

目次

气候变化对中国夏季臭氧影响 胡安琪, 谢晓栋, 龚康佳, 侯宇晖, 胡建林 (1801)
基于 EOF 分解和 KZ 滤波的 2019 ~ 2021 年中国臭氧时空变化及驱动因素分析 王浩琪, 张裕芬, 罗忠伟, 王艳阳, 戴启立, 毕晓辉, 吴建会, 冯银厂 (1811)
华北工业城市夏季大气臭氧生成机制及减排策略 郑镇森, 窦建平, 张国涛, 李丽明, 徐勃, 杨文, 白志鹏 (1821)
2015 ~ 2020 年中国城市 PM_{2.5}-O₃ 复合污染时空演变特征 牛笑笑, 钟艳梅, 杨璐, 易嘉慧, 慕航, 吴倩, 洪松, 何超 (1830)
2015 ~ 2021 年京津冀及周边地区 PM_{2.5} 和臭氧复合污染时空特征分析 宋小涵, 燕丽, 刘伟, 贺晋瑜, 王亚晨, 黄同林, 李园园, 陈敏, 孟静静, 侯战方 (1841)
2000 ~ 2020 年中国典型经济区 PM_{2.5} 时空变化及其与植被景观格局的关系 徐勇, 李欣怡, 黄雯婷, 郭振东, 盘钰春, 郑志威, 戴强玉 (1852)
北京市核心区冬春季大气离子沉降量特征及来源解析 赵宇, 李贝贝, 黄玉虎, 梁静, 杨洪玲, 秦建平, 朱玲 (1865)
南京近郊农田大气颗粒物及金属干沉降输入特征 刘翠英, 靳浩, 樊建凌 (1873)
西安冬季 PM_{2.5} 中不同极性水溶性有机物的污染特征及氧化潜势 罗玉, 黄沙沙, 张甜, 孙健, 沈振兴 (1882)
机动车源和民用燃料源颗粒物中有机碳和元素碳的排放特征 王红磊, 刘思晗, 孙杰娟, 刘煥武, 赵天良, 裴宇僊, 可玥, 武自豪, 刘诗云 (1890)
伊犁河谷核心区春季 PM_{2.5} 组分特征及来源解析 谷超, 徐涛, 马超, 伊布提哈尔·加帕尔, 郭丽瑶, 李新琪, 杨文 (1899)
基于高空间分辨率的郑州市城镇居民 PM_{2.5} 暴露浓度与健康风险变化评估 李媛, 徐艺斐, 袁明浩, 苏方成, 王申博, 王克, 张瑞芹 (1911)
基于多源数据融合的河南省建材行业排放清单 刘晓, 胡京南, 王红梅, 杨丽, 张皓 (1924)
开封市城区冬季大气挥发性有机物污染特征及来源解析 施雨其, 郑凯允, 丁玮婷, 刘金平, 陈洪光, 高光, 王玲玲, 王楠, 马双良, 郑瑶, 谢绍东 (1933)
2020 年和 2021 年南京城区臭氧生成敏感性和 VOCs 来源变化分析 陆晓波, 王鸣, 丁峰, 喻义勇, 张哲海, 胡崑 (1943)
北京市城区夏季大气 VOCs 变化特征及臭氧生成潜势 张蕊, 孙雪松, 王裕, 王飞, 罗志云 (1954)
青岛市臭氧污染与非污染期间 VOCs 化学特征及来源解析 贾智海, 顾瑶, 孔翠丽, 宋江邦, 孟赫, 石来元, 吴建会, 刘保双 (1962)
基于总过氧自由基观测研究合肥市西郊夏季 O₃ 生成特征 俞辉, 韦娜娜, 徐学哲, 刘芊芊, 姚易辰, 赵卫雄, 张为俊 (1974)
“大气十条”政策的节能降碳效果评估与创新中介效应 李少林, 王齐齐 (1985)
北京市减排降碳协同控制情景模拟和效应评估 俞珊, 张双, 张增杰, 翟培芝, 刘桐珊 (1998)
基于不同排放清单的长三角人为 CO₂ 排放模拟 马心怡, 黄文晶, 胡凝, 肖薇, 胡诚, 张弥, 曹畅, 赵佳玉 (2009)
武汉汉江水源地水质变化趋势及风险分析 卓海华, 姜保锋, 徐杰, 陈洁, 陈杰, 兰秀薇, 范文重, 欧阳雪姣, 兰静 (2022)
长江武汉段水源地典型抗生素及抗性基因污染特征与生态风险评价 李柏林, 张贺, 王俊, 沙雪妮, 陈晓飞, 卓海华 (2032)
陕北矿区典型河流多环芳烃的赋存特征、来源及毒性风险分析 吴喜军, 董颖, 赵健, 刘辉, 张亚宁 (2040)
典型湖泊有机聚集体时空特征及驱动因子 谢贵娟, 龚伊, 朱富成, 刘昌利, 卢宝伟, 邓辉, 汤祥明 (2052)
桂林市不同功能型公园水体微塑料的分布特征及风险评估 李沛钊, 吴莉, 黄菲菲, 林才霞, 舒小华, 张倩 (2062)
长江流域浮游植物群落的环境驱动及生态评价 张静, 胡愈焯, 胡圣, 黄杰 (2072)
环境异质性对三峡库区支流香溪河附石硅藻群落的影响及驱动作用 纪璐璐, 赵璐, 欧阳添, 杨宋琪, 郑保海, 杜雨欣, 李玉鑫, 李佳欣, 施军琼, 吴忠兴 (2083)
武汉市 3 种类型湖泊浮游植物群落特点及关键影响因素 张浩坤, 闵奋力, 崔慧荣, 彭雪, 张心怡, 张淑娟, 李竹栖, 葛芳杰, 张璐, 吴振斌, 刘碧云 (2093)
重金属污染对不同生境中微生物群落结构的影响 何一凡, 肖新宗, 王佳文 (2103)
亳清河水体细菌群落的结构和分布特征 王森, 陈建文, 张红, 李君剑 (2113)
微塑料暴露对小棒指软珊瑚 (*Sinularia microclavata*) 共附生细菌群落结构和功能的影响 刘敏, 车文学, 曾映旭, 边伟杰, 吕淑果, 穆军 (2122)
上海市从源头到龙头的饮用水新型污染物分布特征及健康风险评价 严棋 (2136)
铝改性生物炭对水体低浓度氟的吸附特性 刘艳芳, 高玮, 刘蕊, 尹思婕, 张妙雨, 刘晓帅, 李再兴 (2147)
典型雌激素在微塑料上的吸附特征及位点能量分布 刘姜艳, 郑密密, 胡嘉梧, 柳玉荣, 贺德春, 潘杰 (2158)
面向工业园区废水臭氧氧化深度处理性能评价的模型污染物选择与评估 辛勃, 单超, 吕路 (2168)
基于地理探测器和多源数据的耕地土壤重金属来源驱动因子及其交互作用识别 张宏泽, 崔文刚, 刘绥华, 崔瀚文, 黄月美 (2177)
基于 APCS-MLR 和 PMF 模型的煤矸山周边耕地土壤重金属污染特征及源解析 马杰, 沈智杰, 张萍萍, 刘萍, 刘今朝, 孙静, 王玲灵 (2192)
基于蒙特卡罗模拟的铅锌冶炼厂周边农田土壤重金属健康风险评估 黄剑波, 姜登登, 温冰, 王磊, 石佳奇, 周艳 (2204)
基于 BP 神经网络预测北京市加油站周边土壤多环芳烃含量 马赛炎, 魏海英, 马瑾, 刘奇缘, 吴颐杭, 屈雅静, 田雨欣, 赵文浩 (2215)
石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素时空分布及其风险评估 赵鑫宇, 陈慧, 赵波, 宋圆梦, 卢梦淇, 崔建升, 张璐璐, 李双江 (2223)
典型黑色岩系地质高背景区土壤和农产品重金属富集特征与污染风险 邓帅, 段佳辉, 宁墨兔, 谭林, 蒲刚, 陈际行, 齐小兵, 蒋尚智, 谢桃园, 刘意章 (2234)
岩溶区不同母质土壤 Cd 地球化学特征及玉米籽实 Cd 含量预测 戴亮亮, 徐宏根, 巩浩, 彭志刚, 肖凯琦, 吴欢欢, 许青阳, 郭军, 汤媛媛, 张俊 (2243)
龙岩市不同利用类型土壤及农作物 Pb、Cd 和 As 污染风险与贡献分析 王蕊, 陈楠, 张二喜 (2252)
小麦籽粒镉含量影响因素 Meta 分析和决策树分析 刘娜, 张少斌, 郭欣宇, 宁瑞艳 (2265)
黄土高原次生林演替过程土壤有机碳库及其化学组成响应特征 刘涵宇, 刘颖异, 张琦, 封伦, 高起乾, 任成杰, 韩新辉 (2275)
短期氮磷添加对祁连山亚高山草地土壤呼吸组分的影响 江原, 甘小玲, 曹丰丰, 赵传燕, 李伟斌 (2283)
黄河源区斑块退化高寒草甸土壤微生物多样性对长期封育的响应 杨鹏年, 李希来, 李成一, 段成伟 (2293)
不同海拔鳧箭锦鸡儿根际和非根际土壤细菌群落多样性及 PICRUSt 功能预测 李媛媛, 徐婷婷, 艾喆, 魏卢璐, 马飞 (2304)
模拟酸雨及氮沉降对马尾松林土壤细菌群落结构及其多样性的影响 王楠, 钱少郁, 潘小承, 陈一磊, 白尚斌, 徐飞 (2315)
磷石膏和碱蓬对盐渍化土壤水盐及细菌群落结构的影响 刘月, 杨树青, 张万峰, 姜帅 (2325)
磷渣与化肥配施对稻田土壤微生物群落组成及多样性的影响 耿和田, 王旭东, 石思博, 叶正钱, 周文晶 (2338)
增氧对不同秸秆还田稻田田面水养分动态及温室气体排放的影响 胡锦涛, 薛利红, 钱聪, 薛利祥, 曹国帅 (2348)
外源褪黑素对胁迫下水稻幼苗生长和抗氧化系统的影响 储玉檀, 李颜, 黄益宗, 保琼莉, 孙红羽, 黄永春 (2356)
面向 2035 的节能与新能源汽车全生命周期碳排放预测评价 付佩, 兰利波, 陈颖, 郝卓, 邢云翔, 蔡旭, 张春梅, 陈轶嵩 (2365)
农田土壤微塑料分布、来源和行为特征 薄录吉, 李冰, 张凯, 马荣辉, 李彦, 王艳芹, 孙斌, 刘月岩 (2375)
农田土壤除草剂污染的修复技术研究进展 胡芳雨, 安婧, 王宝玉, 徐明恺, 张惠文, 魏树和 (2384)
我国黑土地农田土壤除草剂残留特征研究及展望 李睿, 吴秋梅, 赵归梅, 胡文友, 田康, 黄标, 吴祥为, 刘峰, 赵玉国, 赵永存 (2395)
《环境科学》征订启事(1910) 《环境科学》征稿简则(1984) 信息(2167, 2191, 2324)

基于不同排放清单的长三角人为 CO₂ 排放模拟

马心怡¹, 黄文晶¹, 胡凝^{1,2*}, 肖薇^{1,2}, 胡诚³, 张弥¹, 曹畅¹, 赵佳玉¹

(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. 南京信息工程大学江苏省农业气象重点实验室, 南京 210044; 3. 南京林业大学生物与环境学院, 南京 210018)

摘要: 目前基于排放清单估算的区域和城市尺度上的人为 CO₂ 排放不确定性较大. 为了我国实现碳达峰和碳中和的目标, 亟需对我国的区域尺度, 特别是大城市群的人为 CO₂ 排放进行准确估算. 分别利用两种先验人为 CO₂ 排放数据 (EDGAR v6.0 清单和 EDGAR v6.0 联合 GCG v1.0 的改进清单) 作为输入数据, 采用 WRF-STILT 大气传输模型模拟长三角地区 2017 年 12 月至 2018 年 2 月大气 CO₂ 摩尔分数, 再以安徽全椒高塔观测的大气 CO₂ 摩尔分数作为参考值, 通过贝叶斯反演方法得到的比例因子改进了模拟结果, 并实现了长三角人为 CO₂ 排放通量的估算. 结果表明: ①在冬季, 相对于基于 EDGAR v6.0 模拟的大气 CO₂ 摩尔分数而言, 基于改进清单模拟的大气 CO₂ 摩尔分数与观测值更为一致; ②模拟的大气 CO₂ 摩尔分数在夜间高于观测值, 白天则相反, 主要因为排放清单的 CO₂ 排放数据不能表征人为排放的日变化特征, 以及夜间大气边界层高度偏低导致模拟高估了观测站点附近排放高度较高点源的贡献; ③EDGAR 中对观测站点浓度贡献较大网格点的排放误差将会很大程度上影响浓度模拟效果, 表明 EDGAR 在排放的空间分配上的不确定性是影响模型模拟能力的主要原因; ④基于 EDGAR 和改进清单估算的 2017 年 12 月至 2018 年 2 月长三角后验人为 CO₂ 排放通量约为 $(0.184 \pm 0.006) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $(0.183 \pm 0.007) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$. 研究认为应选择时间与空间分辨率更高、排放分配更准确的清单作为先验排放数据, 才能对区域的人为 CO₂ 排放有更准确的估算.

