第39卷 第3期 2024年3月 Vol.39 No.3 Mar. , 2024

王思杰,林金泰,孔浩,等. 基于卫星遥感的氮氧化物排放快速反演方法比较[J]. 地球科学进展, 2024, 39(3): 269-278. DOI: 10.11867/j. issn. 1001-8166.2024.014. [WANG Sijie, LIN Jintai, KONG Hao, et al. Comparison of satellite-based fast inversion methods for nitrogen oxides emissions[J]. Advances in Earth Science, 2024, 39(3): 269-278. DOI: 10.11867/j. issn. 1001-8166.2024.014.]

基于卫星遥感的氮氧化物排放快速 反演方法比较^{*}

王思杰,林金泰*,孔 浩,张宇航,徐呈浩,李春锦,任芳萱 (北京大学物理学院大气与海洋科学系气候与海—气实验室,北京 100871)

摘 要:基于对流层二氧化氮(NO₂)垂直柱浓度卫星遥感数据,实现快速、高空间水平分辨率(5 km 或更高)的氮氧化物(NO_x=NO+NO₂)排放反演,可为空气污染精准治理提供及时、细致的排放数 据。现有多种低计算成本的快速反演方法,如指数修正高斯模型、散度模型和PHLET算法,但其反 演效果尚未得到充分对比分析。以2019年夏季京津冀地区为研究对象,对比了上述3种方法的反 演效果,研究发现,指数修正高斯模型主要适用于点源排放,但在京津冀等排放源密集地区的反演 效果较差;散度模型考虑了在预定NO_x大气寿命情况下的水平输送,能快速识别主要排放源位置, 但存在排放低估和负排放等问题;PHLET算法考虑了水平输送、NO₂垂直柱浓度和NO_x大气寿命的 非线性关系以及卫星像元不规则等因素,对排放的估计较为准确。改善风场数据、填补卫星数据 缺失和改善NO₂化学损失估计是进一步提升排放反演质量的关键。

关键 词:卫星遥感;氮氧化物;排放快速反演;京津冀

中图分类号: P412.27 文献标志码:A 文章编号:1001-8166(2024)03-0269-10

1 引 言

及时、准确、高空间水平分辨率(5 km或更高) 的氮氧化物(NO_x=NO+NO₂)排放数据是空气质量模 拟和精准治污的数据基础。目前氮氧化物排放的 估计方法主要包括自下而上和自上而下两种。自 下而上的排放清单主要基于与污染排放相关的经 济生产统计数据和排放因子^[1]来计算排放量,并借 助人口分布等代用资料将多个部门的省级或国家 级排放总量插值到各空间位置以获得格点化排放 数据集。经济数据和排放因子数据的缺失和不确 定性制约了排放清单方法的分辨率、准确性和时效 性。在高分辨率条件下,代用资料难以反映真实的 污染排放分布^[2-3]。由于这些不足,现有排放清单可 能遗漏了许多重要排放源^[4-7]。

自20世纪以来,快速发展的卫星遥感为全球大 气环境的长期实时监测提供了重要的技术手段,特 别是基于卫星遥感得到的对流层二氧化氮(NO₂)垂 直柱浓度(下文简称柱浓度)数据使得自上而下地 反演 NO_x的排放成为可能。NO_x排放反演的基础思 想如下:局地排放产生 NO_x,NO_x进入大气经传输和 损失2个过程,影响了 NO₂柱浓度的空间分布。NO_x 排放反演算法是以 NO₂柱浓度数据作为输入反向估 计 NO_x排放数据。NO_x包括 NO 和 NO₂,但是常温下 NO 易氧化成 NO₂,所以卫星观测到的只有 NO₂,常 规估计 NO_x排放质量都以 NO₂计算。早期的 NO_x排

收稿日期:2023-10-14;修回日期:2024-01-23.

^{*}基金项目:国家自然科学基金(编号:42075175);第二次青藏高原综合科学考察研究项目(编号:2019QZKK0604)资助.

作者简介:王思杰,博士研究生,主要从事氮氧化物排放反演研究.E-mail: wangsijie@stu.pku.edu.cn

^{*}通信作者:林金泰,教授,主要从事大气化学、卫星遥感和气候变化研究. E-mail: linjt@pku.edu.cn

放反演方法基于局地质量平衡(Local Mass Balance, LMB)假设^[8-11],没有考虑区域之间的污染 输送,因此无法实现可靠的高分辨率排放反演。基 于三维大气化学传输模型的卡尔曼滤波和四维变 分方法比较完整地考虑了大气输送和非线性化学 过程的影响^[12-13],但其需要多次使用大气化学传输 模型导致计算成本很高,而且空间水平分辨率会受 限于大气化学传输模型(Miyazaki等^[12]使用的2.8°× 2.8°的 MIROC-Chem,数百公里尺度;Qu等^[13]使用 的0.5°×0.667°的 GEOS-Chem,数十公里尺度),难 以实现对大区域的快速高分辨率的排放反演。

