinese)

[7]李永秀,杨再强,张富存,等. 光合作用模型在长江下游冬麦 区的适用性研究[J].中国农业气象,2011,32(4):588-592.

Li Y X,Yang Z Q,Zhang F C,et al.Applicability of different photosynthesis models for winter wheat in the lower Yangtze river[J].Chinese Journal of Agrometeorology,2011,32(4): 588-592.(in Chinese)

- [8]Chen M,Griffis T J,Baker J,et al.Simulating crop phenology in the Community Land Model and its impact on energy and carbon fluxes[J].Journal of Geophysical Research-Biogeosciences,2015,120(2):310-325.
- [9]Peters W,Jacobson A R,Sweeney C,et al.An atmospheric perspective on North American carbon dioxide exchange: CarbonTracker[J].Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America,2007,104(48): 18925-18930.
- [10]Zhao C,Andrews A E,Bianco L,et al.Atmospheric inverse estimates of methane emissions from Central California[J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 2009, 114(D16):4723-4734.
- [11]Chen Z,Griffis T J,Millet D B,et al.Partitioning N<sub>2</sub>O Emissions within the US Corn Belt using an Inverse Modeling Approach[J].Global Biogeochemical Cycles, 2016,30:1192-1205.
- [12]Su Y K,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):8316-24.
- [13]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(4493):1211-1222.
- [14]Gerbig C,Lin J C,Wofsy S C,et al.Toward constraining regional-scale fluxes of CO<sub>2</sub>,with atmospheric observations over a continent:analysis of COBRA data using a receptor-oriented framework[J].Journal of Geophysical Research Atmospheres,2003,108(D24):4757-ACH6.
- [15]Alexandratos N,Bruinsma A J.World agriculture towards 2030/2050: the 2012 revision[M].Rome:Food and Agriculture Organization of the United Nations,2008.

[16]潘根兴,赵其国.我国农田土壤碳库演变研究:全球变化和国家粮食安全[J].地球科学进展,2005,20(4):384-393.
Pan G X,Zhao Q G.Study on evolution of organic carbon stock in agricultural soils of China:facing the challenge of global change and food security[J].Advances in Earth Science,2005, 20(4):384-393.(in Chinese)

[17]陈纪波,胡慧,陈克垚,等.基于非线性 PLSR 模型的气候变 化对粮食产量的影响分析[J].中国农业气象,2016,37(6): 674-681.

Chen J B,Hu H,Chen K Y,et al.Effects of climate change on the grain yield based on nonlinear PLSR model[J].Chinese Journal of Agrometeorology,2016,37(6):674-681.(in Chinese)

- [18]Kaminski T,Rayner P J,Heimann M,et al.On aggregation errors in atmospheric transport inversions[J].Journal of Geophysical Research Atmospheres,2001,106(D5):4703-4715.
- [19]Turner A J,Jacob D J.Balancing aggregation and smoothing errors in inverse models[J].Atmospheric Chemistry & Physics,2015,15(1):1001-1026.
- [20]Wang E,Little B B,Williams J R,et al.Simulation of hail effects on crop yield losses for corn-belt states in USA[J].Transactions of the CSAE,2012,258(21):10012-10016.
- [21]高韵秋,刘寿东,胡凝,等.南京夏季城市冠层大气 CO<sub>2</sub> 浓度 时空分布规律的观测[J].环境科学,2015(7):2367-2373.
  Gao Y Q,Liu S D,Hu N,et al.Direct observation on the temporal and spatial patterns of the CO<sub>2</sub> concentration in the atmospheric of Nanjing urban canyon in summer[J]. Environmental Science,2015(7):2367-2373.(in Chinese)
- [22]Griffis T J,Baker J M,Sargent S D,et al.Influence of C4 vegetation on <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> discrimination and isoforcing in the upper Midwest,United States[J].Global Biogeochemical Cycles,2010,24(4):16.
- [23]Nehrkorn T,Eluszkiewicz J,Wofsy S C,et al.Coupled weather research and forecasting-stochastic time-inverted lagrangian transport (WRF–STILT) model[J].Meteorology & Atmospheric Physics,2010,107(1):564.
- [24]Ahmadov R,Gerbig C,Kretschmer R,et al.Comparing high resolution WRF-VPRM simulations and two global CO<sub>2</sub> transport models with coastal tower measurements of CO<sub>2</sub>[J]. Biogeosciences,2009,6(5):807-817.
- [25]Mallia D V,Lin J C,Urbanski S,et al.Impacts of upwind wildfire emissions on CO,CO<sub>2</sub>,and PM2.5, concentrations in Salt Lake City,Utah[J].Journal of Geophysical Research Atmospheres,2015, 120(1):147-166.
- [26]Gerbig C,Lin J C,Wofsy S C,et al.Towards constraining regional scale fluxes of CO<sub>2</sub> with atmospheric observations over a continent 1:observed spatial variability from airborne platforms[J].Journal of Geophysical Research Atmospheres, 2003,108(D24):ACH 5-1.