关键词: 人为 CO₂ 排放; 排放清单; WRF-STILT 模型; 大气 CO₂ 摩尔分数; 长三角地区

中图分类号: X16 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2023)04-2009-13 DOI: 10.13227/j.hjxx.202205281

Simulation of Anthropogenic CO₂ Emissions in the Yangtze River Delta Based on Different Emission Inventories

MA Xin-yi¹, HUANG Wen-jing¹, HU Ning^{1,2*}, XIAO Wei^{1,2}, HU Cheng³, ZHANG Mi¹, CAO Chang¹, ZHAO Jia-yu¹

(1. Center on Atmospheric Environment, International Joint Laboratory on Climate and Environment Change, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2. Jiangsu Key Laboratory of Agricultural Meteorology, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 3. College of Biology and the Environment, Nanjing Forestry University, Nanjing 210018, China)

Abstract: Nowadays, great uncertainty still exists on the urban- and regional-scale anthropogenic CO₂ emission estimation based on emission inventories. In order to achieve the carbon peaking and neutrality targets for China, it is urgent to accurately estimate anthropogenic CO₂ emissions at regional scales, especially in large urban agglomerations. Using two inventories (EDGAR v6.0 inventory and a modified inventory combining EDGAR v6.0 with GCG v1.0) as prior anthropogenic CO₂ emission datasets and taking them as input data respectively, this study utilized the WRF-STILT atmospheric transport model to simulate atmospheric CO₂ concentration in the Yangtze River Delta region from December 2017 to February 2018. The simulated atmospheric CO₂ concentrations were further improved by referencing atmospheric CO₂ concentration observation at a tall tower in Quanjiao County of Anhui Province and using the scaling factors obtained from the Bayesian inversion method. An estimation of anthropogenic CO₂ emission flux in the Yangtze River Delta region was finally accomplished. The results indicated that: ① in winter, in comparison to the atmospheric CO₂ concentration simulated based on EDGAR v6.0, the atmospheric CO₂ concentration simulated based on the modified inventory was more consistent with observed values. ② The simulated atmospheric CO₂ concentration was higher than observation at night and lower than observation during the daytime. The CO₂ emission data of emission inventories could not fully reflect the diurnal variation in anthropogenic emissions, and the overestimation, caused by the simulated low-atmospheric boundary layer height at night, of the contribution from point sources with higher emission height near the observation station were the main reasons. ③ The simulation performance on atmospheric CO₂ concentration was greatly affected by the emission bias of the EDGAR grid points that significantly contributed to concentrations of the observation station, and this indicated that the uncertainty in the spatial distribution in EDGAR emission was the main factor influencing the simulation accuracy. ④ The posterior anthropogenic CO₂ emission flux in the Yangtze River Delta from December 2017 to February 2018 was around $(0.184 \pm 0.006) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ and $(0.183 \pm 0.007) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ based on EDGAR and the modified inventory, respectively. It is suggested that the inventories with higher temporal and spatial resolutions and more accurate spatial emission distribution should be selected as the prior emissions to obtain a more accurate estimation of the regional anthropogenic CO₂ emissions.

Key words: anthropogenic CO₂ emissions; emission inventory; WRF-STILT model; atmospheric CO₂ concentration; Yangtze River Delta

区域尺度人为温室气体排放的准确估算, 是制定节能减排政策和实现“双碳”目标的关键. 截至 2022 年 4 月, 大气中 CO₂ 摩尔分数平均值为 $418.39 \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$ ^[1], 达到了过去 200 万年里前所未有的程度. 人为温室气体排放是导致全球变暖的主要原因^[2], 人为 CO₂ 排放源主要来自化石燃料燃烧, 占

比约为 $64\% \pm 15\%$, 过去 10 年增加了 $86\% \pm 14\%$

收稿日期: 2022-05-25; 修订日期: 2022-07-19

基金项目: 国家重点研发计划项目(2020YFA0607501); 江苏省杰出青年基金项目(BK20220055); 江苏省自然科学基金项目(BK20180796)

作者简介: 马心怡(1998~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为温室气体排放观测与反演, E-mail: maxinyi27@163.com

* 通信作者, E-mail: huning@nuist.edu.cn

的贡献^[3]. 人为 CO₂ 排放量受到经济发展、能源消费结构、能源强度和人口密度的影响^[4,5], 但是不同国家和地区上述因素却存在巨大差异, 这就使得准确估算区域尺度人为 CO₂ 排放并厘清其主控因素变得复杂和困难^[6].

估算人为 CO₂ 排放的常用方法是清单方法(即“自下而上”法). 该方法需要不同排放源的活动数据(即有关人类活动发生程度的信息, 如土地利用面积、能源产量或消耗量等)及其对应的排放因子(即量化单位活动的排放量或清除量的系数)生成排放清单来直接估算排放量. 该方法的主要问题是随着空间尺度变小, 其估算结果的不确定性变大. 全球尺度上, 人为 CO₂ 排放估计值的不确定性在 10% 以内; 国家尺度上, 一些发达国家排放估算结果的不确定性通常低于 10%^[7], 但是发展中国家则甚至超过 50%^[8-10]. 区域和城市尺度上, 估算误差则更大^[11-13], 例如我国区域尺度排放清单的不确定性可达到 40% 以上^[14]. 由此可见, 需要针对区域尺度人为 CO₂ 排放清单开展研究, 降低其不确定性.

区域尺度上排放清单的不确定性主要体现在排放量估算和排放的空间分布存在偏差. 一方面, 各类排放清单对人为温室气体排放的估算结果存在差异, 主要原因是不同排放清单的活动数据和排放因子差异较大^[15,16]. 另一方面, 由于受排放量估算不确定性和排放空间分配不确定性等影响, 各类网格化排放清单空间分布的差异也很大^[10,17-19]. 一些清单产品虽然空间分辨率较高, 例如人为 CO₂ 开放数据清单(open-source data inventory for anthropogenic CO₂, ODIAC)的空间分辨率为 1 km × 1 km, 却由于缺乏线源数据, 低估了公路、高铁和航海等交通排放^[10,20]; 而且主要利用卫星图像的夜间灯光数据来分配总排放量, 将更多的排放量分配到夜间有强光的城市地区, 导致一些农村、郊区和部分中国西部地区的排放被忽视^[21]. 需要指出的是, 当前主流的排放清单产品全球大气研究排放数据库(emissions database for global atmospheric research, EDGAR)受到数据库更新时间、排放点源的空间分配和排放量分配方案等因素的影响, 在中国、波兰和阿根廷的研究中都发现区域尺度排放存在估算结果有偏差、网格分配的排放通量不合理和排放热点空间定位不准确等问题^[19,22,23]. 由此可见, 准确估算区域总排放量, 并在空间上合理分配排放量是降低区域尺度排放清单不确定性的关键所在.

人为 CO₂ 排放估算的第二类方法是大气温室气体浓度观测结合先验排放清单和大气传输模型的

反演方法(即“自上而下”法). 该方法被认为是一种客观的方法, 研究表明此方法能够很好地核算区域内的人为温室气体排放量^[24-27]. 例如常用的大气传输模型——拉格朗日大气传输模型(coupled weather research and forecasting-stochastic time-inverted Lagrangian transport model, WRF-STILT), 其模型本身、浓度观测值和先验清单等都存在不确定性, 其中先验排放清单的不确定性是影响模型模拟能力的最主要因素. 当尽可能降低先验清单的误差时, 会大幅度降低大气反演方法的不确定性^[28,29]. 因此, 针对目前区域尺度上排放清单在估算总量和空间分布两方面的不确定性, 本研究将采用该“自上而下”法来评价排放清单产品的排放量估算结果, 诊断排放空间分布的合理性.

本研究选取长三角地区作为研究区域, 基于“自下而上”法和“自上而下”法估算长三角冬季人为 CO₂ 排放通量. 长三角地区(包括上海市、江苏省、浙江省和安徽省)国土面积仅占中国国土面积的 4%, 国内生产总值却占全国的 24%, 人口占全国总人口的 16%, 是我国人口最为集中、经济发展最活跃的区域^[30], 其 CO₂ 总排放量在中国三大城市群(京津冀、长三角和珠三角)中名列前茅. 本研究的目标是: ①研究大气边界层高度和排放源日变化对大气 CO₂ 摩尔分数模拟值的影响; ②探究排放清单中排放的空间分配偏差对大气 CO₂ 摩尔分数模拟的影响; ③对比“自下而上”法和“自上而下”法估算长三角人为 CO₂ 排放通量的结果.

1 材料与方法

本研究涉及两类方法, 第一类是通过“自下而上”法编制的排放清单直接得到人为 CO₂ 排放通量(详见 1.2.1 部分); 第二类是将排放清单的先验 CO₂ 通量数据输入 WRF-STILT 模型, 模拟大气 CO₂ 摩尔分数的增加量, 加上背景值浓度得到大气 CO₂ 摩尔分数模拟值; 再使用比例因子贝叶斯反演方法将高塔的大气 CO₂ 观测值作为参考值来优化模型模拟结果, 同时优化先验清单, 得到后验 CO₂ 排放^[31-33], 即“自上而下”法.

1.1 大气 CO₂ 摩尔分数观测和辅助数据

1.1.1 大气 CO₂ 摩尔分数观测

大气 CO₂ 摩尔分数选择长三角中心位置、且远离城市的 70 m 高塔上开展观测(图 1). 观测站点位于安徽省滁州市全椒县武岗镇官渡村(31°58'N, 118°15'E, 海拔高度 10 m), 距离安徽省与江苏省的省界 9.6 km, 下垫面类型主要是大片农田和鱼塘. 大气 CO₂ 摩尔分数观测系统基于波长扫描光腔衰

荡光谱技术的 CO₂/CH₄/H₂O 气体分析仪(型号 G1301, Picarro Inc., Sunnyvale, CA, USA)开展观测,进气口安装在 70 m 高塔的塔顶. 该仪器的采样频率为 1 Hz; 基于 5 s 平均值,短期测量精度为 0.15 μmol·mol⁻¹. 为了确保 CO₂ 长期测量的观测精

度和准度,采用两个摩尔分数的 CO₂ 标准气体(摩尔分数:490 μmol·mol⁻¹ 或 491 μmol·mol⁻¹ 和 385 μmol·mol⁻¹,中国计量科学研究所制的国家一级标准气体)定期对气体分析仪进行校准^[34]. 观测时间为 2017 年 12 月至 2018 年 2 月,代表整个冬季.