鉴于这种情况,学术界提出了很多基于简化模 型的低成本快速反演方法。这些方法对影响NO,排 放反演的大气输送过程和非线性化学过程进行了 不同程度的简化,其所需计算资源只有基于三维模 型的四维变分和集合卡尔曼滤波方法的1%甚至更 低[4,13]。其中3种方法具有代表性:一是德国马克斯 一普朗克研究所(Max Planck Institute, MPI)开发的 指数修正高斯模型(Exponentially Modified Gaussian model, EMG),其借助不同风场情况下沿 着风向的NO,柱浓度一维分布(即NO,柱浓度线密 度)和平均风速,对孤立点源的NO,排放和大气寿命 进行估计[14-15]。该模型已被应用于多个区域的火电 厂、工业园区、城市等点源或近似点源的NO.排放估 计[16-19]。随着研究的深入,EMG模型衍生了一些变 式。例如, Valin 等^[20]调整了风向设置, 统一考虑不 同风向时的NO,柱浓度样本,从而更好地探究柱浓 度与风速大小的关系;Liu等^[21]利用静风时(风速小 于2m/s)的NO,柱浓度的空间分布作为NO,排放空 间分布的参考基准,部分缓解了目标点源附近的排 放源的干扰。二是同为MPI开发的散度模型 (Divergence model, DIV),其基于质量守恒原理,假 定反演区域内的NO.大气寿命为预设常数,并根据 卫星NO,观测和风场数据逐日计算NO,局地水平通 量的散度,从而反演得到排放分布^[22-23]。DIV模型 已被应用于南亚超大城市的NO.排放研究^[24]、全球点 源快速识别及清单制作[23,25]等。三是北京大学开发 的 PHLET (Peking University High-resolution Lifetime-Emission-Transport)算法,其考虑一段时间内(例如夏 季)NO,柱浓度与NO,排放的空间分布,表征了局地 非线性化学过程对NO,大气寿命的影响以及水平输 送的作用,并利用伴随(adjoint)算法实现了NO,排 放与大气寿命空间分布的协同反演^[4,26]。PHLET算 法已被应用于中国及周边区域5 km分辨率的NO。 排放反演,揭示了中国排放精细空间特征以及排放 清单缺失的众多人为排放源^[4],并发现了青藏高原 湖泊的显著自然微生物源排放^[27]。然而,对上述3 种方法反演效果的对比研究还十分缺乏。

本文基于2019年夏季京津冀地区的数据,定量 对比了EMG、DIV和PHLET这3种快速反演方法的 效果,并分析了其优势与不足。

2 数 据

2.1 对流层NO₂柱浓度数据

2019年6~8月京津冀地区(113°~120°E, 36°~ 43°N)的对流层 NO₂柱浓度数据来源于基于 TROPOMI卫星探测器的POMINO-TROPOMI v1产 品^[28]。为了保证数据质量,本文对卫星像元数据 (Level 2)进行了筛选,去除数据质量值(Quality Flag, QA_Flag)小于 0.5、卫星天顶角(Viewing Zenith Angle, VZA)大于 80°、云辐射分数(Cloud Radiance Fraction, CRF)超过50%、气溶胶光学厚度 (Aerosol Optical Depth, AOD)大于 3^[4]或者有冰雪 覆盖导致高地表反射率的像元。为了将卫星像元 转换为0.05°×0.05°空间分辨率的网格,我们采用了 一种过采样方法^[26],利用多天的卫星数据来增强空 间分辨率,基于网格面积进行加权平均,构建了夏 季平均的逐日NO₂柱浓度格点化数据。

考虑到TROPOMI NO₂柱浓度存在系统性低估问题^[28-30],我们参考前人做法^[4],借助基于OMI 探测器 POMINO-OMI v2产品的 NO₂柱浓度数据,对 POMINO-TROPOMI v1数据进行调整。在研究区域内,以0.25°×0.25°的空间分辨率对2019年6~8月的 POMINO-OMI 和 POMINO-TROPOMI 的 NO₂柱浓度数据进行相同分辨率的重采样^[4],进一步对2 个数据集进行线性回归拟合,结果显示斜率为1.08,截距为0.29×10¹⁵ molecules/cm²,相关系数为0.94。随后将获得的回归方程应用到初始的0.05°×0.05° 空间分辨率的POMINO-TROPOMI 柱浓度数据进行线性调整。调整前后 NO₂柱浓度如图1所示。

自由对流层NO₂主要来源于闪电和飞机的NO_x 排放以及地面NO_x排放的垂直运输。在人为源区, 虽然高空NO₂浓度低于近地面NO₂浓度,但其寿命 更长,且高空风速较大,空间水平分布更平滑,所以 提供了重要的区域背景。NO₂背景值会影响卫星观 测对于地面NO_x排放变化的响应^[31],因此我们根据 3种算法的原始设置,对背景值进行了不同形式的 去除。PHLET 算法选择研究区域内所有格点的



图 1 POMINO-TROPOMI v1 NO2垂直柱浓度数据 Fig. 1 POMINO-TROPOMI v1 NO2 tropospheric vertical column density data (a)调整前;(b)根据POMINO-OMI数据调整后;(c)在(b)基础上去除背景值(PHLET算法);(d)在(b)基础上去除背景值(DIV方法) (a) Before adjustment; (b) After adjustment based on POMINO-OMI data; (c)~(d) Similar to (b) but with NO2 background removed based on the criterion by PHLET (c) and DIV (d)

