#### DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2017.0187

胡诚,刘寿东,曹畅,等.2017.南京市大气 CO2浓度模拟及源贡献研究[J].环境科学学报 37(10):3862-3875

Hu C , Liu S D , Cao C , et al. 2017. Simulation of atmospheric CO<sub>2</sub> concentration and source apportionment analysis in Nanjing City [J]. Acta Scientiae Circumstantiae 37(10): 3862–3875

## 南京市大气 CO<sub>2</sub> 浓度模拟及源贡献研究

### 胡诚<sup>12</sup>,刘寿东<sup>12,\*</sup>,曹畅<sup>1</sup>,徐敬争<sup>3</sup>,曹正达<sup>4</sup>,李文倩<sup>5</sup>,徐家平<sup>1</sup>,张弥<sup>12</sup>,肖薇<sup>12</sup>, 李旭辉<sup>1</sup>

1. 南京信息工程大学气候与环境变化国际合作联合实验室大气环境中心 南京 210044

2. 南京信息工程大学气象灾害预报预警与评估协同创新中心/气象灾害教育部重点实验室 ,南京 210044

3. 江苏省无线电科学研究所有限公司, 江苏 214073

4. 厦门市气象局,厦门 361000

5. 贵州省毕节市赫章县气象局 毕节 553200

收稿日期: 2017-02-24 修回日期: 2017-05-15 录用日期: 2017-05-19

摘要: 定量研究城市区域人为 CO<sub>2</sub>通量对于控制温室气体排放具有重要意义,而基于大气 CO<sub>2</sub>浓度观测与大气传输模型方法反演区域尺度的 CO<sub>2</sub>通量是未来的一个重要发展方向,其中模型对大气 CO<sub>2</sub>浓度的模拟则是能否成功反演 CO<sub>2</sub>通量的重要基础,然而我国还未有针对城市区域 CO<sub>2</sub>浓度的长时间(>1 年)模拟.本研究基于高空间分辨率的人为源 CO<sub>2</sub>资料与拉格朗日大气传输模型(WRF-STILT),对南京市郊区 34 m 观测 高度处 2014 年大气 CO<sub>2</sub>浓度进行模拟,并就模型模拟结果的主要影响因素和源贡献组成进行了分析,研究得出以下结论:① WRF-STILT 模型 能较好模拟出4 个季节观测到的高 CO<sub>2</sub>浓度及有季节差异性的日变化特征.②观测 CO<sub>2</sub>浓度的足迹贡献源区(footprint)的季节变化在盛行风向 影响下差异巨大,CO<sub>2</sub>浓度增加值在前 1 d 的主要贡献占据总浓度贡献的 90% 表明该 34 m 高度观测点可代表长三角区域的 CO<sub>2</sub>排放量的影响,而安徽东部和江苏中南部对其影响更大;③相对于排放源的日变化,边界层高度等气象因素的差异是引起 CO<sub>2</sub>强日变化的主要因素,这也 是模拟的各季度浓度增加值差异的原因,其中秋季(34.97  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>) >冬季(30.07  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>) >夏季(27.28  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>) >春季(23.36  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>);④浓度的主要贡献来源分别为石油生产(41%)和能源工业(26%),这和长三角区域的人为源 CO<sub>2</sub>排放通量差异巨大(石油生 产: 3% 能源工业: 35%).

关键词:人为化石燃料; WRF-STILT 模型;足迹权重;长三角

文章编号: 0253-2468(2017) 10-3862-14 中图分类号: X511 文献标识码: A

# Simulation of atmospheric CO<sub>2</sub> concentration and source apportionment analysis in Nanjing City

HU Cheng<sup>1,2</sup>, LIU Shoudong<sup>1,2,\*</sup>, CAO Chang<sup>1</sup>, XU Jingzheng<sup>3</sup>, CAO Zhengda<sup>4</sup>, LI Wenqian<sup>5</sup>, XU Jiaping<sup>1</sup>, ZHANG Mi<sup>1,2</sup>, XIAO Wei<sup>1,2</sup>, LI Xuhui<sup>1</sup>

- 1. Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, International Joint Laboratory on Climate and Environment Change (ILCEC), Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044
- Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education (KLME) / Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters (CIC-FEMD), Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044

3. Radio Science Research Institute Inc., Jiangsu 214073

4. Xiamen Meteorological Bureau , Xiamen 361000

基金项目:国家自然科学基金(No.41575147 41475141 41505005);江苏省高校优势学科建设工程项目(No.PAPD);教育部长江学者和创新团 队发展计划项目(No.PCSIRT);2016 年度江苏省高校研究生科技创新项目(No.KYZZ16\_0348);国家公派联合培养博士研究生项目(No. 201508320287)

Supported by the National Natural Science Foundation of China (No.41575147 A1475141 A1505005), the Ministry of Education of China under Grant PCSIRT, and the Priority Academic Program Development of Jiangsu Higher Education Institutions; the Research Innovation Program for College Graduates of Jiangsu Province (No. KYZZ16\_0348) and the Visiting Fellowship from China Scholarship Council (No.201508320287)

作者简介: 胡诚(1989—) , 周 博士生 E-mail: nihaohucheng@ 163.com; \* 通讯作者(责任作者) E-mail: lsd@ nuist.edu.cn

Biography: HU Cheng(1989-), male Ph.D. candidate , E-mail: nihaohucheng@163.com; \* Corresponding author , E-mail: lsd@nuist.edu.cn

received in revised form 15 May 2017;

Received 24 February 2017;

accepted 19 May 2017

**Abstract**: Quantifying anthropogenic  $CO_2$  flux in cities is essential to control greenhouse gas emissions , and the method of combing atmospheric  $CO_2$  concentration observations with atmospheric transport model is an important developing direction for  $CO_2$  flux retrieval at the regional scale , while the simulation performance of  $CO_2$  concentration is a vital basis for this method. Currently , no long-term  $CO_2$  modeling (>1 year) has been conducted for urban domains in China. In this study , we applied high spatial resolution anthropogenic  $CO_2$  emission inventory and Lagrangian particle dispersion model (WRF-STILT) to simulate  $CO_2$  concentrations observed at 34 m height for the year of 2014 , with main focus on the diurnal variations and their controlling factors. Results showed that the WRF-STILT model can simulate peak  $CO_2$  concentration and its strong diurnal variation. Seasonal prevailing wind direction difference led to large difference in footprint source area , and 90% of modeled  $CO_2$  enhancement was contributed by past one day , which indicated our observations can represent the emission effect of Yangtze River Delta area with main contributions from the east of Anhui province and the west of Jiangsu province. Diurnal variation of boundary layer height had much larger effect than that of emissions , leading to differences in seasonal  $CO_2$  enhancement , i.e. autumn ( $34.97 \ \mu mol \cdot mol^{-1}$ ) > winter ( $30.07 \ \mu mol \cdot mol^{-1}$ ) > summer ( $27.28 \ \mu mol \cdot mol^{-1}$ ) > spring ( $23.36 \ \mu mol \cdot mol^{-1}$ ). Source apportionment indicated that oil production and energy industry composed 41% and 26% of  $CO_2$  enhancement separately , while it was much different from regional average flux in domain1 (oil production 3% and energy industry 35%) where Yangtze River Delta is located. **Keywords**: anthropogenic fossil emissions; WRF-STILT model; footprint; Yangtze River Delta

1 引言(Introduction)

城市作为主要的温室气体排放区域,虽然只占 陆地面积的 2% 却贡献了全球 70%的人为 CO2排放 量(Satterthwaite et al., 2008),这主要是由与供暖、 发电、生产与交通运输等过程有关的化石燃料使用 所产生的(IPCC, 2013).城市这种独特的"生态系统 碳循环"(Lal et al. ,2012) ,不仅直接影响人类的生 活环境(Churkina et al., 1993; Stephen et al., 2008), 还改变了生物-大气-海洋各圈层的碳循环过程 (Pataki et al. 2006; Porfirio et al. 2010; 于贵瑞等, 2011).全球有超过一半的人口居住在城市区域,联 合国报告预测到 2050 年居住在城市的人口会从 34 亿增长到 63 亿,而我国也正经历快速城镇化的过 程 2011 年全国城市化率达到了 51.27%(周艳等, 2016) 这将会进一步增加城市 CO<sub>2</sub>的排放,因此制 定相应的减排政策至关重要,而对城市 CO,排放的 定量研究是政府决策制定的基础,也是我国参加国 际间温室气体减排谈判的决策和理论支撑.