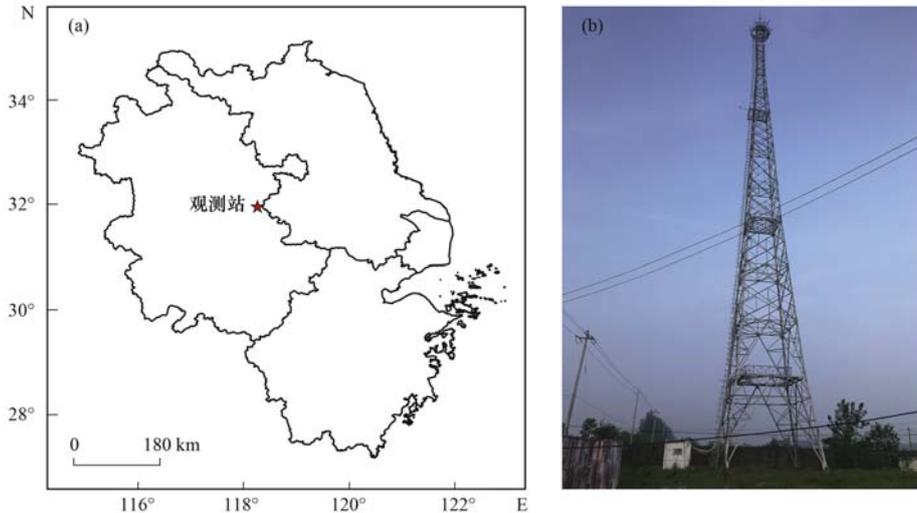


图1 观测站点位置示意和高塔

Fig. 1 Location of the observation station and the tall tower

1.1.2 大气 CO₂ 摩尔分数背景值

大气 CO₂ 摩尔分数背景值选用瓦里关大气本底站(WLG, 36°17'N, 100°53'E, 海拔高度3 810 m)和乌兰乌勒大气本底站(UUM, 44°26'N, 111°5'E, 海拔高度 992 m)的观测数据,将 WLG 站每日和 UUM 站每周的大气 CO₂ 摩尔分数观测数据通过线性插值法插补成小时尺度的数据,然后将两个本地站的小时尺度数据计算算术平均值,作为本研究区域大气 CO₂ 摩尔分数的背景值.

1.1.3 风向观测

风向观测数据来自位于高塔上同一高度处的一套三维超声风速仪(型号 CSAT3, Campbell Scientific, Inc., Logan, UT, USA).

1.2 CO₂ 的人为排放和自然排放

1.2.1 人为 CO₂ 排放

本文采用的人为 CO₂ 排放数据来自 3 种排放清单:全球大气研究排放数据库 EDGAR v6.0 版本(https://edgar.jrc.ec.europa.eu/dataset_ghg60)、全球能源基础设施碳排放数据库 GID(global energy infrastructure emissions database, <http://gidmodel.org.cn/>)和 ODIAC. EDGAR 清单是一种全球性的 CO₂ 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)的能源平衡统计数据和政府间气候变化专门委员会(IPCC)默认值的排放因子(EFs),其点源排放来自一个追踪 CO₂ 的全球数据库“碳监测行动”数据库

(carbon monitoring for action, CARMA)^[35,36]. EDGAR v6.0 提供了 20 种人为 CO₂ 排放类别,包括制造业燃烧、电力行业和建筑能源等(表 1). EDGAR v6.0 版本为最新版本,提供了 2000~2018 年各月的人为 CO₂ 排放图,本文选取了 2017 年 12 月至 2018 年 2 月的人为 CO₂ 排放作为先验排放数据.

EDGAR v6.0 提供的先验 CO₂ 排放是月尺度的排放数据,而人为 CO₂ 排放类别中的道路运输排放和工厂排放等都有日变化,且白天与夜间的人为排放差异很大,先验 CO₂ 排放不能反映这些人为排放的日变化特征. 对此,EDGAR 按国家或地区为不同的 CO₂ 排放源设置了各自的日变化系数^[37],即为各个排放源 1 d 中的每个小时都设置了一个比例因子,以调整各个排放源的每小时排放通量. 中国地区的主要人为 CO₂ 排放源的日变化系数如图 2 所示,

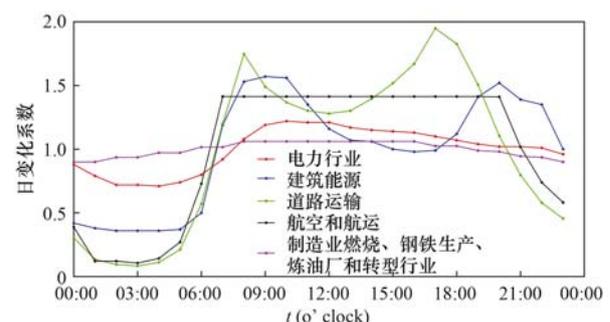


图2 中国地区内主要人为 CO₂ 排放源的日变化系数

Fig. 2 Diurnal scaling factors of major anthropogenic CO₂ emission sources in China

均呈现白天高于1,夜间低于1的趋势,其中道路排放的日变化最显著,系数在0.1~1.9之间变化。

基于多源数据流建立的全球高分辨率碳排放网格数据集(global carbon grid, GCG v1.0版)来源于清华大学开发的全球能源基础设施碳排放数据库GID. GCG v1.0的空间分辨率为 $0.1^\circ \times 0.1^\circ$,提供全球2019年6个人为排放源的 CO_2 空间分布图,包括电力、工业和住宅等(表1).其空间分布相对比较均匀,GCG v1.0的全球 CO_2 排放估计中约70%

表1 EDGAR与GCG清单的排放源类别的比较及对应情况

Table 1 Comparison and corresponding description of different emission source categories of EDGAR and GCG

排放清单	排放源类别						
	电力	工业	住宅	运输	航运	航空	其他(较小排放源)
GCG							
EDGAR	电力行业	制造业燃烧; 钢铁生产	建筑能源	道路运输	航运	航空爬升和下降; 航空巡航; 航空起降	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、管道和越野运输

ODIAC的能源统计数据来源于美国国家海洋和大气局 CO_2 信息分析中心(carbon dioxide information analysis center, CDIAC)和英国石油公司世界能源统计年鉴(BP statistical review of world energy),排放因子为政府间气候变化专门委员会(Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC)默认的排放因子,基于以上数据估算的排放量;而空间分布则是基于空间代理数据(例如:卫星夜间照明数据和CARMA数据库的点源数据).ODIAC全球人为 CO_2 排放分布图的空间分辨率为 $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$.ODIAC产品只有 CO_2 总排放的空间分布图,没有发布各个排放源的排放数据^[10,17].

1.2.2 自然 CO_2 排放

净生态系统 CO_2 交换和生物质燃烧 CO_2 排放数据来自Carbon Tracker全球大气 CO_2 模型估算的 CO_2 通量,时间分辨率为3h,空间分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$ ^[39].本研究使用线性内插的方法将时间分辨率转化为h,将 $1^\circ \times 1^\circ$ 的空间网格线性插值成 $0.1^\circ \times 0.1^\circ$.

1.3 模型反演 CO_2 排放

1.3.1 WRF-STILT模型

本文采用WRF-STILT模型模拟长三角地区的人为 CO_2 排放.首先通过WRF模型(3.8.1版本)模拟出气象场,为STILT模型提供空间气象数据.本文WRF模型选择的边界层、微物理过程和陆面过程等参数化方案如表2所示^[31,40],初始气象场和边界气象条件采用美国国家环境预测中心(National Centers for Environmental Prediction, NCEP)的FNL全球分析资料(final operational global analysis, <http://rda.ucar.edu/datasets/ds083.2>).为了让模拟

的位置都是相对准确的^[38].该清单产品中的点源数据、国家层面各部门活动和排放数据及其分布情况等信息每年定期更新,以提供最新的全球排放.有研究表明在排放点源的定位中GCG v1.0比EDGAR具有更高的准确度^[38].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的20种人为 CO_2 排放源中的9种(表1),还有11种排放量较小的 CO_2 排放源GCG v1.0没有考虑到,例如农业土壤等.

的气象场更精确,采用3个区域的3层嵌套、双向反馈的设置(图3);最外层区域包括华东地区和部分华中华北地区,空间分辨率为 $27 \text{ km} \times 27 \text{ km}$;中间层区域包括华东地区,空间分辨率为 $9 \text{ km} \times 9 \text{ km}$;最内层区域包括长三角区域,空间分辨率为 $3 \text{ km} \times 3 \text{ km}$.

表2 WRF模型中主要的参数化方案设置

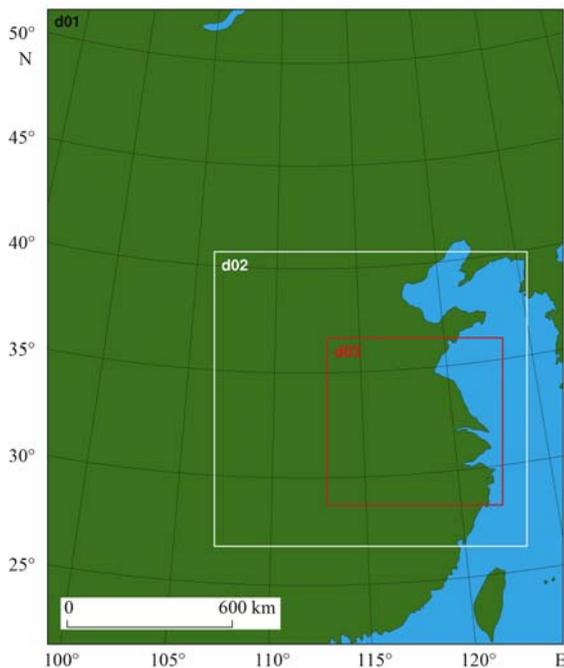
Table 2 Main parameterization options in the WRF model

参数化设置	所选择的方案
微物理过程	WSM3类简单冰方案
长波辐射	RRTM方案
短波辐射	Dudhia方案
近地面层	Monin-Obukhov参数化方案
陆面过程	Noah陆面过程方案
边界层	YSU方案
积云参数化	Kain-Fritsch(new Eta)方案(Domain1和Domain2)

本文运用的STILT模型是基于拉格朗日粒子随机游走理论的大气传输模型^[41],其原理是:在观测站点位置释放出大量粒子,通过计算粒子在研究区域内的数量及停留时间,模拟出在气象场驱动下各个网格点对观测站点 CO_2 摩尔分数的影响权重,将其定义为足迹权重(foot),公式如下:

$$\text{foot}(x_r, t_r | x_i, y_j, t_m) = \frac{m_{\text{air}}}{h\rho(x_i, y_j, t_m)} \times \frac{1}{N_{\text{tot}}} \sum_{p=1}^{N_{\text{tot}}} \Delta t_{p,m,i,j,k} \quad (1)$$

式中, i 和 j 表示某一格点, i 、 j 和 k 表示某一格点的空间区域, m 表示时间步长, r 表示受体(即观测站点), p 表示每一个粒子;foot为模拟过程中 t_m 时刻格点 (x_i, y_j) 处的 CO_2 通量对观测点 CO_2 摩尔分



黑色框内为最外层区域, 白色框内为第二层区域,
红色框内为最内层区域

图 3 WRF 模型设置的 3 个区域

Fig. 3 Three domain set by WRF model

数的影响; m_{air} 为干空气摩尔质量; h 为对下垫面有影响的大气层高度, 采用模型默认设定值——边界层高度的一半^[31]; ρ 为影响层高度以下空气的密度; N_{tot} 为释放的粒子数, 本文设定 $N_{\text{tot}} = 500$ ^[41]; $\Delta t_{p,m,i,j,k}$ 表示每一个粒子 (p) 随时间步长 (m) 在某一格点空间内 (i, j, k) 停留的总时间。

1.3.2 大气 CO₂ 摩尔分数模拟

一个研究区域内大气 CO₂ 摩尔分数模拟值由 3 部分组成: 大气 CO₂ 摩尔分数背景值; 人为化石燃料燃烧引起的 CO₂ 贡献值 (人为源); 植物生态系统净交换及生物质燃烧贡献值 (自然源)^[42] [式 (2)]. 本研究只关注冬季 CO₂ 排放, 冬季是非生长季节, 植物生态系统净交换和生物质燃烧贡献值很低且均为正值^[27,43]. CO₂ 贡献值可以由 CO₂ 通量与 WRF-STILT 模型模拟的足迹权重计算得到 [式 (3)].

$$\text{CO}_{2,\text{model}} = \text{CO}_{2,\text{bg}} + \Delta\text{CO}_2 \quad (2)$$

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

式中, ΔCO_2 为模拟过程中各类人为 CO₂ 排放源、生态系统净交换和生物质燃烧产生的 CO₂ 增加量之和, n 为对任一时刻模拟的 CO₂ 增加量有贡献的累积时间, i 为 n 小时中的任意一个小时, foot_i 为第 i 小时模型模拟出的足迹权重, $(\text{flux}_{\text{CO}_2})_i$ 为第 i 小时研究区域内的 CO₂ 通量 (包括人为 CO₂ 通量、生态系统净交换 CO₂ 通量和生物质燃烧 CO₂ 通量). 由

于 7 d 能够充分累积对观测站点大气 CO₂ 摩尔分数有影响的 CO₂ 来源的贡献, 因此本研究将模型中的 n 设为 168 h (7 d). 前人的研究通常将足迹权重大于 -4 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^[41,44~46].