NO₂柱浓度的 1% 分位值(1.17×10¹⁵ molecules/cm²) 作为背景值并去除^[4]。DIV 模型选择 5% 分位值 (1.22×10¹⁵ molecules/cm²)作为背景值^[22]。两种背景 值相差 0.05 个单位,对最终 NO_x排放估计的影响为 1%。对于去除背景值后极少量格点(PHLET 算法 和DIV 模型中极少量格点分别占所有格点的 1% 和 5%)存在负值的情况,我们手动将其校正为 0。校 正前这些格点的 NO₂柱浓度为负值,而现实不存在 NO₂柱浓度低于背景值,远离排放源。NO₂柱浓度受 NO_x损失过程和远距离大气传输输入的 NO_x部分影 响。校正前 NO₂柱浓度为负值,意味着 NO_x损失量 的估计过大,难以平衡大气传输输入的 NO,部分。

校正为0值优化了对这些格点的NO_x损失项估计。 EMG模型使用线密度拟合曲线获得背景值估计^[14]。

2.2 风场数据

本文采用2019年6~8月的GEOS-FP再分析风 场数据^[32],选取距离地面500m以下的4层逐3小时 数据进行垂直平均,其空间分辨率为0.3125°× 0.2500°。在DIV和PHLET方法中,为保证风场的 空间分辨率与NO₂柱浓度数据(0.05°×0.05°)一致, 我们对纬向风分量和经向风分量分别进行了二维 线性插值。对于EMG模型,风场数据只是用于静 风(<2m/s)和非静风的主风向判断,未涉及大气输 送计算,所以无需插值。

2.3 人为活动指征数据

为验证反演的排放结果,本文采用2019年的人口密度数据(WorldPop)^[33]和国家干线公路数据(高 德地图)指征人类活动。WorldPop基于2000—2020 年每年行政单位的人口普查和预测计数的全球数 据库,利用高空间水平分辨率地理空间数据集将其 分解为基于网格单元的计数,并依据联合国的人口 估计进行了调整。高德地图拥有细致的中国区域 的道路信息,但是从2021年8月26日开始不再支持 外部访问。为保证空间分辨率一致,通过面积加权 将2种数据插值至0.05°×0.05°的网格。

3 排放反演方法

3.1 指数修正高斯模型EMG

我们应用 EMG 模型反演了北京(116°~117°E, 39.5°~40.5°N)、天津(117°~118°E, 38.5°~39.5°N)和 唐山(118°~119°E, 39.5°~40.5°N)3个城市的 NO_x排 放。EMG 模型的研究对象是孤立点源,其隐含的假 设是:点源的空间尺度远小于 NO₂柱浓度增量区(非 静风时点源下风向的柱浓度相比静风时增加的区 域)的空间尺度。在孤立点源的前提下,假设区域 内的 NO₂柱浓度增量是该点源排放所致。根据增量 区 NO₂柱浓度沿主风向随距离的衰减关系,建立一 维指数修正高斯模型以拟合 NO₂柱浓度的线密度曲 线*M*(*x*);

$$M(x) = E \cdot (e \otimes G)(x) + B \tag{1}$$

$$e(x) = \begin{cases} \exp\left(-\frac{x-X}{x_0}\right), & x \ge X\\ 0, & x < X \end{cases}$$
(2)

$$G(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot \sigma} \cdot \exp\left(\frac{-x^2}{2\sigma^2}\right)$$
(3)

式中:e代表有截断的指数函数e(x),即公式(2); G代表高斯函数G(x),即公式(3);"⊗"是卷积符号, B表示NO₂柱浓度背景值;x是线密度曲线任意一点的位置,X是点源位置, x_0 是e指数衰减距离(取决于风速及大气寿命)。因为点源排放影响下风向的NO₂柱浓度,所以 $x \propto X$ 下风向时,使用 $e(x) = \exp\left(-\frac{x-X}{x_0}\right)$ 指征点源排放的NO₂随距离衰减,修正高斯函数对NO₂浓度线密度的估计; $x \propto X$ 上风向时,NO₂浓度不受点源影响,设置e(x) = 0。 σ 是标准差,也是空间平滑参数,因排放源的实际空间范围、卫星观测像元大小和风场的空间变化而定义主风向的宽度,调整远处格点对中心格点的影响。E 表示大气输送单位距离的 NO₂分子数,结合阿伏伽 德罗常数 N_4 ,风速 w, NO₂摩尔质量 M_{NO_2} , [NO₂]/ [NO_x]浓度比值 r(预设为 0.76^[14]), 计算点源的 NO_x 排放通量 E_{NO_2} :

$$E_{\text{NO}_{x}} = \frac{1}{r} \cdot \frac{E}{N_{A}} \cdot M_{\text{NO}_{2}} \cdot w \tag{4}$$

可以看出,EMG模型可以低成本计算小尺度孤 立点源的NO_x排放,但无法处理具有复杂空间分布 特征的排放源,难以区分空间位置相近的排放源。 此外,该方法忽略了[NO₂]/[NO_x]浓度比值和NO_x 大气寿命随空间的变化,因此影响了NO_x排放估计 的准确性。

3.2 散度模型 DIV

我们将 DIV 模型应用在整个京津冀地区,分辨 率为 0.05°×0.05°。DIV 的核心假设是局地 NO_x排放 量等于区域间 NO_x水平输送量、NO_x的汇两项之和。

$$E = \nabla \cdot \left(\frac{CV}{r}\right) + \frac{C}{r\tau} \tag{5}$$

式中:*C*是NO₂柱浓度,*V*是风矢量,*r*是[NO₂]/[NO_x] 浓度比值(预设为0.76^[22]),*τ*是NO_x的大气寿命(预 设为4小时^[22])。NO_x通量的水平散度表示大气输送 量,其中辐散代表NO_x向外输出,辐合代表NO_x向内 输入。关于大气中NO_x的汇,DIV模型通过预设固 定的NO_x大气寿命计算化学损失。因为TROPOMI 传感器的观测时间是当地时13:30,所以NO_x化学 反应损失主要源于日间NO₂与OH自由基反应^[34]。 该反应是一级化学反应,化学损失用柱浓度和反应 速率计算获得^[22]。反应速率即大气寿命的倒数。