当前城市 CO<sub>2</sub> 通量的估算方法主要是基于 IPCC 算法的国家温室气体指南,我国天津、北京和 重庆等城市也开展了基于 IPCC 算法的温室气体排 放估算.该方法需要所有 CO<sub>2</sub>排放源类别的活动数 据(activity data)和排放系数(emission factors)(Boon et al. 2015),而这两者在统计和计算过程中都包含 很大不确定性,尤其在城市尺度的估算上.前人对美 国、荷兰、挪威等国家的温室气体排放清单的不确 定性研究结果表明,其国家尺度的不确定性分别为  $-2\% \sim 8\%$ (Cook et al. 2013)、 $\pm 21\%$ (Rypdal et al., 2000)、 $\pm 4\%$ (Van Amstel et al., 1999); Ciais 等 (2010a; 2010b)得出欧盟 25 个国家的温室气体排 放估算的不确定性为 19%,而在城市尺度及小于 200 km 的区域尺度,其不确定性甚至高达 60%.除 此之外 碳氧同位素方法也逐渐被用于城市的 CO<sub>2</sub> 通量估算与来源拆分,目前国内仅在北京和南京开 展了长时间的原位在线观测(Pang et al. 2016;徐家 平等 2016),但由于该方法对仪器和维护成本要求 高,很难开展大规模应用.所以城市 CO<sub>2</sub>通量估算方 法的限制,影响了政府决策的制定以及效果评估.近 年来,基于 CO<sub>2</sub>浓度观测的通量反演方法被证明具 有巨大潜力(Gerbig et al. 2003; Peters et al. 2007), 而与之相关的温室气体浓度观测与模型模拟研究 成为这方面的一个重要突破.

基于大气浓度观测数据和大气传输模型 反演 CO,通量的方法首先被应用于植被 NEE(生态系统 净交换)的估算中,Peter 等(2007)使用全球大气 CO,浓度观测数据成功反演了陆地生态系统净交 换 Piao 等(2009) 和 Zhang 等(2014) 基于中国的 CO,浓度观测和大气传输模型也估算了中国区域的 植被 NEE.在反演 NEE 的过程中,为了减少人为源 不确定性的影响 都是假设所使用的人为源误差为 0,只对 NEE 和海洋 CO,通量进行估算.相对于其它 陆地生态系统的植被 NEE ,城市生态系统中的 CO, 浓度模拟和通量反演的难度更大,这是因为城市中 人为排放源的空间异质性大,城市下垫面复杂 (Boon et al. 2015); 近几年基于该方法对城市 CO, 浓度的模拟以及人为 CO2通量估算的研究开始在洛 杉矶、盐湖城、巴黎等城市展开(Mckain et al. 2012; Kort et al. 2013; Staufer et al. 2016). 而在我国只有 少数学者用于对植被 NEE 的反演 (Piao et al., 2009; Zhang et al. 2014) 对 CO<sub>2</sub>浓度的模拟也集中 在大气本底站或者城市影响较小的区域(Cheng

3863

et al. 2013; 7一伟等 2015), 还未有相关基于排放 通量和大气传输模型的方法,针对城市 CO2浓度模 拟及来源分析的长时间连续研究(大于1年).对于 大气传输模型 主要可分为基于欧拉原理和拉格朗 日原理两大类,不同模型拥有各自的优缺点,欧拉 模型(如: WRF-GHG),其优点是可以模拟出在模拟 区域的所有空间模拟气体的浓度分布(Zhang et al., 2014; 7一伟等, 2015), 尤其是针对在大气传输过 程中有源汇项的气体,缺点是对于长时间的模拟需 要消耗大量计算机时;而基于拉格朗日原理的模 型,尤其是WRF-STILT模型,可对观测点区域的气 象场进行高精度的模拟和插值,使得模拟的浓度贡 献源区更准确,并且拥有数值模拟稳定,计算效率 高等优势,在只有少量观测站点,且模拟对象在大 气传输过程中并无化学反应过程的情况下,拉格朗 日模型具有明显优势(Su et al., 2013; Chen et al., 2016).

作为经济增长速度和总量排名居国内首位的 长江三角洲城市群,国土面积虽然只占全国面积的 2.2% 其区域生产总值却贡献了 18.5% ,CO,排放也 相应占据全国总量的 15% (Shen et al. ,2014; 蔡博 峰等 2015; 王祥荣等 ,2016). 而南京作为长三角区 域重要的综合性工业城市,其建筑面积高达753 km<sup>2</sup>,人口约820万(Xu et al. 2016),是一个理想的 温室气体综合观测地点 ,所以选择南京进行了城市 CO<sub>2</sub>浓度的长时间观测.本研究基于 WRF-STILT 大 气传输模型和高空间分辨率人为源 CO, 通量,对 2014 年南京观测的 CO,浓度进行模拟尝试,并探讨 影响其浓度变化的因素.以探索以下3个问题:①观 测站点所在高度的贡献源区代表范围,以及浓度增 加值的主要贡献时段; ②与高空间分辨率的人为源 CO,通量耦合的 WRF-STILT 模型 ,是否能模拟出南 京市 4 个季节观测到的高 CO2浓度和差异显著的日 变化特征,并定量分析影响浓度日变化的主要因 素;③CO,浓度的组成及来源解析,浓度组成是否能 代表长三角区域的 CO, 通量组成.

#### 2 材料与方法(Materials and methods)

#### 2.1 CO2浓度观测介绍

本研究使用的 CO<sub>2</sub>浓度测量仪器( 型号 G1101i ,Picarro Inc., Sunnyvale, CA) 安装于江苏省南京市 南京信息工程大学校园内( 32°12´N, 118°43´E),离 地面高度为 34 m,这是因为前期的模拟分析中,该 高度能够代表长三角范围的影响.观测点位于南京 市中心西北,且直线距离为20 km,其3 km 半径内 除了公路汽车尾气,无明显化石源 CO<sub>2</sub>排放.仪器的 采样频率和气流速度分别为0.3 Hz 和 30 mL•min<sup>-1</sup> 测量精度在0.1 µmol•mol<sup>-1</sup>以内.为了保 证仪器在长时间的原位观测过程中对 CO<sub>2</sub>浓度测量 的精度及稳定性,使用三通阀连接2瓶标准气体,每 3 h 对仪器进行自动标定 标气测量时间为5 min,其 来源可追溯到世界气象组织(WMO) 2007 的标准, 标定方法见 Wen 等(2013),通过 Allen 方差计算得 到小时 CO<sub>2</sub>浓度的观测精度高达 0.07 µmol•mol<sup>-1</sup> (Xu et al., 2016),观测时间为 2014 全年.