1.3.3 比例因子贝叶斯反演

本研究用比例因子贝叶斯反演方法约束模拟的大气 CO₂ 摩尔分数和人为 CO₂ 排放通量. 首先, 挑选出人为 CO₂ 来源中排放量靠前的 4 个排放源, 其余人为排放源归为第 5 个类别, 自然排放源归为第 6 个类别. 然后, 逐月用观测的 CO₂ 增加量通过比例因子贝叶斯反演的方法对这六大类排放源所模拟的 CO₂ 增加量进行约束, 于是六类排放源就能分别得到一个比例因子. 最终, 用比例因子优化六大排放源各自的 CO₂ 排放, 获得优化后的大气 CO₂ 摩尔分数和人为 CO₂ 排放通量.

应用贝叶斯反演方法和正态分布假设, 最优的后验结果可以用最小化成本函数 $J(\Gamma)$ 表示^[47]

$$2J(\Gamma) = (y - K\Gamma)^T S_e^{-1} (y - K\Gamma) + (\Gamma - \Gamma_a)^T S_a^{-1} (\Gamma - \Gamma_a) \quad (4)$$

式中, $(y - K\Gamma)^T S_e^{-1} (y - K\Gamma)$ 为大气 CO₂ 摩尔分数模拟值与观测值的偏差, $(\Gamma - \Gamma_a)^T S_a^{-1} (\Gamma - \Gamma_a)$ 为先验通量与后验通量之间的偏差. y 为大气 CO₂ 摩尔分数观测值减去背景值所得的大气 CO₂ 摩尔分数增加值; K 为雅可比矩阵, 代表观测值对于各个贡献源的敏感性; Γ 为用于表征通量分布的比例因子; Γ_a 为 Γ 通量分布的先验估计, 通常被赋值为 1; S_e 为模拟值和观测值偏差的误差协方差矩阵; S_a 为先验通量与后验通量的误差协方差矩阵.

最小化 $J(\Gamma)$ 的方法就是使得 $\nabla_{\Gamma} J(\Gamma) = 0$, 即:

$$\Gamma_{\text{post}} = (K^T S_e^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} (K^T S_e^{-1} y + S_a^{-1} \Gamma_a) \quad (5)$$

其中构成 S_e 的观测误差和模型误差主要来自以下 4 个方面: WRF 设置的边界层高度 (10%)^[26,48]、STILT 模型的粒子后向轨迹偏差 (13%)^[31,45,49]、观测的大气 CO₂ 摩尔分数 (0.15 $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$)^[34] 和背景 CO₂ 摩尔分数 (0.63 $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$)^[50,51]. 构成 S_a 的先验误差在以往的研究中通常被设定为 100%^[52~54]. 而最终获得的后验比例因子 Γ_{post} 就可以将以上误差降至最低. 于是, 把 Γ_{post} 作为一个最优的比例因子应用到先验 CO₂ 排放和大气 CO₂ 摩尔分数模拟值中, 以达到优化的效果.

1.4 两种排放清单的模拟方案

为了对比分析和评价不同先验排放清单对长三角人为 CO₂ 排放通量估算结果和空间分布的差异

和合理性,本研究采用了两种人为 CO₂ 排放数据:第一种模拟方案是使用 EDGARv6.0 清单的人为 CO₂ 排放信息作为先验的人为排放数据.第二种模拟方案是将 GCG v1.0 的 6 种人为排放源与 EDGAR v6.0 的部分人为排放源(未被 GCG 考虑的 11 种人为排放源)的 CO₂ 排放信息相结合,作为改进清单的先验人为 CO₂ 排放数据(表 1),其中,GCG v1.0 的 6 种人为 CO₂ 源的排放量占改进清单 CO₂ 总排放量的 85.5%,EDGAR v6.0 的 11 种其他人为源的排放量占改进清单总排放量的 14.5%.需要指出的是,EDGAR v6.0 清单和 EDGAR v6.0 清单联合 GCG v1.0 的改进清单,均属于“自下而上”法编制的清单.而基于两类排放清单进行模拟与反演,则称

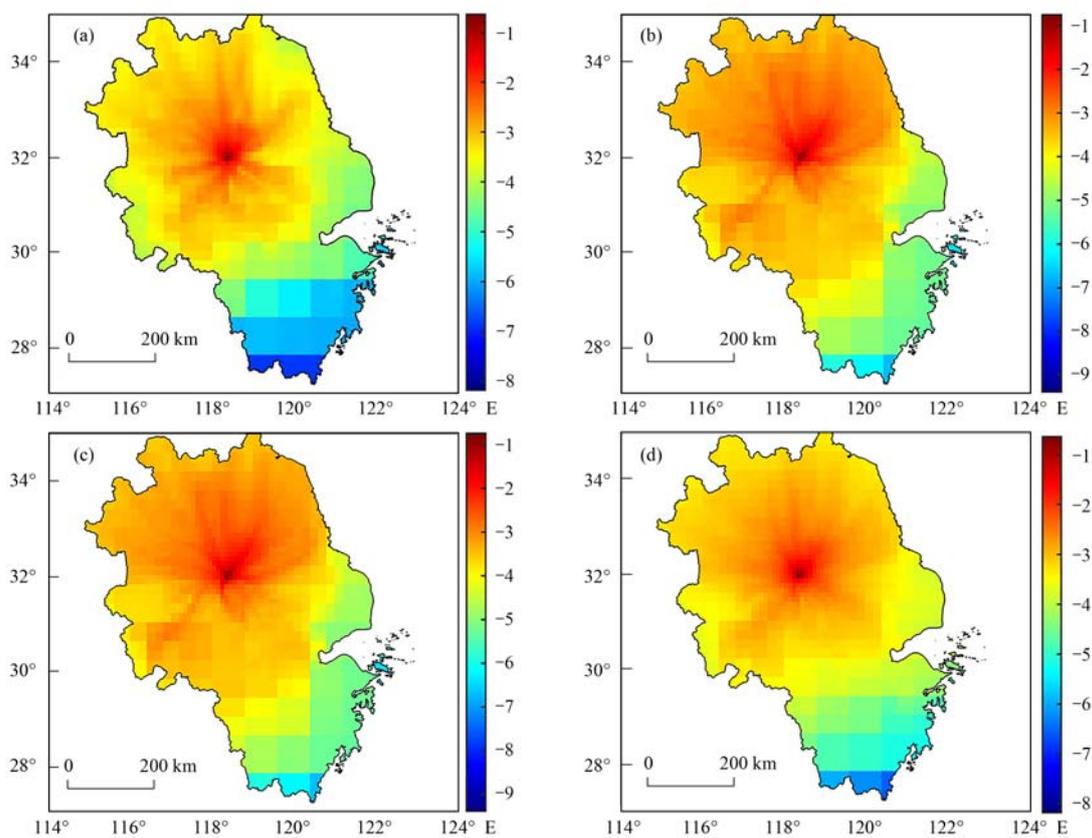
为“自上而下”法.

2 结果与分析

2.1 足迹权重和比例因子分析

2.1.1 足迹权重分析

2017 年 12 月至 2018 年 2 月各月和整个冬季的足迹权重如图 4 所示.对观测站点 CO₂ 摩尔分数贡献值产生重要影响的区域主要分布在观测点周围,即安徽省中东部及江苏省中西部,越靠近观测点足迹权重越大,对观测点 CO₂ 摩尔分数的影响就越大.从中可知,强贡献区覆盖了长三角的绝大部分地区.由此可见,基于 WRF-STILT 模型模拟的大气 CO₂ 摩尔分数可以代表长三角的 CO₂ 排放情况.



(a)2017 年 12 月,(b)2018 年 1 月,(c)2018 年 2 月,(d)2017 年 12 月至 2018 年 2 月;

色柱表示足迹权重,单位为 $\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{mol}^{-1}$ (用 lg 表示)

图 4 观测时段内各月和整个冬季的平均足迹权重

Fig. 4 Average footprint in each month and for the whole winter during the observation period

足迹权重受风速风向和湍流运动的影响,不同月份的足迹权重分布有所差别,强贡献区的分布面积和形状也不尽相同,整个冬季足迹权重分布比各月的分布更为均匀和集中.冬季,长三角盛行东北风和西南风,在风向影响下,足迹分布呈现东北-西南形态.总体来看,观测站点东北方向的强贡献区面积更大,对站点 CO₂ 摩尔分数变化的贡献也更大.当风向为东北风时,观测站点模拟的 CO₂ 摩尔分数贡

献值主要来自于观测点东北方向的人为 CO₂ 排放源.

2.1.2 比例因子分析

基于两种排放清单的模拟结果通过贝叶斯反演方法获得的 CO₂ 排放源在月尺度上的比例因子如表 3 所示.比例因子被用来校正模拟的大气 CO₂ 摩尔分数和先验 CO₂ 排放通量.当比例因子大于 1 时,表示先验清单中该排放源被低估,用比例因子来

提高其后验排放通量; 当比例因子小于 1 时, 表示先验清单中该排放源被高估, 用比例因子来降低其后验排放通量. 在 EDGAR 清单和改进清单中, 人为 CO₂ 排放源的排放通量均被高估, 尤其是 EDGAR

清单中的制造业燃烧在 2017 年 12 月被严重高估, 比例因子仅为 0.55. 其余人为 CO₂ 排放源的比例因子在 0.81 ~ 0.99 范围内波动, 自然源的比例因子均为 1.

表 3 基于两种排放清单反演的主要 CO₂ 排放源在月尺度上的比例因子

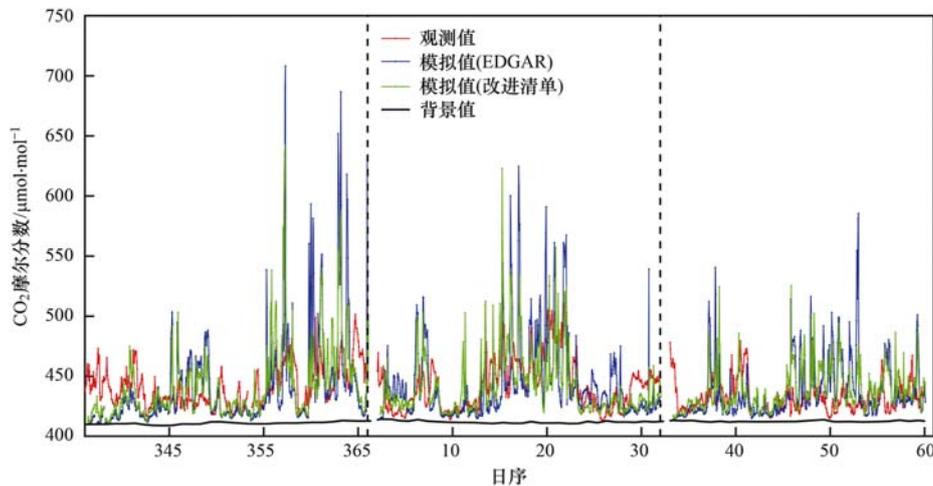
Table 3 Monthly scaling factors for the main CO₂ emission sources based on inversion of two emission inventories

日期 (年-月)	基于 EDGAR 反演						基于改进清单反演					
	制造业 燃烧	电力 行业	炼油厂和 转型行业	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
2017-12	0.55	0.96	0.88	0.92	0.98	1.00	0.96	0.81	0.99	0.99	0.93	1.00
2018-01	0.80	0.98	0.94	0.96	0.99	1.00	0.98	0.93	1.00	1.00	0.98	1.00
2018-02	0.84	0.96	0.95	0.97	0.98	1.00	0.96	0.92	0.99	0.99	0.97	1.00

2.2 大气 CO₂ 摩尔分数模拟值与观测值对比

基于两类排放清单 (EDGAR 清单、GCG 和 EDGAR 相结合的改进清单) 的人为 CO₂ 排放信息和 Carbon Tracker 的自然源排放信息作为先验排放数据, 模拟的逐时大气 CO₂ 摩尔分数与观测值的对比如图 5 和图 6 所示. 就基于 EDGAR 清单的模拟结果而言, 大气 CO₂ 摩尔分数的观测值和模拟值在大多数时间段趋势较为一致, 但是在某些时段出现了模拟值明显偏高的情况 (日序分别为 355 ~ 365、17 ~ 22 和 48 ~ 53), 模拟值较观测值偏低的时段也

较多 (日序分别为 336 ~ 344、350 ~ 355 和 28 ~ 37). 大气 CO₂ 摩尔分数观测值与模拟值的相关系数 R 为 0.39 ($P < 0.01$), 线性回归方程的斜率为 0.7, 一致性指数为 0.57, 标准误差为 $31.62 \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$ [图 6(a)]. 将 GCG 与 EDGAR 的 CO₂ 排放信息相结合作为改进的先验排放数据, 模拟得到的大气 CO₂ 摩尔分数得到了改进 [图 5 和图 6(b)], 模拟值与观测值的变化趋势达到了较高的一致性, 相关系数更高 ($R = 0.47, P < 0.01$), 一致性指数 (0.66) 更高, 标准误差 ($24.69 \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$) 更小.