DIV模型不考虑卫星数据误差在不同位置(格 点)的差异。并且,它以预设的大气寿命单一数值 作为输入参数,忽略了非线性化学过程以及大气寿 命的空间变化。DIV模型在计算散度时采用4阶中 央差分^[22],仅考虑部分邻近8个格点(东南西北方向 各2个)的NO₂柱浓度差异所引起的水平输送通量, 没有考虑局地NO_x排放与更大范围内的NO₂柱浓度 的响应关系,特别是在风速较大的情况下会引入较 大的不确定性。因此,其反演得到的格点化NO_x排 放结果受到NO₂柱浓度数据缺失和误差、风场数据 误差、水平输送通量计算误差以及大气寿命假设误 差的影响。

3.3 PHLET算法

我们将PHLET算法应用在整个京津冀地区,分 辨率为0.05°×0.05°。PHLET算法的核心是PHLET 算法、其伴随算法以及实现卫星像元与模拟网格之 间精确匹配的卫星像元与模型网格之间的相互转 化处理(Satellite Conversion Matrix, SCM)方法。 当研究区域较大时(如整个中国地区),PHLET算法 将研究区域分割成多个相互重叠的子区域(5°×5°), 进而以并行方式对每一个子区域分别进行排放反 演,最后将重叠区域的反演结果做平均以降低误 差。本研究选取的京津冀区域(7°×7°)与子区域大 小相近,所以视京津冀区域为唯一的子区域。

PHLET算法是一个二维大气寿命一排放一输送模型,其描述一段时间内(这里为3个月)平均的NO_x排放与平均的NO₂柱浓度分布之间由于水平输送和非线性化学过程而产生的定量响应关系。 PHLET算法忽略子区域内NO₂垂直廓线随空间位置的变化,并假设NO₂柱浓度处于平衡状态,因此局地NO_x净排放与大气输送和NO_x的汇两项平衡;这些基本假设与EMG模型和DIV模型相同。进一步结合PHLET伴随算法,在考虑卫星数据、风场数据和反演算法等因素的误差的基础上,实现了从NO₂柱浓度到NO₂排放的反演。

 $\frac{\partial C}{\partial t} = r \cdot L - \nabla \cdot (V \cdot C) + \nabla \cdot (\alpha \cdot K \cdot \nabla C) = 0 \quad (6)$

$$L = E - \frac{C}{r \cdot \tau} \tag{7}$$

式中:C是NO₂柱浓度,r是[NO₂]/[NO_x]浓度比值,L是局地NO_x净排放,V是风矢量,K是等效扩散系数, α 是扩散系数调整权重因子,E是NO_x排放, τ 是NO_x 的大气寿命。由于NO_x化学的空间异质性,PHLET 算法建立回归模型估计[NO₂]/[NO_x]浓度比值的空 间分布^[4]。

PHLET算法利用平均风场作用下的通量散度 和剩余的等效扩散项来考虑一定时间内平均的大 气输送作用。关于大气中NO_x的汇,PHLET考虑了 局地NO_x大气寿命和NO₂柱浓度间的非线性关系。 假设在子区域内,除NO_x浓度外所有因素(NMVOC 浓度、温度和辐射等)的净效应在空间上是均匀的, 因此在稳态时NO_x的大气寿命仅受到NO₂柱浓度的 影响。当NO_x浓度较低时,NO_x的化学大气寿命会 随其浓度上升而变短;而当NO_x浓度较高时,NO_x的 化学大气寿命会随其浓度上升而变长。由此建立 大气寿命函数,并选择相对清洁的地区,忽略这些 地区的排放,使其局地NO_x净排放L近似等于NO_x 的汇(含化学过程和沉降),从而通过百分位拟合获 得函数系数,并应用到整个子区域内的所有位置 (格点),获得子区域内大气寿命的空间分布。

PHLET算法考虑了在卫星像元对NO₂实际分 布产生扭曲的情况下,卫星像元与模型网格之间的 双向转化过程,将PHLET算法的网格化模拟结果映 射到卫星像元,再映射回模型网格,从而保障了卫 星观测和PHLET模型在空间表征方面的一致性,这 一点对于高分辨率下的排放反演特别重要。3种快 速反演方法的对比如表1所列。

4 结果和分析

4.1 排放空间分布

我们首先对比了 DIV 模型和 PHLET 算法反演 得到的京津冀区域 NO_x排放空间分布(图2)。这里 的 NO_x排放质量以 NO₂质量计,与排放清单对应。 首先,这两种算法得到的排放高低值区域位置具有 共同点[图2(a)和图2(b)]。排放高值区[>5 kg/ (km²·h)]主要集中于城市及沿海港口。其中,北京 是政治和经济中心,人口众多,交通源 NO_x排放量 大;天津是北方航运中心、物流中心和现代制造业