#### 2.2 CO2浓度模拟方法

在模拟过程中, $CO_2$ 的模拟浓度是由大气  $CO_2$ 初始场浓度( $C_{bg}$ ),人为源(化石源)排放引起的  $CO_2$ 浓度增加值( $\Delta C_{ff}$ ),植被生态系统净交换 (NEE)引起的  $CO_2$ 浓度变化( $\Delta C_{NEE}$ ),以及生物质 燃烧产生的  $CO_2$ 浓度增加值( $\Delta C_{bf}$ )4部分组成,如 公式(1)~(2)所示(刁一伟等,2015).模型中当气 流从东部的太平洋流到观测点过程中海洋  $CO_2$ 通量 对模拟浓度的影响被考虑包含在初始场浓度.

 $CO_{2 \mod}(x_r \ t_r) = C_{bg} + \Delta C_{ff} + \Delta C_{NEE} + \Delta C_{bf}$ (1)  $CO_{2 \mod}(x_r, t_r) = \int_{t_0}^{t_r} dt \int_V d^3 x I(x_r, t_r \mid x, t) S(x, t) +$  $\int_{V} d^{3}x I(x_{r} t_{r} | x t_{0}) C(x t_{0})$ (2) 式中, $CO_{2 \mod}(x_r, t_r)$ 表示与观测所在时刻和位置  $(x_r, t_r)$ 相对应的大气 CO<sub>2</sub>浓度模拟值 ,  $C_{bg}$ 可进一步 由公式(2) 中右侧第二项表示 而在 CO, 通量S(x t) 影响下产生的观测点浓度变化则由公式(2)右侧第 一项表示,它代表在积分时段内(t<sub>0</sub>~t<sub>r</sub>)模拟区域所 有网格点 CO, 通量对模拟 CO, 浓度贡献之和,  $I(x_t, t_t | x_t)$  与之相对应的气流上游任意网格点内 的通量对模拟浓度的影响函数(Gerbig et al. ,2003; Pillai et al., 2012) ,具体计算过程见本文 2.3 节部 分.CO2初始场浓度来自于 Carbon Tracker 全球大气 CO2浓度反演数据,不同 CO2源通量影响下产生的 CO2浓度变化由公式(3) 计算得出(Lin et al. ,2003; Mallia et al. 2015; Song et al. 2013).

$$\Delta C = \sum_{i=1}^{n} \left[ (\text{foot}_i \times (\text{flux}_{\text{CO}_2})_i \right] \quad (3)$$

式中  $flux_{CO_2}$ 为模拟区域不同格点里源汇项产生的  $CO_2$ 通量(mol·m<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>) foot 为模拟区域相应格点  $CO_2$ 通量 对观测点  $CO_2$ 浓度的贡献权重( $10^{-6}\mu mol^{-1} \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ )  $\mu$ 为模型设置的模拟  $CO_2$ 累积小时数 ,本研究设置为 7 d(n = 168) i 为 7 d 累积时段内任意小时;  $\Delta C$  为 由 CO<sub>2</sub>通量和足迹权重的共同影响而产生的相应 CO<sub>2</sub>浓度变化值.foot 由基于拉格朗日大气传输原理 的 STILT 模型模拟得到 ,本文将在 2.3 节部分详细 描述.

#### 2.3 WRF-STILT 模型

STILT (Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport) 可模拟和计算大气在气象场驱动下,最终运动到达观测点前,气流所经过的所有区域对观测时刻浓度的影响足迹权重(footprint),它是通过在观测点所在位置( $34 \text{ m} 32^{\circ}12^{\circ}N$ , $118^{\circ}43^{\circ}E$ )释放大量的空气粒子,本研究采用设置n = 500来模拟大气的运动,再计算所有粒子在任意格点驻留时间来定量研究该格点的通量对模拟点浓度的影响,而这 500个粒子在模型设置的7d前所在高度和位置的平均值作为模拟的初始 CO<sub>2</sub>场.如公式(1)所示.其需要WRF 中尺度模型输出高空间分辨率的气象场驱动.

$$f(x_r \ t_r | x_i \ y_j \ t_m) = \frac{m_{\rm air}}{h_0(x_i \ y_i \ t_m)} \frac{1}{N_{\rm tot}} \sum_{p=1}^{N_{\rm tot}} \Delta t_{p \ i \ j \ k} \quad (4)$$

式中  $m_{air}$ 为空气的摩尔质量 h 为下垫面影响层的 高度 ,前人的研究结果认为 STILT 模型计算得到的 足迹权重对 h 的取值不敏感(Lin *et al.*,2003; Chen *et al.* 2016) 采用模型默认值(模拟边界层高度的一 半)  $\rho$  为所有粒子的平均密度 , $N_{tot}$ 为释放的粒子总 数  $\Delta t_{pijk}$ 为任一粒子对应在某一区域( $x_i y_j$ ) 的下 垫面影响层所停留的时间( $t_m$ ),模型中下垫面释放 的 CO<sub>2</sub>通量能在下垫面影响层的高度内快速混合. 由于 CO<sub>2</sub>排放源空间的高异质性 ,因此高空间分辨 率的足迹权重才能与之匹配 ,而低空间分辨率会产 生集 合 严 重 的 集 合 误 差 (Aggregation error) (Kaminski et al. 2001; Zhao et al. 2009),为了得到 高空间分辨率的足迹权重,模式设置的足迹权重空 间分辨率为与 EDGAR 人为源相同的 0.1°.

为了得到更高空间和时间分辨率的气象驱动 场数据以及足迹权重,采用 WRF3.5 中尺度气象模 式,它由美国国家大气研究中心(NCAR)于20世纪 90年代后期开发(Grell et al. 2005),并经过不断发 展 现被广泛运用于环境、气象、海洋等领域的科学 研究和业务预报中(Skamarock et al., 2008; 7一伟 等 2015).本研究中的 WRF3.5 模型气象场模拟采 用三层嵌套,双向反馈设置,最外层模拟区域(d01, 图1中蓝色区域)主要包括中国中部和东部地区, 第二层(d02 图1中黄色区域)覆盖华东地区 最内 层(d03 图1中浅蓝色区域)包含长三角地区,模型 设置和微物理过程方案选择如表1和表2所示,可 为 STILT 模型提供最高 3 km 空间分辨率的气象场 驱动数据 并进行空间气象数据插值到所有空气粒 子所在位置 使粒子运动更接近于真实的大气运动. WRF 模型初始和边界场数据为美国环境预报中心 的 NCEP 再分析数据 ,空间分辨率为 1°×1°,时间分 辦率为6h.本研究组的刁一伟等(2015)使用相近的 微物理过程方案 前期对模拟和观测的评估显示气 象场模拟效果较好:2 m 高度空气温度的平均误差 (MBE)、均方根误差(RMSE)和相关系数(R)分别 为 0.21 ℃、1.12 ℃ 和 0.95; 平均风速: 1.22 m・s<sup>-1</sup> (MBE)、1.68 m·s<sup>-1</sup>(RMSE) 和 0.47(R);风向-39.57 (MBE)、76.36(RMSE)和 0.58(R);向下短波辐射: 0.29(MBE)、161.72(RMSE)和 0.89(R). 说明能对 气象驱动场进行较好地模拟.



图 1 模拟区域及观测点位置(注:(a) 红色点为南京市观测站点所在位置;(b) WRF 气象驱动场模型设置,蓝色、黄色和浅灰色区域分别 为 Domain1, Domain2和 Domain3 模拟区域;(c) 黑框内区域为 STILT 模型模拟的粒子运动区域.)