- [27]Pillai D,Gerbig C,Kretschmer R,et al.Comparing lagrangian and eulerian models for CO<sub>2</sub> transport – a step towards Bayesian inverse modeling using WRF/STILT-VPRM[J]. Atmospheric Chemistry & Physics,2012,12(1):1267-1298.
- [28]European Commission, Joint Research Centre/Netherlands Environmental Assessment Agency. Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR), release version 4.0[M].2009.
- [29]Gurney K R,Mendoza D L,Zhou Y,et al.The vulcan project:high resolution fossil fuel combustion CO<sub>2</sub> emissions fluxes for the United States[J].Environmental Science & Technology,2009,43(14):5535-5541.
- [30]Boden T A,Marland G,Andres R J.Global,regional,and national fossil-fuel CO<sub>2</sub> emissions[J].Carbon Dioxide Information Analysis Center,Oak Ridge National Laboratory, U.S.Department of Energy,Oak Ridge, Tenn.,U.S. A.,2013.
- [31]Oda T,Maksyutov S.A very high-resolution (1km×1km) global fossil fuel CO<sub>2</sub> emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights[J].Atmospheric Chemistry & Physics,2010,10(7): 16307-16344.
- [32]Mu M,Randerson J T,Van d W G R,et al.Daily and 3 hourly variability in global fire emissions and consequences for atmospheric model predictions of carbon monoxide[J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 2011, 116(D24):191-200.
- [33]Giglio L,Randerson J T,Werf G R V D.Analysis of daily, monthly,and annual burned area using the fourth-generation global fire emissions database (GFED4)[J].Journal of Geophysical Research Biogeosciences,2013,118(1):317-328.
- [34]Wiedinmyer C,Akagi S K,Yokelson R J,et al.The Fire INventory from NCAR (FINN):a high resolution global model to estimate the emissions from open burning[J]. Geoscientific Model Development Discussions,2010, 3(4): 625-641.
- [35]Potter C S,Randerson J T,Field C B,et al.Terrestrial ecosystem production:a process model based on global satellite and surface data[J].Global Biogeochemical Cycles,1993,7(4):811-841.
- [36]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 & Physics,2014,14(19): 10705-10719.

- [37]Davis K J,Bakwin P S,Yi C,et al.The annual cycles of CO2,and H<sub>2</sub>O exchange over a northern mixed forest as observed from a very tall tower[J].Global Change Biology, 2003,9(9):1278-1293.
- [38] 刁一伟,黄建平,刘诚,等.长江三角洲地区净生态系统二氧 化碳通量及浓度的数值模拟[J].大气科学,2015,39(5): 849-860.

Diao Y W,Huang J P,Liu C,et al.A modeling study of CO<sub>2</sub> flux and concentrations over the Yangtze River Delta using the WRF-GHG model[J].Chinese Journal of Atmospheric Sciences,2015, 39(5):849-860.(in Chinese)

[39]麦博儒,安兴琴,邓雪娇,等.珠江三角洲近地层 CO2 通量模

拟分析与评估验证[J].中国环境科学,2014,34(8): 1960-1971.

Mai B R,An X Q,Deng X J,et al.Simulation analysis and verification of surface CO<sub>2</sub> flux over Pearl River Delta,China[J].China Enviromental Science,2014,34(8): 1960-1971.(in Chinese)

- [40]Miller J B,Lehman S J,Montzka S A,et al.Linking emissions of fossil fuel CO<sub>2</sub>,and other anthropogenic trace gases using atmospheric 14CO<sub>2</sub>[J].Journal of Geophysical Research Atmospheres,2012,117(D8):8302.
- [41]Nassar R,Napier-Linton L,Gurney K R,et al.Improving the temporal and spatial distribution of CO<sub>2</sub> emissions from global fossil fuel emission data sets[J].Journal of Geophysical Research Atmospheres,2013,118(2):917-933.