Table 1 Comparison of FIELF, Drv and EACS fast inversion methods			
参数设置	PHLET	DIV	EMG
时间	2019年6~8月		
区域	京津冀区域(113°~120°E, 36°~43°N)		
柱浓度数据	POMINO-TROPOMI v1		
	(VZA≤80°, QA_Flag≥0.5, CRF≤0.5, AOD≤3, 无冰雪覆盖)		
系统性调整	y = 1.08x + 0.29 (单位: 10 ¹⁵ molecules/cm ²)		
背景值去除	选择区域柱浓度数值的1%分位数(1.17×10 ¹⁵	选择区域柱浓度数值的5%分位数(1.22×10 ¹⁵	线密度拟合估计
	molecules/cm ²)作为背景值去除	molecules/cm ²)作为背景值去除	
NO _x 大气寿命	逐格点变化;与排放量协同反演	单一预设值	拟合值
$[NO_2]/[NO_x]$	回归模型[4]	$0.76^{\left[14,22 ight]}$	0.76 ^[14]
水平输送	一段时间内的平均通量散度和等效扩散	逐日水平通量	E指数和高斯分布
空间水平分辨率	$0.05^{\circ} \times 0.05^{\circ}$	$0.05^{\circ} \times 0.05^{\circ}$	点源
计算成本	约3核时	<1 核时	<1 核时

表 1 PHLET、DIV 和 EMG 快速反演方法对比 Table 1 Comparison of PHLET, DIV and EMG fast inversion methods







(a)散度模型(DIV)反演结果;(b)PHLET算法的反演结果;(c)NO_x排放通量的绝对差异(PHLET减DIV);(d)人口密度(彩色图) 及国家干线公路网络(灰线)

(a) Inversion result of Divergence model; (b) Inversion result of Peking University High-resolution Lifetime-Emission-Transport (PHLET);
 (c) The absolute difference between PHLET and DIV; (d) Population density (colored map) and highways (gray lines)

基地,NO_x排放高值集中在天津港附近,交通源排放 贡献大;唐山工业发达,工业源NO_x排放多,存在3个 排放高值区域。排放低值区[<0.5 kg/(km²·h)]主要 出现在河北北部和河北山西边界处等区域,这些区 域以山地为主,人为活动少。

然而,DIV模型和PHLET算法得到的NO_x排放 源空间分布特征存在明显差异。DIV反演结果中存 在大量的负排放格点。造成负排放的可能原因是 DIV预定的NO_x大气寿命在这些格点偏高,导致大 气NO_x的汇估计偏低,无法平衡NO_x的大气输送量。 所以,在京津冀区域大范围内,PHLET算法反演的 排放比DIV反演的排放平均高0.85 kg/(km²·h);在 北京和唐山等高排放区域,二者的最大差值可达 9.29 kg/(km²·h)[图2(c)]。在部分格点,PHLET反 演的排放比DIV的平均低0.48 kg/(km²·h),天津港 附近差值最大为6.06 kg/(km²·h)。

整体而言,PHLET算法反演的排放的空间分布 形态与人为活动状况较为匹配[图2(d)],例如天津 港高值区、唐山3个高值区以及北京城区和首都机 场相连的逗号状高值区。相比之下,DIV模型反演 的排放结果中这些高值区的空间形态呈散点状。 这可能是因为DIV模型对大气寿命的简单处理,以 及其只考虑了局地NO,排放与其邻近格点的NO,柱 浓度的响应关系,未考虑输送到更远格点的NO,柱 浓度信息,从而低估污染源处的排放量,高估其邻 近格点的排放量,低估排放的空间梯度。在一些地 形复杂区域,如北京西北侧的张家口、东北侧的承 德和山西的城市等,人为活动的空间分布形态受限 于地形而呈现条带状[图2(d)]。在这些区域,DIV 模型反演的NO,排放的空间分布形态为散点状,空 间梯度小,难以识别排放源的具体位置,而PHLET 反演出了条带状排放,因为PHLET考虑了局地NO. 排放与更长距离格点的大气输送的响应关系,并且 其特有的卫星像元与模型网格之间的相互转化处 理(Satellite Conversion Matrix, SCM)尽可能保证 了模型模拟与卫星观测之间的空间采样可比性。

为进一步分析 DIV 模型和 PHLET 算法的排放 空间分布,我们采用了 MEIC (v1.3, 0.25°×0.25°, 2017年6~8月)、EDGAR (v5.0, 0.1°×0.1°, 2015年6~ 8月)、CEDS (v2021_04_21, 0.5°×0.5°, 2019年6~8 月)和 PKU-NO_x (v2, 0.1°×0.1°, 2014年6~8月)4种 排放清单^[5,35:37],并选择各清单中最接近2019年夏季 的排放结果。

图 3 展示了 PKU-NO, 、EDGAR、MEIC、CEDS、 PHLET和DIV估计的京津冀地区所有格点的NO.排 放通量情况。其排放通量的95%分位数值依次为 3.08 kg/(km²·h) 2.36 kg/(km²·h) 3.72 kg/(km²·h) 2.21 kg/(km²·h)、3.64 kg/(km²·h)和2.49 kg/(km²·h)。 京津冀区域95%的格点的排放通量小于5kg/(km²·h)。 排放清单受到空间水平分辨率限制,难以抓住小尺 度的NO,排放特征,其排放通量数值范围明显小于 PHLET和DIV。其次,4种排放清单和PHELT以及 DIV 的排放通量平均值依次为 0.76 kg/(km²·h)、 $0.77 \text{ kg/(km^2 \cdot h)} 0.93 \text{ kg/(km^2 \cdot h)} 0.69 \text{ kg/(km^2 \cdot h)}$ 0.90 kg/(km²·h)和0.64 kg/(km²·h)。可以看到,排放 清单的平均值因受高排放格点贡献而更接近75% 分位值,反映出排放清单中高排放格点(大于50% 分位值)对区域总排放量的贡献比PHLET和DIV更 大。PHLET 排放通量的平均值与 MEIC 清单接近。 DIV的排放通量平均值最低,这与其存在的负排放 格点以及排放通量在大部分地区都低于 PHLET 的 情况(图2)有关。