Fig.1 Model domains setup and observation sites

3866

表1 WRF 气象场模拟区域设置

Table	1 Parameters set	Parameters setup in WRF domains							
	Domain1	Domain1 Domain2							
	中国中部和 东部地区	华东地区	长三角地区						
空间分辨率	27 km	9 km	3 km						
东西格点数	105	154	253						
南北格点数	111	148	223						

#### 表 2 WRF 模式中微物理过程方案

Table 2 Micro-physical process schemes in WRF model

设置	所选择方案
积云参数化	Kain-Fritsch( new Eta) 方案 ( Kain <i>et al</i> . 2004)
长波辐射	RRTM 方案(Iacono et al. 2008)
边界层	YSU 方案( Hong et al. 2006)
陆面过程	Noah 陆面过程方案( Chen <i>et al</i> . 2001)
短波辐射	Dudhia 方案( Dudhia <i>et al</i> . ,1989)
近地面层	Monin-Obukhov 参数化方案

#### 2.4 模型所使用 CO2 通量

人为源(化石燃料燃烧)  $CO_2$  通量数据为 EDGAR v4.2 FT2010(Emissions Database for Global Atmospheric Research),它是基于 IPCC 算法计算的 全球高精度的  $CO_2$ 通量数据,可为模型提供高空间 分辨率(0.1°)的 13 个种类化石燃料燃烧  $CO_2$ 通量 数据,刁一伟等(2015)曾使用 EDGAR 人为源在国 内对 CO<sub>2</sub>浓度模拟进行了首次尝试.主要包括能源 工业过程(energy industry)、制造生产过程 (combustion in manufacturing industry)、原油生产和 提炼(oil production and refineries)、道路交通(road transportation) 和居民区化石燃料排放(residential emission) 等 根据 EDGAR 的数据,以上6种类排放 源占据了长三角总化石燃料排放 85% 以上.最新公 布的 0.1°空间分辨率 EDGAR 资料只更新到 2010 年 其估算的中国 2010 年的 CO, 排放量为 89.87 Gtons (1 G = 10<sup>9</sup>), 而 2014 年的碳排放量则为 107.11 Gtons.本研究忽略 4 年来 CO2 通量的空间变 化 而乘以校正系数 1.18(107.11/89.87) 以得到 2014年的高空间分辨率的人为源化石燃料 CO,排 放通量;由于该数据为年平均值,为了进一步得到 高时间分辨率(小时)的 CO,通量,使用的小时的排 放系数(图 3) 来自于 'Vulcan' 资料(Gurney et al., 2009) 其中除了占主要排放源的能源、生产制造等 工业过程变化系数在 0.8~1.2 之间,道路交通则较 大 在 0.1~1.9 内变化且明显夜晚远大于白天; 月系 数来自于 Carbon Tracker 对中国区域的 CO,通量数 据(Peter et al., 2007), 如表 3 所示, 分别表示 domain3(主要为长三角区域)和 domain1(主要为中 国中部和东部地区).



# **图 2** STILT 模型中所使用的人为源和植被 NEE 通量(a.EDGAR 数据中 13 种人为化石源 2014 年平均 CO<sub>2</sub>通量; b.植被 NEE 的 2014 年平 均 CO<sub>2</sub>通量)

Fig.2 Anthropogenic CO<sub>2</sub> flux and NEE used in STILT model (a. annual average of 13 categories EDGAR anthropogenic CO<sub>2</sub> flux for the year of 2014; b. annual average NEE for 2014)

植被 NEE 资料来自于 Carbon Tracker,数据空间分辨率为 1°×1°,时间分辨率为 3 h,它是根据全球的大气 CO<sub>2</sub>浓度观测,在 CASA(the Carnegie-Ames Stanford Approach; http://geo.arc.nasa.gov/

sge/casa /index4.html) 植被生长模型模拟基础上, 对 NEE 进行大气反演及优化,使得更接近于真实植 被 NEE 通量(Potter *et al.*,1993; Wiedinmyer *et al.*, 2010).生物质燃烧(biomass burning) 来自 GFED4.1s (Global Fire Emission Database) (Mu et al. ,2011; Giglio et al. ,2013) 和 FINN (Fire Inventory from NCAR) (Wiedinmyer et al. ,2010) 两个数据集的平 均,两者都是基于遥感观测和 IPCC 排放因子算法 估算的全球生物质燃烧 CO<sub>2</sub>通量.

表3 S	TILT 模型中所	使用的 EDGAR ,	人为源月变化系数
------	-----------	-------------	----------

			Table 3	Monthly scale factors for EDGAR anthropogenic $CO_2$ flux									
		1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月
月变化系数	Domain3	1.08	1.06	1.03	0.99	0.93	0.90	0.87	0.91	0.97	1.01	1.09	1.15
	Domain1	1.04	1.03	1.01	0.99	0.94	0.93	0.91	0.94	0.98	1.01	1.06	1.11



图 3 不同类别人为源的小时变化系数 Fig.3 Hourly scale factors for different EDGAR anthropogenic

Fig.3 Hourly scale factors for different EDGAR anthropogenic  $\rm CO_2$  fluxes

3 结果与讨论(Results and discussions)

#### 3.1 足迹权重(footprint)的分析

3.1.1 足迹权重的季节变化 定义春(12,1,2)、夏 (3,4,5)、秋(6,7,8)、冬(9,10,11)4个季节,用 WRF-STILT模型模拟的高空间分辨率(0.1°)和时 间分辨率(小时)足迹权重(footprint)平均到4个季 节以分析不同季节的贡献源区差异,它代表在不考 虑 CO,通量空间分布差异的情况下,潜在通量源区 对 34 m 高度观测站点 CO,浓度的影响范围和大小 (由于模型输出的 footprint 空间差异大,可达到7个 数量级,所以本研究采用常用对数表示.由图4可 知,足迹范围有明显的季节变化.Chen 等 (2016) 和 Hu 等(2015) 把大于-4 的足迹区域定义为 CO<sub>2</sub>浓 度的强贡献区(即图中黑色 绿色 ,黄色和粉红色所 表示区域).在春、夏、秋3个季节,由于受盛行海洋 性季风影响,源区大致呈东北-西南向,粉红色代表 的源区可覆盖华东大部分区域,包括江苏、安徽、浙 江、上海及山东南部,河南东部;而在冬季,在大陆 盛行陆地性西北季风的影响 强贡献源区呈现西北-东南向 强贡献区域最远可达到内蒙古南部.4 个季 节的强贡献源区都包含了长三角区域.而由于 footprint 采用的是 lg 表示,所以相邻颜色代表的差 异可达到 10 倍 即单位面积的黄色区域潜在浓度贡 献是粉红色区域的 10 倍 因此在本研究中绿色和黄 色所代表区域相对粉红色区域对观测点浓度的影 响更强.即安徽中东部和江苏中南部大部分区域相 对于长三角其它区域产生的贡献更大.