虚线表示对观测时段内不同月份的划分

图 5 观测时段内大气 CO₂ 摩尔分数背景值、观测值与模拟值的对比

Fig. 5 Comparison of the background, observed and simulated atmospheric CO₂ concentrations during the observation period

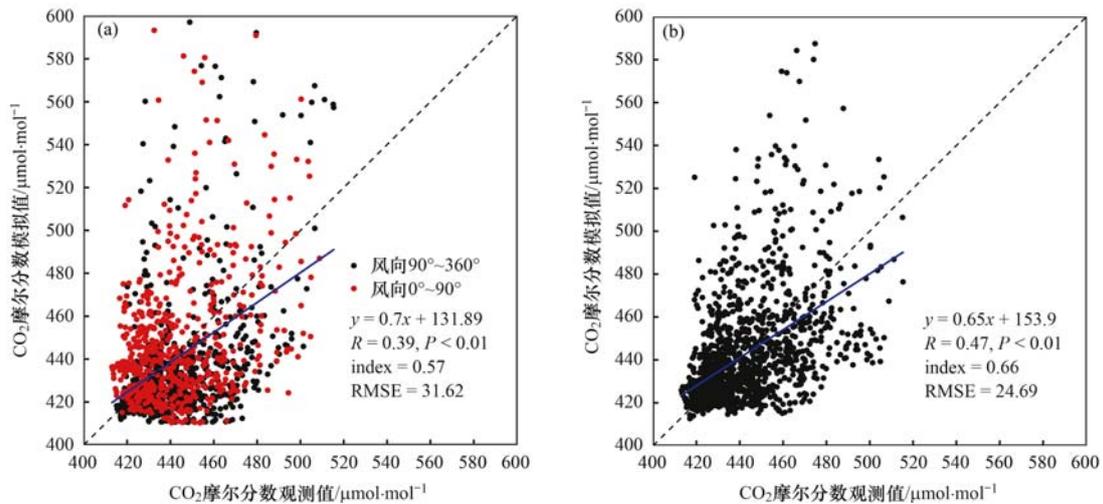
经风向筛选发现模拟值出现高值的时段多为东北风, 其中基于 EDGAR 清单的大气 CO₂ 模拟值高于 $460 \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$ 的时刻, 62% 的风向为东北风, 由此可见, 观测站点东北方向先验 CO₂ 排放对模拟的 CO₂ 摩尔分数影响很大.

两种大气 CO₂ 摩尔分数模拟值与观测值的日变化对比如图 7 所示. 虽然模拟值与观测值呈现了相似的日变化动态, 夜间的 CO₂ 摩尔分数较高, 白天的 CO₂ 摩尔分数较低, 但在夜间模拟值明显高于

观测值, 在白天低于观测值. 两种模拟值相比, 基于 GCG 和 EDGAR 相结合的改进清单的模拟值与观测值的日变化动态更一致.

2.3 3 种排放清单的空间分布特征和人为排放估算

3 种排放清单产品 (EDGAR、改进清单和 ODIAC) 在长三角地区人为 CO₂ 排放的空间分布如图 8 所示. 从空间上看, 3 种清单均显示高排放的位置主要集中在长三角的东部地区, 特别是靠近长江下游的一些人口密度高、经济发达的地区. EDGAR



(a) 模拟值基于 EDGAR 清单, (b) 模拟值基于改进清单; R 为相关系数, $RMSE$ 为标准误差, $index$ 为一致性指数

图 6 观测时段内大气 CO_2 摩尔分数观测值与模拟值的对比

Fig. 6 Comparison between the observed and simulated atmospheric CO_2 concentrations during the observation period

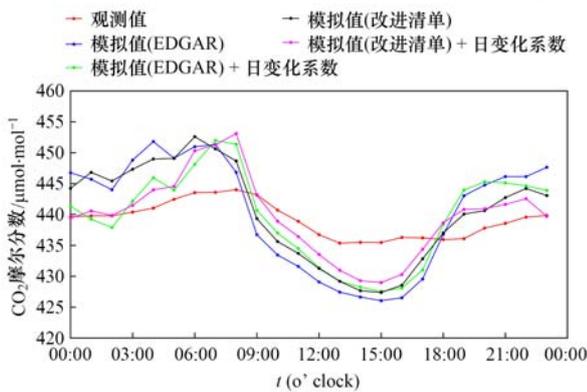


图 7 观测时段内大气 CO_2 摩尔分数观测值与模拟值的平均日变化

Fig. 7 Average diurnal variation in the observed and simulated atmospheric CO_2 concentrations during the observation period

中人为 CO_2 排放分配得很不均匀, 高排放与低排放的网格点较多, 与之相比, 改进清单的空间 CO_2 排放分布更加均匀. 而空间分辨率更高的 ODIAC 清单可以更精准地定位高排放热点位置, 但很多地区由于缺乏夜间灯光的卫星观测数据, 排放通量被设置为零.

本研究将贝叶斯反演所得的五大人为排放源类别每个月的比例因子分别对 EDGAR 与改进清单中每个排放源的排放通量进行优化调整, 得出优化前后 EDGAR 和改进清单对 2017 年 12 月至 2018 年 2 月长三角地区人为排放通量的估算结果如图 9 所示. 为了便于对比, 本研究仅考虑长三角的人为 CO_2 排放通量, 并将 EDGAR 的 20 种人为排放源按照其排放类别分成电力、工业、住宅、道路运输、航运、航空和其他这七大类, 同时加入了 ODIAC 清单的估算结果. 但 ODIAC 产品没有发布各个排放源的排放数据, 只有 CO_2 排放的总通量. 就估算结果而言,

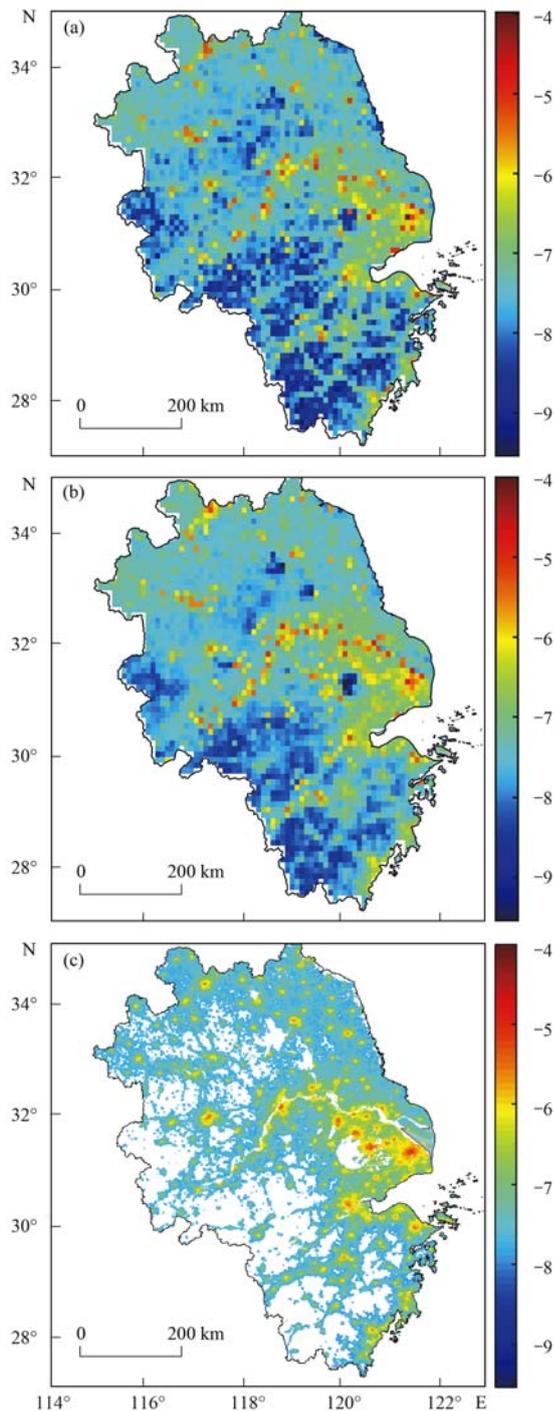
EDGAR 清单和改进清单的先验人为 CO_2 排放通量分别为 $0.203 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $0.196 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, 比例因子校正后的后验 CO_2 排放通量分别为 $(0.184 \pm 0.006) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $(0.183 \pm 0.007) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$, ODIAC 清单估算的长三角人为 CO_2 排放通量为 $0.182 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$. 就 CO_2 的不同排放类别中, 电力行业与工业排放是人为 CO_2 排放的两个最主要来源, 其次是住宅与道路运输, 而航运和航空运输等排放较少.

3 讨论

3.1 排放源日变化和边界层高度对大气 CO_2 摩尔分数模拟的影响

大气 CO_2 摩尔分数模拟值的日变化特征可能受到排放源和边界层高度日变化的影响. 为了分析人为排放源的日变化对大气 CO_2 摩尔分数模拟的影响, 对比了两种先验清单在忽略和考虑排放源日变化情况下的模拟结果(图 7). 本研究将每个排放源每小时的日变化系数赋值给 EDGAR 和改进清单的各个排放源, 使每个排放源的排放通量具有日变化特征, 从而来优化大气 CO_2 模拟值的日变化. 大气 CO_2 模拟值经优化后, 在夜间有所降低, 白天有所升高, 与观测值的日变化趋势更一致.

大气边界层高度对大气 CO_2 模拟值日变化的影响则远远大于日变化系数. 通常情况下, 白天的大气边界层高度比较高, 大气混合得比较充分, 而夜间相反, 夜间的大气边界层高度较低, 大气比较稳定, 大气混合得不够充分. 先前的研究表明, 一般在白天边界层高度较高、大气混合均匀时, WRF-STILT 模型模拟的效果更符合真实情况^[55,56]. 当夜间大气边



(a) EDGAR, (b) 改进清单, (c) ODIAC; 色柱表示排放通量, 单位为 $\text{kg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ (用 \lg 表示)

图 8 三类 CO₂ 排放清单在长三角地区的人为 CO₂ 排放通量的空间分布

Fig. 8 Spatial distribution of anthropogenic CO₂ emission flux for three CO₂ emission inventories in the Yangtze River Delta

界层高度很低,有时甚至低到只有几十米,此时观测站点周围一些从高达数百米的烟囱中释放 CO₂ 的排放点源可能已高于大气边界层,导致这些点源对观测的影响可忽略不计,但是在模拟时,排放清单通常默认所有点源从地表释放,这些点源的排放贡献就会导致对模拟结果的高估^[57],出现夜间 CO₂ 模拟

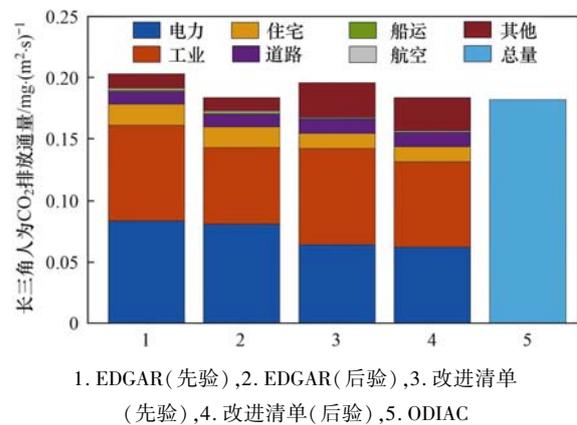


图 9 基于不同排放清单估算的长三角人为 CO₂ 排放通量

Fig. 9 Estimated anthropogenic CO₂ emission flux in the Yangtze River Delta based on different emission inventories

值偏高的现象.