图 3 京津冀区域所有格点的 NO_x 排放通量箱式图 Fig. 3 Boxplot of NO_x emission flux in Beijing-Tianjin-Hebei region

箱体下端是25%(25%分位数为Q1),上端是75%(75%分位数为 Q3),箱体黑线是50%,黑色实心圆点是平均值,上下箱须 分别表示95%和最小值

The box extends from 25% (The first quartile, Q1) to 75% (the third quartile, Q3) of the data, with a line denoting the median and a dot denoting the mean. The whiskers cover the 0~95% percentiles of the data

4.2 城市排放总量

我们根据 EMG 模型中所定义的城市区域范围,选择北京、天津和唐山3个城市,计算4种排放 清单、PHLET、DIV和 EMG模型得到的各城市排放 总量(图4)。在 MEIC 排放清单中,3个城市的排放 总量较为接近,分别为2.81×10⁴ kg/h、2.84×10⁴ kg/h 和3.11×10⁴ kg/h。相对于 MEIC,PKU-NO_x清单依次 低了 0.54×10⁴ kg/h、0.44×10⁴ kg/h和 0.88×10⁴ kg/h; CEDS 与 MEIC 的差异为 1.43×10⁴ kg/h、 -0.27×10^4 kg/h和 -1.47×10^4 kg/h; 而 EDGAR 与 MEIC 的差异 为 1.65×10⁴ kg/h、 -0.03×10^4 kg/h和 -1.21×10^4 kg/h。 可见,不同排放清单的差异明显。在下面的分析



Tangshan urban areas

中,考虑到MEIC清单比国际清单CEDS和EDAGR 采用更多的中国经济和排放因子数据,并且数据年 份比PKU-NO_x更接近2019年,因此我们主要利用 MEIC清单对比验证PHLET算法、DIV模型和EMG 模型在京津冀区域的排放反演结果。

PHLET算法估计的 3 个城市排放总量为 2.17× 10⁴ kg/h、2.65×10⁴ kg/h和 3.07×10⁴ kg/h,与 MEIC 清 单的差异依次为-0.64×10⁴ kg/h、-0.19×10⁴ kg/h和 -0.03×10⁴ kg/h,该差异整体上小于另外 3 种排放清 单与 MEIC 的差异。此外,MEIC 清单针对的是 2017年,而中国 NO_x的排放在 2017—2019年略有减 少^[38-39],这是 PHLET 结果低于 MEIC 的部分原因。 相比之下,DIV 模型反演结果为 1.75×10⁴ kg/h、2.10× 10⁴ kg/h和 2.50×10⁴ kg/h,与 MEIC 的差异分别为 -1.07×10⁴ kg/h、-0.73×10⁴ kg/h和-0.61×10⁴ kg/h,大 于 PKU-NO_x、PHLET 与 MEIC 的差异。

EMG模型估计的北京、天津和唐山的排放总量 分别为3.71×10⁵ kg/h、2.88×10⁵ kg/h和1.00×10⁶ kg/h, 比DIV和PHLET方法以及4种排放清单结果高十几 倍甚至数十倍(图4)。EMG模型的排放结果异常偏 高的主要原因是每一个城市区域内部均存在多排放 源,孤立点源的前提条件未得到满足。也就是说,单 个城市内部存在多个排放源产生的NO₂柱浓度增量 区,并且这些增量区重叠交错,因此EMG模型无法可 靠地描述多源NO_x排放与NO₂柱浓度间的响应关系。

5 讨论与结论

本文针对京津冀地区 2019年夏季 NO_x排放,借 助 POMINO-TROPOMI 卫星 NO₂柱浓度数据和4个 排放清单,对比分析了 EMG、DIV 和 PHLET 3 种具 有代表性的星基 NO_x排放快速反演方法。研究发 现,一维的 EMG 模型适用于点源排放的快速反演, 但其难以适用于城市内部排放源密集的京津冀地 区。DIV 模型能快速识别排放源,但仅考虑相邻格 点间的输送,并预设了大气寿命固定值,因此存在 排放低估和负排放问题,难以解析京津冀地区排放 的精细分布特征。PHLET 算法考虑了局地 NO₂柱 浓度和 NO_x大气寿命间的非线性关系、水平输送的 影响、不规则卫星像元和模型网格的双向转换以及 NO₂柱浓度数据误差的空间分布,因此能更好地反 演出京津冀地区排放分布复杂特征。