3.1.2 足迹权重的年平均及白天夜晚对比 由干 安徽中东部和江苏中西部地区相对于长三角其它 区域有更大的浓度贡献权重(图5),为了对该区域 潜在贡献源区进行更细致的分析,以0.5(lgF)为间 隔对 2014 年全年平均的足迹权重进行展示,如图 5a 所示.足迹权重 lgF>-3 的区域最南边可到太湖 中北部,东边覆盖常数、张家港、南通等城市,北部 可达淮安 西边则包含安徽省的马鞍山、芜湖、滁州 等城市.对于 lgF>-2 的区域,则主要包括南京市的 六合、浦口等区县,而由于南京钢铁集团及南京化 工集团等重工业位于六合区内 因此该 34 m 观测点 将接收来自其排放的高强度化石燃料 CO,源的影 响.白天夜晚由于边界层高度的日变化,及湍流强弱 的差异,会产生CO2浓度贡献源区的显著差异,而前 人往往通过经验假设在大气边界层均匀混合的情 况下 空气中的气体浓度可代表贡献源区面积约 100~1000 km 区域范围的影响(Potosnak et al., 1999; Wunch et al., 2009; Shen et al., 2014) ,为了 定量表示白天和夜晚的不同足迹权重( $\lg F$ )所包含 的格点数面积以及对应的人为源排放通量,采用 Shen 等(2014) 对长三角区域浓度贡献时段白天和 夜晚浓度贡献时段的划分(其中白天 Daytime: 10:00—17:00 夜晚 Nighttime: 23:00—5:00) 结果 如图 5b 和图 5c 所示,对两个湍流强度显著差异的 时间段进行了浓度贡献源区及相应区域面积和人 为源排放通量的统计的对比(表4);结果表明,夜晚 所对应的格点数基本高于白天的格点数,这主要是 由于白天湍流强 观测点更容易收到相对近距离排 放源的影响;若是以每个格点(0.1°×0.1°)代表约 100 km<sup>2</sup>面积区域计算,该 34 m 观测高度不同大小 的足迹权重所覆盖的面积差异显著 lgF>-1 的白天 和夜晚对应面积都只有约 100 km<sup>2</sup> ,但是  $\lg F > -2$  的 白天和夜晚总面积分别为 1100 km<sup>2</sup>和 5000 km<sup>2</sup>,可 知不同大小贡献源区所对应的区域和面积差异巨 大,建议未来使用浓度观测资料时必须基于高精度 的足迹权重分析对其潜在贡献源区进行仔细分析. 以六合区、南京市、江苏省的面积分别为 1486、 6597、107200 km<sup>2</sup>来考虑,浓度贡献源区 lgF>-2, >-2.5 >-3.5 的面积可大致包含以上区域. 与 Gloor 等(2001)和 Chen 等(2014)通过后向轨迹的方法大 致判断大气 100~200 m 高度的大气 CO2浓度能代 表  $10^6$  km<sup>2</sup>的区域结果相近.

表 4 日天和夜晚时段不同足迹权重大小( $\lg F$ )的格点数 格点覆盖面积( $km^2$ )及其所对应的人为源化石燃料 ${ m CO}_2$ i
--

	Table 4 Numbers and areas of grid cells corresponding to different footprints in daytime and nightline with average anthropogenic CO <sub>2</sub> flux											
		[0,-1]	[-1.5 ,-1]	[-2,-1.5]	[-2.5,-2]	[-3,-2.5]	[-3.5,-3]	[-4,-3.5]	[-4.5 ,-4]	[-5,-4.5]	> -5	总和
白天	格点数	1	1	9	51	242	1467	5664	19454	12703	11008	50600
	面积/km <sup>2</sup>	100	100	900	5100	24200	146700	566400	1945400	1270300		
	人为源排放/(10 <sup>3</sup> g•m <sup>-2</sup> •s <sup>-1</sup> )	2.22	2.09	0.75	0.33	0.22	0.20	0.10	0.07	0.05	0.05	50600
夜晚	格点数	1	9	40	125	437	1682	5097	19635	12648	10926	
	面积 $/km^2$	100	900	4000	12500	43700	168200	509700	1963500	1264800		
	人为源排放/(10 <sup>3</sup> g•m <sup>-2</sup> ·s <sup>-1</sup> )	1.33	0.71	0.41	0.33	0.19	0.16	0.11	0.07	0.06	0.05	

34°N

33°N

32°N







#### 3.2 模拟结果分析

3.2.1 4 个季节平均日变化对比 观测站点 CO<sub>2</sub>浓 度日变化范围都高于初始场浓度(图 6),说明 CO<sub>2</sub> 源(化石燃料燃烧,呼吸作用)对 CO<sub>2</sub>浓度的贡献高 于 CO<sub>2</sub>汇(植被光合作用),CO<sub>2</sub>浓度与初始场或者 大气本地站的差异(增量)可代表区域源的一个贡 献(徐家平等 2016) A 个季节观测到的 CO<sub>2</sub>增量分 别为春季: 23.52~49.65  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>,夏季: 21.36~ 52.37  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>,秋季: 28.14~55.41  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>, 冬季: 29.51~42.35  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>.这主要是因为高密 度的人口分布及与化石燃料使用有关的工业过程 CO<sub>2</sub>排放,显著增加了区域的大气 CO<sub>2</sub>浓度,不同季 节的差异主要受 CO<sub>2</sub>源汇通量差异以及边界层高度 季节变化的影响.在美国盐湖城夏季观测到的大气  $CO_2$ 增量为 25  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>,在本研究所观测的变化 范围内,且相对平均值偏低(Pataki *et al.* 2003);而 在芝加哥城市夏季观测到的增量为 7.3  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup> (Moore *et al.* 2015),小于南京的观测值,说明相对 于这些城市,长三角区域有更强的人为源排放;国 内 Pang 等(2016)的研究区分了北京冬季供暖期 (30~70  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)和夏季的植被生长期(10~40  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>),冬季明显高于南京的观测值,这是由 于冬季供暖所使用的煤炭燃烧导致的.且4个季节 都有明显的日变化特征,Pang 等(2016)在北京观 测的大气 CO<sub>2</sub>浓度也有很强的日振幅,供暖期为 21.4  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>,植被生长期则可达到 35.2  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>.这主要是由大气边界层的日变化及 CO<sub>2</sub> 通量(化石源和植被 NEE)的日变化特征共同影响 (Ahmadov *et al.*, 2009; Guha *et al.*, 2010; Ballav *et al.* 2016), 两者影响的定量分析将在 3.2.3 节加

以讨论.



- 图 6 模型和观测值的对比(a~d.在季节平均日变化上的对比 ,e.月平均的对比)(Initial CO<sub>2</sub>:初始 CO<sub>2</sub>浓度 ,灰色实线表示; Simulation1、 Simulation2、Simulation3 分别为使用无月变化系数的 2010 年 EDGAR、有月变化系数的 2010 年 EDGAR、同时使用 2014 年的校正系数 1.18 和月变化系数的 EDGAR 模拟得出的结果(详细介绍见本文 2.4 节))
- Fig.6 Comparison of (a~d) seasonally averaged and (e) monthly averaged diurnal variation between model results and observations (Initial CO<sub>2</sub>: gray line; Simulation1: using 2010 EDGAR anthropogenic CO<sub>2</sub> flux without monthly scale factors; Simulation2: using 2010 EDGAR anthropogenic CO<sub>2</sub> flux with monthly scale factors; Simulation3: using 2010 EDGAR anthropogenic CO<sub>2</sub> flux with monthly scale factors and calibration ratio 1.18 for the year of 2014)

WRF-STILT 模型模拟了 2014 年的小时 CO,浓 度 本研究不分析模型在小时尺度上对 CO<sub>2</sub>浓度的 模拟能力,只关注其整体平均的模拟,即CO<sub>2</sub>浓度季 节平均的日变化的特征,图6中 Simulation1、 Simulation2、Simulation3 分别为使用无月变化系数 的 2010 年 EDGAR、有月变化系数的 2010 年 EDGAR、同时使用年变化系数 1.18 和月变化系数的 EDGAR 模拟结果. 4 个季节都能模拟出在南京市观 测到的高 CO<sub>2</sub>浓度与强日变化特征. 与国外其它研 究得出的化石燃料浓度贡献相比, Ahmadov 等 (2009) 使用 WRF-VPRM 模型模拟了位于法国西南 部海岸边的 Biscarosse 站点的大气 CO<sub>2</sub>浓度 结果表 明化石燃料燃烧段的贡献都小于 4  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>,且 月平均贡献小于1 μmol•mol<sup>-1</sup>,这是由于其较少有 人为活动影响,南京市区则相反.Boon 等(2015)模 拟的伦敦化石燃料燃烧的 CO<sub>2</sub>浓度贡献值为(6.3± 2.9) μmol·mol<sup>-1</sup>,也远小于本研究的结果.Mallia 等 (2015) 对 2007 年 8—9 月美国盐湖城 CO<sub>2</sub>浓度进行 了模拟 结果显示 其人为化石燃料引起的 CO<sub>2</sub>浓度 增加值日变化在 0~40 μmol•mol<sup>-1</sup>之间,且几乎所 有模拟天数内的最大值都超过 30 μmol•mol<sup>-1</sup>,与本 研究结果相近.WRF-STILT 模型也能较好模拟出观 测到的 CO, 浓度月变化特征(图 6e), 不过 Simulation3 模拟结果在 8—12 月都高于观测值,其 原因可能为月变化系数的偏高或者人为源 CO<sub>2</sub>年平 均通量本身误差导致的.