3.2 排放的空间分配对模拟的影响

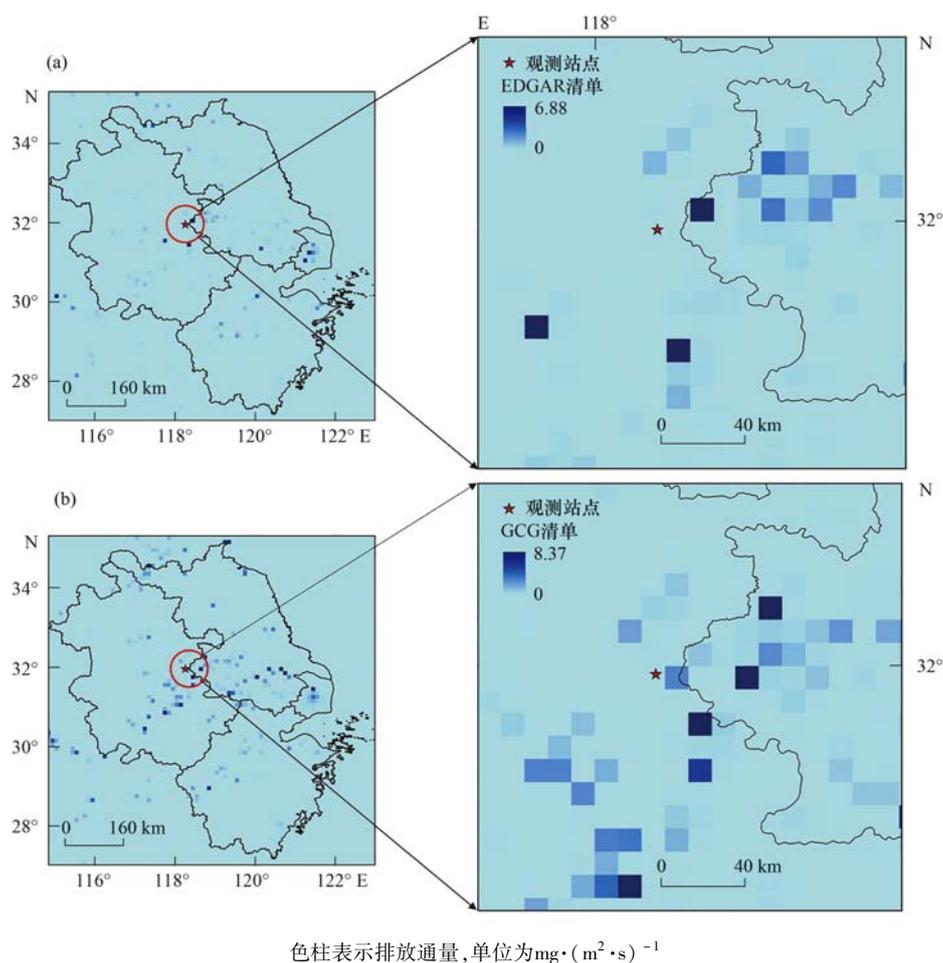
本研究的结果凸显了先验排放的空间分布对大气 CO₂ 摩尔分数模拟的重要影响. CO₂ 排放清单 EDGAR 是一个全球的清单产品,对国家尺度 CO₂ 排放估算的误差控制在了 15% 之内^[19,35],但却不能灵敏地反映区域尺度上人为 CO₂ 的点源排放. 原因有两个方面:其一,EDGAR 清单中大量点源的地理位置很不准确^[19,22,23],主要体现在 EDGAR 用于点源排放的 CARMA 数据库对于中国发电厂的定位不够准确^[58,59],Wang 等^[21] 根据 Google Earth 查找发电厂具体位置发现只有 45% 的电厂位于 CARMA 数据库正确的网格中. 其二,CARMA 数据库忽视了大量小型点源(例如:约 1300 个小型发电厂)^[59],EDGAR 清单将中国地区大部分 CO₂ 总排放量分配给了更少的大型点源,导致中国约 5% 网格内的排放量占中国 CO₂ 总排放量的 90%^[19],一些大型点源所在网格的 CO₂ 排放通量极高. 这些误差大大增加了 EDGAR 清单的不确定性,导致 EDGAR 在区域尺度上估算 CO₂ 排放的不确定性远远大于国家尺度,也导致 EDGAR 在区域尺度上存在 CO₂ 排放点源定位不准确和各个网格点内 CO₂ 排放通量不合理等问题. 如今 EDGAR 在这些方面的不确定性也是导致本研究模拟的大气 CO₂ 摩尔分数出现突然高值的最主要原因.

在本研究中,工业排放是长三角人为 CO₂ 排放源中排放量最大的 CO₂ 来源,对模拟的 CO₂ 增加量的贡献最大. 图 10(a) 为 EDGAR 清单中的制造业燃烧(工业排放源中的一类)在观测时段内 3 月平均的 CO₂ 排放图. 在高塔观测站点的东北方向有一个格点的 CO₂ 通量极高 $[6.88 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}]$,明显高于其他格点[EDGAR 清单中制造业燃烧在长三角

地区的平均 CO_2 通量为 $0.06 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$], 也高于 GCG 清单的工业排放在该格点内的 CO_2 通量 [$0.38 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$], 且该格点距离观测站点仅 24 km. 经百度地图及 Google Earth 查验, 发现在此格点内只有零星的两个水泥厂是人为 CO_2 排放的主要来源, 因此该格点的真实排放通量应远远小于 EDGAR 提供的通量大小. 图 10(b) 展示了 GCG 清单中工业排放的 CO_2 排放分布图, 经百度地图和 Google Earth 查验后发现其中的高排放格点内确实有化工厂和钢铁厂等大量工业排放的热源点.

长三角地区在冬季盛行东北风, 当观测站点附

近区域为东北风时, 模拟的大部分 CO_2 摩尔分数贡献值都会来自站点东北方向的 CO_2 排放, 那么此时 EDGAR 清单中这个排放通量异常高的格点就会对 CO_2 摩尔分数的模拟产生很大影响, 出现模拟值偏高的现象. 由此可以说明 EDGAR 在区域尺度上对网格点内的 CO_2 排放分配得不合理是大气 CO_2 摩尔分数模拟中不确定性的重要来源. 本研究建议未来在高塔观测和模拟大气 CO_2 摩尔分数时, 要确认所采用的先验排放清单中观测点周围 (距离观测点 50 km 内) 是否有强点源, 以及强点源的排放强度是否与实际情况一致.



色柱表示排放通量, 单位为 $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$

图 10 EDGAR 的制造业燃烧排放源和 GCG 的工业排放源在观测时段内 CO_2 排放通量的空间分布

Fig. 10 Spatial distribution of CO_2 emission flux from manufacturing combustion emission sources of EDGAR and industrial emission sources of GCG during the observation period

3.3 长三角人为 CO_2 排放估算结果对比

本研究估算的 EDGAR 和改进清单反演前后的 2017 年 12 月至 2018 年 2 月长三角人为 CO_2 排放通量和以往研究估算的其他年份长三角人为 CO_2 排放通量如表 4 所示. Hu 等^[42] 和 Xu 等^[43] 估算的 2014 年长三角的人为 CO_2 排放通量分别为 $(0.16 \pm 0.005) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $(0.17 \pm 0.02) \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$. 与他们的结果相比, 本研究估算的

2017 年 12 月至 2018 年 2 月长三角人为 CO_2 排放通量有一定幅度的增加, 两种清单的先验排放通量均偏高, 特别是 EDGAR 清单, Han 等^[19] 表示 2013 年之后 EDGAR 对中国 CO_2 总排放量的估计值与绝大多数排放清单相比有偏高的情况. 经贝叶斯反演的优化后, 两种清单对长三角人为 CO_2 排放通量的估算结果较为一致, 与 ODIAC 清单的估算结果相当, 比中国多尺度排放清单模型 (multi-resolution

表 4 文献中长三角的人为 CO₂ 排放通量对比Table 4 Comparison of anthropogenic CO₂ emission flux in the Yangtze River Delta in previous literature

方法	日期(年-月)	长三角人为 CO ₂ 排放通量		文献
		/mg·(m ² ·s) ⁻¹		
IPCC 算法(“自下而上”法)	2014	(0.17 ± 0.02)		[43]
基于 EDGAR v4.2 反演(“自上而下”法)	2014	(0.16 ± 0.005)		[42]
ODIAC 清单(“自下而上”法)	2017-12 ~ 2018-02	0.182		[10,17]
MEIC 清单(“自下而上”法)	2017	0.178		[60,61]
EDGAR v6.0 清单(“自下而上”法)	2017-12 ~ 2018-02	0.203		本研究
基于 EDGAR v6.0 反演(“自上而下”法)	2017-12 ~ 2018-02	(0.184 ± 0.006)		本研究
改进清单(“自下而上”法)	2017-12 ~ 2018-02	0.196		本研究
基于改进清单反演(“自上而下”法)	2017-12 ~ 2018-02	(0.183 ± 0.007)		本研究

emission inventory for China, MEIC) 估算的长三角 2017 年人为 CO₂ 排放通量略高一些^[60,61]。

对排放点源的定位和排放的空间分配有更高准确性、有更高时间与空间分辨率的省级排放清单应作为先验排放数据的首选。一般来说,从各个排放部门的国家总量中减去不确定性极低的精确点源的排放量总和,剩余排放量由较小的点源生成,通常用人口密度代理等空间代理数据进行分配,由此生成排放清单。所以,国家总排放量、大型点源的大小及分布、非点源的大小及分布和空间代理数据均为排放清单的生成带来了不确定性^[38],其中国家总排放量的空间分配方案和空间代理数据是最大的不确定性来源^[62]。EDGAR 仅使用了点源和线源的空间代理数据,GCC 结合了多种数据流,包括点源数据、国家层面各部门活动和排放数据及其分布情况,GCC 相对于 EDGAR 在排放点源的定位和排放的空间分配中有更高的精确性^[38]。EDGAR 是基于国家数据的排放清单,MEIC 是基于省级数据的排放清单,基于省级能源统计的估算通常比使用空间代理数据对全国排放总量进行分配得出的估算结果更准确^[19,63,64],但 MEIC 的空间分辨率较低(0.25° × 0.25°),不符合本研究区域 CO₂ 排放模拟的要求。

大气传输模型结合 CO₂ 摩尔分数观测的反演方法通常使用排放清单作为先验排放数据来估算 CO₂ 排放,因此排放清单的不确定性会对国家甚至全球碳收支的模拟估算产生很大影响。对于中国的减排目标,为不同区域制定专门的碳减排政策至关重要^[65]。由此可见,在对区域的人为 CO₂ 排放进行模拟与估算或制定区域 CO₂ 减排政策时,应当尽量多选择几种排放清单进行对比和筛选。高时间与空间分辨率、排放的总量估算和空间分配更准确的省级清单更是未来排放清单亟需努力的目标,如此才能更加精准地模拟出区域的大气 CO₂ 摩尔分数并预估出更精准的人为 CO₂ 排放量,为国家的节能减排政策提供有力的数据支撑。

4 结论

(1) 在冬季,仅基于 EDGAR 清单模拟的大气 CO₂ 摩尔分数和观测值相比高值与低值均偏多($R = 0.39$, $RMSE = 31.62 \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$),基于改进清单模拟的大气 CO₂ 摩尔分数与观测值的变化趋势更一致($R = 0.47$, $RMSE = 24.69 \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$)。

(2) 日尺度上,模拟值和观测值相比夜间偏高白天偏低,其原因一是排放清单忽视了人为排放的日变化特征,加上日变化系数后得到了优化。原因二是夜间边界层高度偏低,模拟高估了观测站点附近排放高度较高点源的排放贡献。

(3) EDGAR 中对观测站点摩尔指数贡献潜力较大网格点的排放误差是基于 EDGAR 模拟的 CO₂ 摩尔分数出现异常高值的主要原因,EDGAR 在区域尺度上对网格点内的 CO₂ 排放分配得不合理很大程度上影响了 CO₂ 摩尔分数的模拟效果,是模型模拟中不确定性的重要来源。