目前快速排放反演方法面临一些共同的问题 与挑战。首先,受到云和地面反射率等因素的影 响,卫星NO,柱浓度数据存在缺失,限制了排放反演 的时间分辨率。例如,在中国区域,TROPOMI逐日 资料中包含有效数据的格点仅约占总格点数的 50%。为实现高空间水平分辨率排放反演,现有算 法均采取长时间平均的柱浓度或通量作为输入,牺 牲了时间分辨率。未来可通过融合多源卫星数据 来增加有效数据量,从而提升排放反演的时间分辨 率。其次,大气输送通量计算依赖风场数据,因此 受到风场数据的时空分辨率和不确定性的影响,例 如,目前公开的长时间再分析气象资料的空间分辨 率都在0.25°或更低,明显低于排放反演模型的分辨 率(0.05°)。再次,NO,大气寿命的时空变化对于汇 项计算至关重要。大气寿命和汇项主要受化学反 应影响,而化学反应受温度和辐射等因素影响。现 有方法假设大气寿命在研究区域内为固定值(包括 EMG模型对于每一个城市,以及DIV模型对于整个 区域),或者大气寿命拟合参数为固定值(PHLET算 法在每一个子区域),因此,如何更好地表征大气寿 命的时空异质性是将排放反演算法拓展至不同季 节和/或区域的关键问题。

自 2020 年以来, GEMS 和 TEMPO 静止卫星探 测器发射成功, 分别在东亚和北美地区实现了白天 逐小时 NO₂遥感监测^[40-42], 欧洲也将发射类似的探 测器。融合 TROPOMI 等极轨卫星探测器和 GEMS 等静止卫星探测器数据, 实现快速、准实时和精细 的排放反演是下一步发展方向。特别是, 应该充分 利用静止卫星高时间分辨率的优势, 完善快速反演 方法以实现日内排放变化反演, 定量在人为活动和 自然因素影响下的 NO_x排放变化, 揭示未知的排放 源和污染过程, 厘清人类活动的环境效应, 为大气 环境精准治理提供关键数据基础。

参考文献(References):

- 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.
- [2] ZHENG B, HUO H, ZHANG Q, et al. High-resolution mapping of vehicle emissions in China in 2008 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, 14(18): 9 787-9 805.
- [3] GENG G N, ZHANG Q, MARTIN R V, et al. Impact of spatial proxies on the representation of bottom-up emission inventories: a satellite-based analysis [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(6): 4 131-4 145.
- [4] KONG H, LIN J T, CHEN L L, *et al.* Considerable unaccounted local sources of NO_x emissions in China revealed from satellite[J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, 56(11): 7 131-7 142.

- [5] ZHENG B, CHENG J, GENG G N, et al. Mapping anthropogenic emissions in China at 1 km spatial resolution and its application in air quality modeling [J]. Science Bulletin, 2021, 66 (6): 612-620.
- [6] MCLINDEN C A, FIOLETOV V, SHEPHARD M W, et al. Space-based detection of missing sulfur dioxide sources of global air pollution[J]. Nature Geoscience, 2016, 9: 496-500.
- [7] van DAMME M, CLARISSE L, WHITBURN S, et al. Industrial and agricultural ammonia point sources exposed [J]. Nature, 2018, 564: 99-103.
- [8] MARTIN R V, JACOB D J, CHANCE K, et al. Global inventory of nitrogen oxide emissions constrained by space-based observations of NO₂ columns[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2003, 108(D17). DOI:10.1029/2003JD003453.
- [9] LAMSAL L N, MARTIN R V, PADMANABHAN A, et al. Application of satellite observations for timely updates to global anthropogenic NO_x emission inventories[J]. *Geophysical Re*search Letters, 2011, 38(5). DOI: 10.1029/2010GL046476.
- [10] LIN J T, LIU Z, ZHANG Q, et al. Modeling uncertainties for tropospheric nitrogen dioxide columns affecting satellite-based inverse modeling of nitrogen oxides emissions[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(24): 12 255-12 275.
- [11] GU D S, WANG Y H, SMELTZER C, et al. Anthropogenic emissions of NO_x over China: reconciling the difference of inverse modeling results using GOME-2 and OMI measurements
 [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2014, 119(12): 7 732-7 740.
- [12] MIYAZAKI K, ESKES H J, SUDO K, et al. Decadal changes in global surface NO_x emissions from multi-constituent satellite data assimilation [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(2):2 807-2 837.
- [13] QU Z, HENZE D K, CAPPS S L, et al. Monthly top-down NO_x emissions for China (2005-2012) : a hybrid inversion method and trend analysis [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2017, 122(8): 4 600-4 625.
- [14] BEIRLE S, BOERSMA K F, PLATT U, et al. Megacity emissions and lifetimes of nitrogen oxides probed from space [J]. Science, 2011, 333(6 050): 1 737-1 739.
- [15] JIN X M, ZHU Q D, COHEN R C. Direct estimates of biomass burning NO_x emissions and lifetimes using daily observations from TROPOMI[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, 21(20): 15 569-15 587.
- [16] LUZ, STREETS DG, de FOY B, et al. Emissions of nitrogen oxides from US urban areas: estimation from Ozone Monitoring Instrument retrievals for 2005-2014[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, 15(18): 10 367-10 383.
- [17] de FOY B, LU Z F, STREETS D G, *et al.* Estimates of power plant NO_x emissions and lifetimes from OMI NO₂ satellite retrievals[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, 116: 1-11.
- [18] LIU F, BEIRLE S, ZHANG Q, et al. NO_x emission trends over Chinese cities estimated from OMI observations during 2005 to 2015 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(15): 9 261-9 275.
- [19] LANGE K, RICHTER A, BURROWS J P. Variability of nitrogen oxide emission fluxes and lifetimes estimated from Sentinel-5P TROPOMI observations[J]. Atmospheric Chemistry and

Physics, 2022, 22(4): 2745-2767.