整体来看,WRF-STILT 模型对于白天的模拟结 果 A 个季节的模拟值都低于观测值,尤其在春季, 偏低可达到 40 μmol•mol<sup>-1</sup>;对于夜间的模拟,春季 模拟结果与观测值接近,而其它 3 个季节模拟值偏 高 0~20 μmol<sup>-1</sup>.不同季节和相同季节不同时段 的差异反应了 WRF 模型对城市边界层高度模拟偏 差,而由于未有对边界层高度的直接观测,所以在 本研究中并未定量评估,将在以后的观测试验中加 入;除此之外,观测点附近存在更小空间尺度的车 辆尾气排放和工业过程排放,及 EDGAR 在长三角 区域人为源 CO<sub>2</sub>偏低都是模拟结果偏差的潜在原因 (刁一伟等,2015);而所使用的人为源 CO<sub>2</sub>通量的 日变化系数与真实值有一定偏差,未来的研究需要 基于实地调研数据,采用适用于长三角区域不同类 别人为源的排放日变化系数.

3.2.2 CO<sub>2</sub>浓度的时间累积贡献 当气团刚进入模 拟区域时被认为初始场浓度,在水平或垂直气流驱 动下运动 最终到达观测点位置前 不断受局地 CO, 通量的贡献,包括植被光合作用(汇)、呼吸作用 (源)、人为源(源)及生物质燃烧(源)的共同影响, 而引起 CO<sub>2</sub>浓度在初始场基础上产生的累积增加值 的变化(Gerbig et al. 2003; Lin et al. 2003).为了探 讨影响观测点 CO,浓度的主要时间段和区域范围, 分别分析 4 个季节 CO2 浓度累积增加值随时间变 化,以及其所占总浓度增加值的比例(图 7a,7b).可 知 CO<sub>2</sub>浓度增加值的主要贡献在前 12 h 内占据 80% 前1d内占据90% 说明该34m观测高度CO, 浓度主要接收到局地源强信号的影响,假设大气平 均风速的范围在 5~20 m•s<sup>-1</sup> 在一天内其运动范围 半径为 432~1728 km, 即浓度影响区域的空间代表 性可为南京和长三角区域(Shen et al., 2014; Xu et al. 2016) ,而远距离输送对其影响小.虽然不同季 节的 CO<sub>2</sub>浓度增加值差异大(图 7a) 但其累积贡献 所占总浓度增加值的比例随时间变化接近(图7b).







图 7 模型模拟结果分析 (a.CO<sub>2</sub>累积浓度增加值随时间变化 b.CO<sub>2</sub>累积贡献所占总浓度增加值的比例随时间变化 c.无日变化系数的人 为源 EDGAR 和有日变化系数的 EDGAR 对 CO<sub>2</sub>浓度模拟的影响)

3.2.3  $CO_2$ 浓度日变化特征的影响因素 在 3.2.1 节中得出边界层高度(以及气象场)和人为源  $CO_2$ 通量的日变化系数都是导致模拟  $CO_2$ 浓度偏差的潜 在原因,本部分将探讨这两个因素的影响.首先为了 研究大气边界层高度等气象条件对  $CO_2$ 浓度的影 响,考虑到不同季节的边界层高度等气象条件差异 显著,分析使用相同的化石源通量研究在不同边界 层和气象条件下,产生的  $CO_2$ 浓度增加值的差异,结 果如图 7a 所示.秋季(34.97  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>) >冬季 (30.07  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>) >夏季(27.28  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>) >春 季(23.36  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>),说明不同季节由于边界层 和气象场差异的影响,即便相同的  $CO_2$ 通量,其模拟 的  $CO_2$ 浓度增加值差异也可高达 1.5 倍(秋季与春 季).

再次,为了区分和定量研究 CO<sub>2</sub>排放源日变化 与边界层高度等气象要素日变化对 CO<sub>2</sub>浓度的影 响,分别使用无日变化特征的人为源 CO<sub>2</sub>通量与拥 有日变化(Vulcan 提供,图 3)的人为源模拟 CO<sub>2</sub>浓 度增加值(黑线:有日变化的排放源的模拟结果;红 线:无日变化的排放源模拟结果),其差异可以表征 排放源的日变化特征对 CO<sub>2</sub>浓度的影响(图 7e).在 21:00—7:00,拥有小时变化的 CO<sub>2</sub>排放源模拟的 CO<sub>2</sub>浓度增加值小于无日变化的结果,9:00—20:00 则相反 这主要是由于夜晚大气层结稳定且边界层低. 用四个季节由于有 CO<sub>2</sub>通量的日变化和无通量日变化 模拟的 CO<sub>2</sub>浓度之差来表征其对 CO<sub>2</sub>浓度日变化的影 响 其差异变化范围为春( $-2.22 \sim 1.45$  µmol·mol<sup>-1</sup>)、 夏(-3.22~1.67  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)、秋(-3.99~1.67  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)、冬(-2.51~2.17  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>).而各个 季节的 CO<sub>2</sub>浓度增加值变化范围为春(10.49~35.35  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)、夏(11.89~42.15  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)、秋(15.89~50.32  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)、冬(14.97~40.23  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)、说明相比较于排放源日变化特征对 CO<sub>2</sub>浓度日变化的影响,边界层高度的变化对其影响更大,Guga 等(2010)结合 CO<sub>2</sub>浓度日变化的 主要因素.

#### 3.3 CO2浓度源贡献值

基于 EDGAR 13 种不同类别的化石燃料排放, 分析了 CO<sub>2</sub>浓度的主要贡献来源,分别为石油生产 (Oil production: 13.78 µmol•mol<sup>-1</sup> 41%)、能源工业 (Energy industry: 8.86 µmol·mol<sup>-1</sup>, 26%)、制造工业 过程的燃烧( combustion in manufacturing industry: 5.39 µmol·mol<sup>-1</sup>,16%)、采矿过程(Mineral process: 3. 17 μmol • mol<sup>-1</sup>, 9%)、居民区生活排放 (Residential: 1.17 µmol • mol<sup>-1</sup>,3%),而其它剩余8 类只占了 4%. 而分析主要包括长三角区域的 Domain1 模拟区域的各类 CO<sub>2</sub>排放源的排放通量, 石油生产(8.78 单位为 10<sup>-5</sup> g·m<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>,下同 3%)、 能源工业(102,35%)、制造工业过程的燃烧(106, 36%)、采矿过程(35.2,12%)、居民区生活排放 (17.1,6%)、其它(24.4,8%),即便通过足迹权重 (footprint) 判断观测点的浓度贡献源区能代表长三 角的一个范围,但是该区域平均的不同类别 CO2通

Fig.7 Accumulated CO<sub>2</sub> enhancement changes over time (a), Proportion of accumulated CO<sub>2</sub> enhancement changes over time (b), Comparison between EDGAR fluxes with hourly variation and constant anthropogenic emission) (c)

量比例与其对应的 CO<sub>2</sub>浓度贡献差异巨大,这说明 不能单独以浓度的组成比例来定量表征贡献源区 平均的 CO<sub>2</sub>通量大小,尤其是在 CO<sub>2</sub>异质性高的区 域 还应结合气象条件和大气传输模型来分析主要 贡献源区大小、形状和来源.