(4) 基于 EDGAR 和改进清单估算的 2017 年 12 月至 2018 年 2 月长三角后验人为 CO₂ 排放通量分别约为 $(0.184 \pm 0.006) \text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 和 $(0.183 \pm 0.007) \text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 。高时间与空间分辨率、排放的总量估算和空间分配更准确的省级排放清单应作为未来先验排放数据的首选,才能更精准地模拟区域的大气 CO₂ 摩尔分数并反演排放量。

参考文献:

- [1] Lan X, Tans P, Thoning K W. Trends in globally-averaged CO₂ determined from NOAA Global Monitoring Laboratory measurements [EB/OL]. <https://gml.noaa.gov/ccgg/trends/global.html>, 2023-01-13.
- [2] Hansen J, Johnson D, Lacis A, et al. Climate impact of increasing atmospheric carbon dioxide[J]. Science, 1981, **213** (4511): 957-966.
- [3] Masson-Delmotte V, Zhai P M, Pirani A, et al. Climate change 2021: the physical science basis. Contribution of working group I to the sixth assessment report of the intergovernmental panel on climate change [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2021, doi: 10.1017/9781009157896.
- [4] Lin S J, Lu I J, Lewis C. Identifying key factors and strategies

- for reducing industrial CO₂ emissions from a non-Kyoto protocol member's (Taiwan) perspective [J]. *Energy Policy*, 2006, **34** (13): 1499-1507.
- [5] Sharma S S. Determinants of carbon dioxide emissions; empirical evidence from 69 countries [J]. *Applied Energy*, 2011, **88**(1): 376-382.
- [6] Meng L, Guo J, Chai J, *et al.* China's regional CO₂ emissions: characteristics, inter-regional transfer and emission reduction policies [J]. *Energy Policy*, 2011, **39**(10): 6136-6144.
- [7] Oda T, Bun R, Kinakh V, *et al.* Errors and uncertainties in a gridded carbon dioxide emissions inventory [J]. *Mitigation and Adaptation Strategies for Global Change*, 2019, **24**(6): 1007-1050.
- [8] Andres R J, Boden T A, Bréon F M, *et al.* A synthesis of carbon dioxide emissions from fossil-fuel combustion [J]. *Biogeosciences*, 2012, **9**(5): 1845-1871.
- [9] Boden T A, Andres R J, Marland G. Global, regional, and national fossil-fuel CO₂ emissions (1751-2014) (v. 2017) [R]. Oak Ridge, TN, USA: Environmental System Science Data Infrastructure for A Virtual Ecosystem (ESS-DIVE), Carbon Dioxide Information Analysis Center (CDIAC), Oak Ridge National Laboratory (ORNL), 2017.
- [10] Oda T, Maksyutov S, Andres R J. The open-source data inventory for anthropogenic CO₂, version 2016 (ODIAC2016): a global monthly fossil fuel CO₂ gridded emissions data product for tracer transport simulations and surface flux inversions [J]. *Earth System Science Data*, 2018, **10**(1): 87-107.
- [11] Ciais P, Paris J D, Marland G, *et al.* The European carbon balance. Part 1: fossil fuel emissions [J]. *Global Change Biology*, 2010, **16**(5): 1395-1408.
- [12] Miller J B, Lehman S J, Montzka S A, *et al.* Linking emissions of fossil fuel CO₂ and other anthropogenic trace gases using atmospheric ¹⁴CO₂ [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2012, **117**(D8), doi: 10.1029/2011JD017048.
- [13] Nassar R, Napier-Linton L, Gurney K R, *et al.* Improving the temporal and spatial distribution of CO₂ emissions from global fossil fuel emission datasets [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2013, **118**(2): 917-933.
- [14] Cai B F, Cui C, Zhang D, *et al.* China city-level greenhouse gas emissions inventory in 2015 and uncertainty analysis [J]. *Applied Energy*, 2019, **253**, doi: 10.1016/j.apenergy.2019.113579.
- [15] Guan D B, Liu Z, Geng Y, *et al.* The gigatonne gap in China's carbon dioxide inventories [J]. *Nature Climate Change*, 2012, **2** (9): 672-675.
- [16] Liu Z, Guan D B, Wei W, *et al.* Reduced carbon emission estimates from fossil fuel combustion and cement production in China [J]. *Nature*, 2015, **524**(7565): 335-338.
- [17] Oda T, Maksyutov S. A very high-resolution (1 km × 1 km) global fossil fuel CO₂ emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(2): 543-556.
- [18] Andres R J, Boden T A, Higdón D M. Gridded uncertainty in fossil fuel carbon dioxide emission maps, a CDIAC example [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(23): 14979-14995.
- [19] Han P F, Zeng N, Oda T, *et al.* Evaluating China's fossil-fuel CO₂ emissions from a comprehensive dataset of nine inventories [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20** (19): 11371-11385.
- [20] Ghosh T, Elvidge C D, Sutton P C, *et al.* Creating a global grid of distributed fossil fuel CO₂ emissions from nighttime satellite imagery [J]. *Energies*, 2010, **3**(12): 1895-1913.
- [21] Wang R, Tao S, Ciais P, *et al.* High-resolution mapping of combustion processes and implications for CO₂ emissions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(10): 5189-5203.
- [22] 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), doi: 10.1016/j.heliyon.2017.e00489.
- [23] 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 modelling [J]. *Mitigation and Adaptation Strategies for Global Change*, 2019, **24**(6): 907-939.
- [24] Turner A J, Shusterman A A, McDonald B C, *et al.* Network design for quantifying urban CO₂ emissions: assessing trade-offs between precision and network density [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(21): 13465-13475.
- [25] Cui X G, Newman S, Xu X M, *et al.* Atmospheric observation-based estimation of fossil fuel CO₂ emissions from regions of central and southern California [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **664**: 381-391.
- [26] Huang W J, Griffis T J, Hu C, *et al.* Seasonal variations of CH₄ emissions in the Yangtze River Delta region of China are driven by agricultural activities [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2021, **38**(9): 1537-1551.
- [27] Hu C, Xu J P, Liu C, *et al.* Anthropogenic and natural controls on atmospheric δ¹³C-CO₂ variations in the Yangtze River Delta: insights from a carbon isotope modeling framework [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, **21** (13): 10015-10037.
- [28] Liu Z, Bambha R P, Pinto J P, *et al.* Toward verifying fossil fuel CO₂ emissions with the CMAQ model: motivation, model description and initial simulation [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2014, **64**(4): 419-435.
- [29] 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.
- [30] 国家统计局. 中国统计年鉴-2019 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2019.
- [31] Chen Z C, Griffis T J, Millet D B, *et al.* Partitioning N₂O emissions within the U. S. corn belt using an inverse modeling approach [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2016, **30**(8): 1192-1205.
- [32] Pillai D, Buchwitz M, Gerbig C, *et al.* Tracking city CO₂ emissions from space using a high-resolution inverse modelling approach: a case study for Berlin, Germany [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(15): 9591-9610.
- [33] 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.
- [34] Huang W J, Xiao W, Zhang M, *et al.* Anthropogenic CH₄ emissions in the Yangtze River Delta based on a "top-down" method [J]. *Atmosphere*, 2019, **10** (4), doi: 10.3390/atmos10040185.
- [35] Janssens-Maenhout G, Crippa M, Guizzardi D, *et al.* EDGAR v4.3.2 global atlas of the three major greenhouse gas emissions for the period 1970-2012 [J]. *Earth System Science Data*, 2019,

- 11(3): 959-1002.
- [36] Crippa M, Guizzardi D, Solazzo E, *et al.* GHG emissions of all world countries [R]. Luxembourg: Publications Office of the European Union, 2021.
- [37] Crippa M, Solazzo E, Huang G L, *et al.* High resolution temporal profiles in the emissions database for global atmospheric research [J]. *Scientific Data*, 2020, **7**(1), doi: 10.1038/s41597-020-0462-2.
- [38] Dou X Y, Wang Y L, Ciais P, *et al.* Near-real-time global gridded daily CO₂ emissions [J]. *The Innovation*, 2022, **3**(1), doi: 10.1016/j.xinn.2021.100182.
- [39] 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.
- [40] 胡诚, 张弥, 肖薇, 等. 基于 WRF-STILT 模型对高塔 CO₂ 浓度的模拟研究 [J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(7): 2424-2437. Hu C, Zhang M, Xiao W, *et al.* Tall tower CO₂ concentration simulation using the WRF-STILT model [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(7): 2424-2437.
- [41] 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), doi: 10.1029/2002JD003161.
- [42] Hu C, Liu S D, Wang Y W, *et al.* Anthropogenic CO₂ emissions from a megacity in the Yangtze River Delta of China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2018, **25**(23): 23157-23169.
- [43] Xu J P, Lee X H, Xiao W, *et al.* Interpreting the ¹³C/¹²C ratio of carbon dioxide in an urban airshed in the Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(5): 3385-3399.
- [44] 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.
- [45] 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.
- [46] Hu C, Griffis T J, Lee X, *et al.* Top-down constraints on anthropogenic CO₂ emissions within an agricultural-urban landscape [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2018, **123**(9): 4674-4694.
- [47] Jeong S, Zhao C F, Andrews A E, *et al.* Seasonal variation of CH₄ emissions from central California [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2012, **117**(D11), doi: 10.1029/2011JD016896.
- [48] Guo J P, Miao Y C, 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.
- [49] Gerbig C, Lin J C, Wofsy S C, *et al.* Toward constraining regional-scale fluxes of CO₂ with atmospheric observations over a continent: 1. Observed spatial variability from airborne platforms [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2003, **108**(D24), doi: 10.1029/2002JD003018.
- [50] 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.
- [51] Lan X, Dlugokencky E J, Mund J W, *et al.* Atmospheric carbon dioxide dry air mole fractions from the NOAA GML carbon cycle cooperative global air sampling network, 1968-2021 [EB/OL]. <https://doi.org/10.15138/wkgj-f215>, 2022-11-21.
- [52] Shen S H, Yang D, Xiao W, *et al.* Constraining anthropogenic CH₄ emissions in Nanjing and the Yangtze River Delta, China, using atmospheric CO₂ and CH₄ mixing ratios [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2014, **31**(6): 1343-1352.
- [53] 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.
- [54] Peng S S, Piao S, Bousquet P, *et al.* Inventory of anthropogenic methane emissions in mainland China from 1980 to 2010 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(22): 14545-14562.
- [55] Guha T, Ghosh P. Diurnal variation of atmospheric CO₂ concentration and $\delta^{13}\text{C}$ in an urban atmosphere during winter—role of the nocturnal boundary layer [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2010, **65**(1): 1-12.
- [56] 胡诚, 刘寿东, 曹畅, 等. 南京市大气 CO₂ 浓度模拟及源贡献研究 [J]. *环境科学学报*, 2017, **37**(10): 3862-3875. Hu C, Liu S D, Cao C, *et al.* Simulation of atmospheric CO₂ concentration and source apportionment analysis in Nanjing City [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(10): 3862-3875.
- [57] 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 Discussions*, 2021, doi: 10.5194/gmd-2021-386.
- [58] Liu M, Wang H, Wang H, *et al.* Refined estimate of China's CO₂ emissions in spatiotemporal distributions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(21): 10873-10882.
- [59] Liu F, Zhang Q, Tong D, *et al.* High-resolution inventory of technologies, activities, and emissions of coal-fired power plants in China from 1990 to 2010 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(23): 13299-13317.
- [60] Li M, Liu H, Geng G N, *et al.* Anthropogenic emission inventories in China: a review [J]. *National Science Review*, 2017, **4**(6): 834-866.
- [61] Zheng B, Tong D, Li M, *et al.* Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(19): 14095-14111.
- [62] Hogue S, Marland E, Andres R J, *et al.* Uncertainty in gridded CO₂ emissions estimates [J]. *Earth's Future*, 2016, **4**(5): 225-239.
- [63] Zhao Y, Nielsen C P, McElroy M B. China's CO₂ emissions estimated from the bottom up: recent trends, spatial distributions, and quantification of uncertainties [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **59**: 214-223.
- [64] Han P F, Lin X H, Zeng N, *et al.* Province-level fossil fuel CO₂ emission estimates for China based on seven inventories [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, **277**, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.123377.
- [65] Shan Y L, Zhou Y, Meng J, *et al.* Peak cement-related CO₂ emissions and the changes in drivers in China [J]. *Journal of Industrial Ecology*, 2019, **23**(4): 959-971.