#### 4 结论(Conclusions)

1) 在南京市 34 m 观测点观测到了高 CO<sub>2</sub>浓度 及季节平均的强日变化特征(春季: 23.52~49.65  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>;夏季: 21.36~52.37  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>;秋季: 28.14~55.41  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>;冬季: 29.51~42.35  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>), WRF-STILT 模型能够很好地模拟出这 两个特征;高 CO<sub>2</sub>主要是人为源化石燃料燃烧贡献 导致的,而相对于排放源的日变化,边界层高度的 变化对浓度强日变化作用更大.当在模型中使用相 同的人为源 CO<sub>2</sub>通量时,模拟的各个季节 CO<sub>2</sub>浓度 增加值秋季(34.97  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)>冬季(30.07  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)>夏季(27.28  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>)>春季(23.36  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>),说明不同季节由于边界层和气象场差 异的影响,即便相同的 CO<sub>2</sub>通量,其模拟的 CO<sub>2</sub>浓度 增加值差异也可高达 1.5 倍(秋季与春季).

2) 影响该 34 m 观测点 CO<sub>2</sub>浓度的主要影响区 域覆盖长三角区域,然而安徽东部和江苏中南部对 其浓度潜在影响更大;在春、夏、秋三季,受盛行海 洋性季风影响,源区大致呈东北-西南向,浓度贡献 源区可覆盖华东大部分区域;而在冬季,在大陆盛 行陆地性西北季风的影响,强贡献源区呈现西北-东 南向,贡献源区最远可达到内蒙古南部.CO<sub>2</sub>浓度增 加值随着时间的增长呈现对数形式递减,其 80%是 在前 12 h 内贡献的,而前 1 d 内区域源汇项贡献占 据 90%,假设大气平均风速的范围在 5~20 m·s<sup>-1</sup>, 在 1 d 内其运动范围半径为 432~1728 km,说明区 域源的贡献远大于远距离输送.

3) 通过分析源贡献,浓度的主要贡献来源分别 为石油生产(Oil production: 13.78  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>, 41%)、能源工业(Energy industry: 8.86  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>, 26%)、制造工业过程的燃烧(combustion in manufacturing industry: 5.39  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>,16%)、采矿 过程(Mineral process: 3.17  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>,9%)、居民 区生活排放(Residential: 1.17  $\mu$ mol·mol<sup>-1</sup>,3%),而 其它剩余8类只占了4%.而这与模拟的Domain3 (代表长三角范围)区域平均源通量差异大有关,说 明不能单一结合区域平均的CO<sub>2</sub>通量分析大气CO<sub>2</sub> 浓度的组成,或者CO<sub>2</sub>浓度组成代表CO<sub>2</sub>通量组成, 还应通过本研究所使用的源区贡献方法区分.

由于所使用的月变化系数并不都适用于 13 种 不同类别的 CO<sub>2</sub>人为源,并且日变化系数在不同地 区有一定差异,所以未来需要针对不同研究区域进 行日变化和月变化系数的调研,除此之外,建议加 入更多实际观测,如城市边界层高度以进一步探讨 模型对城市 CO<sub>2</sub>浓度模拟过程中的不确定性.而基 于浓度观测和大气传输模型反演人为源 CO<sub>2</sub>通量是 当今国内外研究的前沿科学问题,其重要发展方向 则是基于先验的人为源排放和准确的大气传输模 型进行 CO<sub>2</sub>通量的评估与优化.

#### 参考文献(References):

- Ahmadov R , Gerbig C , Kretschmer R , et al. 2009. 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 , 6( 5) : 807-817
- Ballav S , Patra P K , Sawa Y. 2016. Simulation of  $CO_2$  concentrations at Tsukuba tall tower using WRF-CO<sub>2</sub> tracer transport model [J]. Journal of Earth System Science , 125(1): 693–700
- Boon A , Broquet G , Clifford D J , et al. 2015. Analysis of the potential of near ground measurements of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> in London , UK for the monitoring of city-scale emissions using an atmospheric transport model [J]. Atmospheric Chemistry & Physics , 15 (22): 33003–33048
- 蔡博峰,王金南.2015. 长江三角洲地区城市二氧化碳排放特征研究 [J].中国人口・资源与环境,25(10):45-52
- Churkina G. 2008. Modeling the carbon cycle of urban systems [J]. Ecological Modelling , 216( 2) : 107-113
- Cheng Y L , Aa X Q , Yun F H *et al.* 2013. Simulation of CO<sub>2</sub> variations at Chinese background atmospheric monitoring stations between 2000 and 2009: Applying a CarbonTrackermodel [J]. Science Bulletin , 58(32) : 3986–3993
- Chen F , Dudhia J. 2001. Coupling an advanced land surface hydrology model with the penn state NCAR MM5 Modeling System. Part I: Model implementation and sensitivity [J]. Monthly Weather Review , 129(4): 587-604
- Chen Z , Griffis T J , Millet D B , et al. 2016. Partitioning N<sub>2</sub>O Emissions within the US Corn Belt using an Inverse Modeling Approach [J]. Global Biogeochemical Cycles 30(8):1192–1205
- 程巳阳,安兴琴,周凌晞,等.2016.本底站和城区站CO浓度变化特 征和源贡献[J].中国环境科学,36(10):2930-2937
- Ciais P , Paris J D , Marland G , et al. 2010a. The European carbon balance. Part 1: fossil fuel emissions [J]. Global Change Biology , 16(5):1395–1408
- Ciais P , Rayner P , Chevallier F , et al. 2010b. Atmospheric inversions for estimating CO<sub>2</sub> , fluxes: methods and perspectives [M]. Springer Netherlands
- Cook S A. 2013. Inventory of U.S. Greenhouse Gas Emissions and Sinks: 1990–2008 [J]. Federal Register , 33(5) : 273-279
- 刁一伟,黄建平,刘诚,等.2015.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,39(5):849-860
- Dudhia J. 1989. Numerical study of convection observed during the winter monsoon experiment using a mesoscale two-dimensional model [J]. Journal of the Atmospheric Sciences , 46( 46) : 3077-3107
- European Commission. 2009. Joint Research Centre/Netherlands Environmental Assessment Agency , Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) , release version 4.0
- Gloor M , Bakwin P , Hurst D , et al. 2001. What is the footprint of a tall tower? [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres , 106 ( D16) : 17831–17840
- Grell G A , Schmitz P R , Mckeen S A , et al. 2005. Fully coupled

'online' chemistry within the WRF model [J]. Atmospheric Environment , 39( 37) : 6957-6975

- Gurney K R , Mendoza D L , Zhou Y , et al. 2009. The Vulcan project: High resolution fossil fuel combustion CO<sub>2</sub> emissions fluxes for the United States [J]. Environmental Science & Technology , 43(14): 5535-5541
- Guha T , Ghosh P. 2010. Diurnal variation of atmospheric  $\rm CO_2$ concentration and  $\delta 13C$  in an urban atmosphere during winter-role of the Nocturnal Boundary Layer [J]. Journal of Atmospheric Chemistry , 65(1): 1–12
- Giglio L , Randerson J T , Werf G R V D. 2013. Analysis of daily , monthly , and annual burned area using the fourth-generation global fire emissions database (GFED4) [J]. Journal of Geophysical Research Biogeosciences , 118(1): 317–328
- Hong S Y , Dudhia J , Chen S H. 2004. A revised approach to ice microphysical processes for the bulk parameterization of clouds and precipitation [J]. Monthly Weather Review , 132(1): 103–120
- Hong S Y , Noh Y , Dudhia J. 2006. A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes [J]. Monthly Weather Review , 134(9) : 2318–2341
- Hu L , Millet D B , Baasandorj M , et al. 2015. Isoprene emissions and impacts over an ecological transition region in the U.S. Upper Midwest inferred from tall tower measurements [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres , 120: 3553–3571
- Iacono M J , Delamere J S , Mlawer E J , et al. 2008. Radiative forcing by long-lived greenhouse gases: Calculations with the AER radiative transfer models [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres , 113(D13): 1395–1400
- IPCC. 2013. Climate Change 2013: the physical science basis, IPCC Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [M]. Cambridge University Press , Cambridge.
- Kain J S. 2004. The Kain Fritsch Convective Parameterization: An Update. [J]. Journal of Applied Meteorology , 43(1): 170–181
- Kaminski T , Rayner P J , Heimann M , et al. 2001. On aggregation errors in atmospheric transport inversions [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres , 106(D5): 4703-4715
- Kort E A , Angevine W M , Duren R , et al. 2013. Surface observations for monitoring urban fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions: Minimum site location requirements for the Los Angeles megacity [J]. Journal of Geophysical Research , 118(3): 1577–1584
- Lal R , Augustin B. 2010. Carbon Sequestration in Urban Ecosystems [M]. Springer Netherlands
- Lin J C , Gerbig C , Wofsy S C , et al. 2003. 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 , 108 (4493) : 1211–1222
- Mallia D V , Lin J C , Urbanski S , et al. 2015. Impacts of upwind wildfire emissions on CO , CO<sub>2</sub> and  $PM_{2.5}$  , concentrations in Salt Lake City , Utah [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres , 120 (1): 147–166

- Mckain K , Stephens B B. 2012. Assessment of ground-based atmospheric observations for verification of greenhouse gas emissions from an urban region [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America , 109(22): 8423-8428
- Moore J , Jacobson A D. 2015. Seasonally varying contributions to urban  $CO_2$  in the Chicago , Illinois , USA region: Insights from a high-resolution  $CO_2$  concentration and  $\delta 13C$  record [J]. Burlington Magazine , 3(1109):000052
- Mu M , Randerson J T , Van d W G R , et al. 2011. Daily and 3 hourly variability in global fire emissions and consequences for atmospheric model predictions of carbon monoxide [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres , 116( D24) : 191–200
- Pang J , Wen X , Sun X. 2016. Mixing ratio and carbon isotopic composition investigation of atmospheric CO<sub>2</sub> in Beijing , China. [J]. Science of the Total Environment , 539: 322–330
- Pataki D , Alig R , Fung A , et al. 2006. Urban ecosystems and the North American carbon cycle [J]. Global Change Biology , 12 (11) : 2092-2102
- Pataki D E , Bowling D R , Ehleringer J R. 2003. Seasonal cycle of carbon dioxide and its isotopic composition in an urban atmosphere: Anthropogenic and biogenic effects [J]. Journal of Geophysical Research , 108( 108) : 3047–3049
- Peters W , Jacobson A R , Sweeney C , et al. 2007. 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 , 104(48) : 18925–18930
- Piao S L , Fang J Y , Ciais P , et al. 2009. The carbon balance of terrestrial ecosystems in China [J]. Nature , 458 (7241): 1009–1013
- Pillai D , Gerbig C , Kretschmer R , et al. 2012. 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 , 12(1) : 1267–1298
- Porfirio L L , Steffen W , Barrett D J. 2010. The net ecosystem carbon exchange of human-modified environments in the Australian Capital Region [J]. Regional Environmental Change , 10(1): 1–12
- Potosnak M J , Wofsy S C , Denning A S , et al. 1999.Influence of biotic exchange and combustion sources on atmospheric CO<sub>2</sub> , concentrations in New England from observations at a forest flux tower [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres , 104 (D8):9561-9569
- Potter C S , Randerson J T , Field C B , et al. 1993. Terrestrial ecosystem production: A process model based on global satellite and surface data [J]. Global Biogeochemical Cycles , 7(4):811-841
- Rypdal K , Zhang L C. 2000. Estimating of uncertainties in green-house gas emission data [R]. Report. Statistics Norway , Oslo
- Satterthwaite D. 2008. Cities' contribution to global warming: Notes on the allocation of greenhouse gas emissions [J]. Environment and Urbanization , 20(2): 539-550
- Shen S , Yang D , Xiao W , et al. 2014. Constraining anthropogenic  $CH_4$ emissions in Nanjing and the Yangtze RiverDelta , China , using atmospheric  $CO_2$  and  $CH_4$  mixing ratios [J]. Advances in

Atmospheric Sciences, 31(6): 1343-1352

- Skamarock W C , Klemp J B. 2008. A time-split nonhydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications [J]. Journal of Computational Physics , 227(7): 3465-3485
- Song J , Bódis J , Puskas J E. 2013. WRF Simulations of the Urban Circulation in the Salt Lake City Area for  $CO_2$  Modeling [J]. Journal of Applied Meteorology & Climatology , 52(52):323-340
- Staufer J , Broquet G , Bréon F M , et al. 2016. The first 1-year-long estimate of the Paris region fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions based on atmospheric inversion [J]. Atmospheric Chemistry and Physics , 16 (22):1-34
- Su Y K , Millet D B , Hu L , et al. 2013. Constraints on carbon monoxide emissions based on tall tower measurements in the U.S. Upper Midwest [J]. Environmental Science & Technology , 47 (15): 8316–52924
- Van Amstel A R , Olivier J G J , Ruyssenaars P G. 1999. Monitoring of greenhouse gases in the Netherlands: Uncertainty and Priorities for improvement [C]//Proceedings of a National Workshop held in Bilthoven , the Netherlands. 1.
- Wheeler S M. 2008. State and municipal climate change plans: The First Generation [J]. Journal of the American Planning Association , 74 (4):481-496
- 王祥荣,樊正球,谢玉静,等. 2016. 城市群生态安全保障关键技术 研究与集成示范一以长三角城市群为例[J]. 生态学报,36 (22):7114-7118
- Wen X F , Meng Y , Zhang X Y , et al. 2013. Evaluating calibration strategies for isotope ratio infrared spectroscopy for atmospheric <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> / <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> measurement [J]. Atmospheric Measurement Techniques , 6(1) : 795-823
- Wiedinmyer C , Akagi S K , Yokelson R J , et al. 2010. The fire inventory from NCAR (FINN) – a high resolutionglobal model to estimate the emissions from open burning [J]. Geoscientific Model Development Discussions , 3(4): 625-641
- Wunch D , Wennberg P O , Toon G C , et al. 2009. Emissions of greenhouse gases from a North American megacity [J]. Geophysical Research Letters , 36(15) : 139–156
- 徐家平,李旭辉,肖薇,等 2016. 青奥会期间基于 δ<sup>13</sup> C 观测的大气 CO,来源解析[J]. 环境科学, 37(12): 4514-4523
- Xu J , Lee X , Xiao W , et al. 2016. Interpreting the <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C ratio of carbon dioxide in an urban airshed in the Yangtze River Delta , China [J]. Atmospheric Chemistry & Physics , 17(5): 3385–3399
- 于贵瑞,王秋凤,朱先进.2011.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,30(1):103-113
- Zhang H F , Chen B Z , Laan-Luijkx I T , et al. 2014. Net terrestrial CO<sub>2</sub> exchange over China during 2001—2010 estimated with an ensemble data assimilation system for atmospheric CO<sub>2</sub> [J]. Journal of Geophysical Research , 119(6): 3500–3515
- Zhao C , Andrews A E , Bianco L , et al. 2009. Atmospheric inverse estimates of methane emissions from Central California [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres , 114( D16) : 4723-4734
- 周艳,黄贤金,徐国良,等.2016.长三角城市土地扩张与人口增长耦 合态势及其驱动机制[J].地理研究,35(2):313-324