CONTENTS

Impact of Climate Change on Summer Ozone in China	HU An-qi, XIE Xiao-dong, GONG Kang-jia, <i>et al.</i>	(1801)
Spatial-temporal Variation and Driving Factors of Ozone in China from 2019 to 2021 Based on EOF Technique and KZ Filter	WANG Hao-qi, ZHANG Yu-fen, LUO Zhong-wei, <i>et al.</i>	(1811)
Photochemical Mechanism and Control Strategy Optimization for Summertime Ozone Pollution in an Industrial City in the North China Plain	ZHENG Zhen-sen, DOU Jian-ping, ZHANG Guo-tao, <i>et al.</i>	(1821)
Spatiotemporal Evolution Characteristics of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Chinese Cities from 2015 to 2020	NIU Xiao-xiao, ZHONG Yan-mei, YANG Lu, <i>et al.</i>	(1830)
Spatiotemporal Distribution Characteristics of Co-pollution of PM _{2.5} and Ozone over BTH with Surrounding Area from 2015 to 2021	SONG Xiao-han, YAN Li, LIU Wei, <i>et al.</i>	(1841)
Spatio-temporal Variation in PM _{2.5} Concentration and Its Relationship with Vegetation Landscape Patterns in Typical Economic Zones in China from 2000 to 2020	XU Yong, LI Xin-yi, HUANG Wen-ting, <i>et al.</i>	(1852)
Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Ion Deposition During Winter and Spring in the Core Area of Beijing	ZHAO Yu, LI Bei-bei, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i>	(1865)
Input Characteristics of Dry Deposition of Atmospheric Particulates and Metals in Farmland in the Suburb of Nanjing	LIU Cui-ying, JIN Hao, FAN Jian-ling	(1873)
Pollution Characterizations and Oxidative Potentials of Water-Soluble Organic Matters at Different Polarity Levels in Winter PM _{2.5} Over Xi'an	LUO Yu, HUANG Sha-sha, ZHANG Tian, <i>et al.</i>	(1882)
Emission Characteristics of Organic Carbon and Elemental Carbon in PM ₁₀ and PM _{2.5} from Vehicle Exhaust and Civil Combustion Fuels	WANG Hong-lei, LIU Si-han, SUN Jie-juan, <i>et al.</i>	(1890)
Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} in the Core Area of Ili River Valley in Spring	GU Chao, XU Tao, MA Chao, <i>et al.</i>	(1899)
Evaluation of Changes in PM _{2.5} Exposure Concentration and Health Risk for Urban Resident in Zhengzhou Based on High Spatial Resolution Grids	LI Yuan, XU Yi-fei, YUAN Ming-hao, <i>et al.</i>	(1911)
Emission Inventory of Building Material Industry in Henan Province Based on Multi-source Data Integration	LIU Xiao, HU Jing-nan, WANG Hong-mei, <i>et al.</i>	(1924)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Winter in Kaifeng City	SHI Yu-qi, ZHENG Kai-yun, DING Wei-ling, <i>et al.</i>	(1933)
Changes in O ₃ -VOCs-NO _x Sensitivity and VOCs Sources at an Urban Site of Nanjing Between 2020 and 2021	LU Xiao-bo, WANG Ming, DING Feng, <i>et al.</i>	(1943)
Variation Characteristics and Ozone Formation Potential of Ambient VOCs in Urban Beijing in Summer	ZHANG Rui, SUN Xue-song, WANG Yu, <i>et al.</i>	(1954)
Chemical Characteristics and Source Apportionment for VOCs During the Ozone Pollution Episodes and Non-ozone Pollution Periods in Qingdao	JIA Zhi-hai, GU Yao, KONG Cui-li, <i>et al.</i>	(1962)
Characteristics of O ₃ Production in the Western Suburb of Hefei in Summer Based on the Observation of Total Peroxy Radical	YU Hui, WEI Na-na, XU Xue-zhe, <i>et al.</i>	(1974)
Evaluation of Energy Saving and Carbon Reduction Effect of Air Pollution Prevention and Control Action Plan and Innovation Intermediary Effect	LI Shao-lin, WANG Qi-qi	(1985)
Scenario Simulation and Effects Assessment of Co-control on Pollution and Carbon Emission Reduction in Beijing	YU Shan, ZHANG Shuang, ZHANG Zeng-jie, <i>et al.</i>	(1998)
Simulation of Anthropogenic CO ₂ Emissions in the Yangtze River Delta Based on Different Emission Inventories	MA Xin-yi, HUANG Wen-jing, HU Ning, <i>et al.</i>	(2009)
Water Quality Change Trend and Risk Analysis of Wuhan Hanjiang River Water Source	ZHUO Hai-hua, LOU Bao-feng, XU Jie, <i>et al.</i>	(2022)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics and Resistance Genes in Different Water Sources in the Wuhan Section of the Yangtze River	LI Bo-lin, ZHANG He, WANG Jun, <i>et al.</i>	(2032)
Occurrence Characteristics, Sources, and Toxicity Risk Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Typical Rivers of Northern Shaanxi Mining Area, China	WU Xi-jun, DONG Ying, ZHAO Jian, <i>et al.</i>	(2040)
Spatio-temporal Characteristics of Organic Aggregates and the Driving Factors in Typical Lakes	XIE Gui-juan, GONG Yi, ZHU Fu-cheng, <i>et al.</i>	(2052)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Microplastics in Water of Different Functional Parks in Guilin	LI Pei-zhao, WU Li, HUANG Fei-fei, <i>et al.</i>	(2062)
Environmental Driving Factors and Assessment on the Aquatic Ecosystem of Periphytic Algae of Six Inflow Rivers in Yangtze River Basin	ZHANG Jing, HU Yu-xin, HU Sheng, <i>et al.</i>	(2072)
Influence and Driving of Environmental Heterogeneity on the Epilithic Diatom Community in Xiangxi River, a Tributary of the Three Gorges Reservoir Area	Ji Lu-lu, ZHAO Lu, OUYANG Tian, <i>et al.</i>	(2083)
Characteristics of Phytoplankton Communities and Key Impact Factors in Three Types of Lakes in Wuhan	ZHANG Hao-kun, MIN Fen-li, CUI Hui-rong, <i>et al.</i>	(2093)
Effects of Heavy Metal Pollution on the Structure of Microbial Communities in Different Habitats	HE Yi-fan, XIAO Xin-zong, WANG Jia-wen	(2103)
Structure and Distribution Characteristics of Bacterial Community in Boqing River Water	WANG Sen, CHEN Jian-wen, ZHANG Hong, <i>et al.</i>	(2113)
Effects of Microplastic Exposure on the Community Structure and Function of Symbiotic Bacteria in <i>Sinularia microclavata</i>	LIU Min, CHE Wen-xue, ZENG Ying-xu, <i>et al.</i>	(2122)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Emerging Contaminants from Raw Water to Drinking Water in Shanghai	YAN Qi	(2136)
Adsorption Characteristics of Fluoride in Low-Concentration Water by Aluminum and Zirconium-Modified Biochar	LIU Yan-fang, GAO Wei, LIU Rui, <i>et al.</i>	(2147)
Sorption Characteristics and Site Energy Distribution Theory of Typical Estrogens on Microplastics	LIU Jiang-yan, ZHENG Mi-mi, HU Jia-wu, <i>et al.</i>	(2158)
Selection and Evaluation of Model Pollutants for Performance Assessment of Advanced Treatment of Industrial Park Wastewater by Ozonation	XIN Bo, SHAN Chao, LÜ Lu	(2168)
Identifying Driving Factors and Their Interacting Effects on Sources of Heavy Metal in Farmland Soils with Geodetector and Multi-source Data	ZHANG Hong-ze, CUI Wen-gang, LIU Sui-hua, <i>et al.</i>	(2177)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around the Gangue Heap of Coal Mine Based on APCS-MLR and PMF Receptor Model	MA Jie, SHEN Zhi-jie, ZHANG Ping-ping, <i>et al.</i>	(2192)
Contamination and Probabilistic Health Risk Assessment of Heavy Metals in Agricultural Soils Around a Lead-Zinc Smelter	HUANG Jian-bo, JIANG Deng-deng, WEN Bing, <i>et al.</i>	(2204)
Prediction of PAHs Content in Soil Around Gas Stations in Beijing Based on BP Neural Network	MA Sai-yan, WEI Hai-ying, MA Jin, <i>et al.</i>	(2215)
Spatial-temporal Distribution and Risk Assessment of Quinolones Antibiotics in Soil of Shijiazhuang City	ZHAO Xin-yu, CHEN Hui, ZHAO Bo, <i>et al.</i>	(2223)
Accumulation and Pollution Risks of Heavy Metals in Soils and Agricultural Products from a Typical Black Shale Region with High Geological Background	DENG Shuai, DUAN Jia-hui, NING Mo-huan, <i>et al.</i>	(2234)
Geochemical Characteristics of Cd in Different Parent Soils in Karst Area and Prediction of Cd Content in Maize	DAI Liang-liang, XU Hong-gen, GONG Hao, <i>et al.</i>	(2243)
Pollution Risk and Contribution Analysis of Pb, Cd, and As in Soils and Crops Under Different Land Use Types in Longyan City	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi	(2252)
Influencing Factors of Cadmium Content in Wheat Grain: A Meta-analysis and Decision Tree Analysis	LIU Na, ZHANG Shao-bin, GUO Xin-yu, <i>et al.</i>	(2265)
Response Characteristics of Soil Organic Carbon Pool and Its Chemical Composition During Secondary Forest Succession in the Loess Plateau	LIU Han-yu, LIU Ying-yi, ZHANG Qi, <i>et al.</i>	(2275)
Effects of Short-Term Nitrogen and Phosphorus Addition on Soil Respiration Components in a Subalpine Grassland of Qilian Mountains	JIANG Yuan, GAN Xiao-ling, CAO Feng-feng, <i>et al.</i>	(2283)
Response of Soil Microbial Diversity to Long-term Enclosure in Degraded Patches of Alpine Meadow in the Source Zone of the Yellow River	YANG Peng-nian, LI Xi-lai, LI Cheng-yi, <i>et al.</i>	(2293)
Diversity and Predictive Functional of <i>Caragana jubata</i> Bacterial Community in Rhizosphere and Non-rhizosphere Soil at Different Altitudes	LI Yuan-yuan, XU Ting-ting, AI Zhe, <i>et al.</i>	(2304)
Effects of Simulated Acid Rain and Nitrogen Deposition on Soil Bacterial Community Structure and Diversity in the Masson Pine Forest	WANG Nan, QIAN Shao-yu, PAN Xiao-cheng, <i>et al.</i>	(2315)
Effects of Phosphogypsum and <i>Suaeda salsa</i> on the Soil Moisture, Salt, and Bacterial Community Structure of Salinized Soil	LIU Yue, YANG Shu-qing, ZHANG Wan-feng, <i>et al.</i>	(2325)
Effects of Combined Application of Fungal Residue and Chemical Fertilizer on Soil Microbial Community Composition and Diversity in Paddy Soil	GENG He-tian, WANG Xu-dong, SHI Si-bo, <i>et al.</i>	(2338)
Effects of Aeration on Surface Water Nutrient Dynamics and Greenhouse Gas Emission in Different Straw Returning Paddy Fields	HU Jin-hui, XUE Li-hong, QIAN Cong, <i>et al.</i>	(2348)
Effects of Exogenous Melatonin Treatment on the Growth and Antioxidant System of Rice Seedlings Under Antimony Stress	CHU Yu-tan, LI Yan, HUANG Yi-zong, <i>et al.</i>	(2356)
Life Cycle Prediction Assessment of Energy Saving and New Energy Vehicles for 2035	FU Pei, LAN Li-bo, CHEN Ying, <i>et al.</i>	(2365)
Distribution, Sources, and Behavioral Characteristics of Microplastics in Farmland Soil	BO Lu-ji, LI Bing, ZHANG Kai, <i>et al.</i>	(2375)
Research Progress on the Remediation Technology of Herbicide Contamination in Agricultural Soils	HU Fang-yu, AN Jing, WANG Bao-yu, <i>et al.</i>	(2384)
Research Progress and Prospect of Herbicide Residue Characteristics in Black Soil Region of China	LI Rui, WU Qiu-mei, ZHAO Gui-mei, <i>et al.</i>	(2395)