- [20] VALIN L C, RUSSELL A R, COHEN R C. Variations of OH radical in an urban plume inferred from NO₂ column measurements
 [J]. *Geophysical Research Letters*, 2013, 40(9): 1 856-1 860.
- [21] LIU F, BEIRLE S, ZHANG Q, *et al.* NO_x lifetimes and emissions of cities and power plants in polluted background estimated by satellite observations [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(8): 5 283-5 298.
- [22] BEIRLE S, BORGER C, DÖRNER S, et al. Pinpointing nitrogen oxide emissions from space [J]. Science Advances, 2019, 5(11). DOI: 10.1126/sciadv.aax9800.
- BEIRLE S, BORGER C, DÖRNER S, et al. Catalog of NO_x emissions from point sources as derived from the divergence of the NO₂ flux for TROPOMI [J]. Earth System Science Data, 2021, 13(6): 2 995-3 012.
- [24] de FOY B, SCHAUER J J. An improved understanding of NO_x emissions in South Asian megacities using TROPOMI NO₂ retrievals [J]. *Environmental Research Letters*, 2022, 17 (2). DOI: 10.1088/1748-9326/ac48b4.
- [25] BEIRLE S, BORGER C, JOST A, et al. Improved catalog of NO_x point source emissions (version 2) [J]. Earth System Science Data, 2023, 15(7): 3 051-3 073.
- [26] KONG H, LIN J T, ZHANG R X, et al. High-resolution (0.05°×0.05°) NO_x emissions in the Yangtze River Delta inferred from OMI [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, 19(20): 12 835-12 856.
- [27] KONG H, LIN J T, ZHANG Y H, et al. High natural nitric oxide emissions from lakes on Tibetan Plateau under rapid warming[J]. Nature Geoscience, 2023, 16(6): 474-477.
- [28] LIU M Y, LIN J T, KONG H, et al. A new TROPOMI product for tropospheric NO₂ columns over East Asia with explicit aerosol corrections [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2020, 13(8): 4 247-4 259.
- [29] GRIFFIN D, MCLINDEN C A, BOERSMA F, et al. High resolution mapping of nitrogen dioxide with TROPOMI: first results and validation over the Canadian oil sands [J]. Geophysical Research Letters, 2019, 46(2): 1 049-1 060.
- [30] van GEFFEN J, BOERSMA K F, ESKES H, et al. S5P TRO-POMI NO₂ slant column retrieval: method, stability, uncertainties and comparisons with OMI [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2020, 13(3): 1 315-1 335.
- [31] QU Z, JACOB D J, SILVERN R F, et al. US COVID-19 shutdown demonstrates importance of background NO₂ in inferring NO_x emissions from satellite NO₂ observations [J]. *Geophysical Research Letters*, 2021, 48(10). DOI: 10.1029/2021GL092783.
- [32] LUCCHESI R. File specification for GEOS FP [EB/OL].
 GMAO Office Note No. 4 (Version 1.2), 2018. 61. [2023-05-08]. http://gmao.gsfc.nasa.gov/pubs/office_notes.
- [33] School of Geography and Environmental Science, University of Southampton; Department of Geography and Geosciences, University of Louisville; Departement de Geographie, Universite de Namur and Center for International Earth Science Information Network (CIESIN), Columbia University. Global high resolution population denominators project-funded by the bill and melinda gates foundation (opp1134076) [Z]. 2018. DOI: 10.5258/SOTON/WP00647.

- [34] SEINFELD J H. Urban air pollution: state of the science [J]. Science, 1989, 243(4 892): 745-752.
- [35] 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. DOI: 10.1038/ s41597-020-0462-2.
- [36] HUANG T B, ZHU X, ZHONG Q R, et al. Spatial and temporal trends in global emissions of nitrogen oxides from 1960 to 2014[J]. Environmental Science & Technology, 2017, 51 (14): 7 992-8 000.
- [37] FENG L Y, SMITH S J, BRAUN C, et al. The generation of gridded emissions data for CMIP6[J]. Geoscientific Model Development, 2020, 13(2): 461-482.
- [38] SMITH S J, AHSAN H, MOTT A, et al. CEDS v-2021-02-05
 Emission Data 1975-2019 [DS]. 2021. DOI: 10.25584/PNNL-DataHub/1779095.
- [39] National Bureau of Statistics of China, Ministry of Ecology and

Environmrnt of the People's Republic of China. China statistical yearbook on environment [M]. Beijing: China Statistical Press, 2021. [中华人民共和国统计局,中华人民共和国生态环境部.中国环境统计年鉴[M].北京:中国统计出版社, 2021.]

- [40] KIM J, JEONG U, AHN M H, et al. New era of air quality monitoring from space: Geostationary Environment Monitoring Spectrometer (GEMS) [J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 2020, 101(1): E1-E22.
- [41] ZOOGMAN P, LIU X, SULEIMAN R M, et al. Tropospheric Emissions: Monitoring of Pollution (TEMPO) [J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2017, 186: 17-39.
- [42] ZHANG Y H, LIN J T, KIM J, et al. A research product for tropospheric NO₂ columns from geostationary environment monitoring spectrometer based on Peking University OMI NO₂ algorithm [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2023, 16(19):4 643-4 665.

Comparison of Satellite-Based Fast Inversion Methods for Nitrogen Oxides Emissions*

WANG Sijie, LIN Jintai^{*}, KONG Hao, ZHANG Yuhang, XU Chenghao, LI Chunjin, REN Fangxuan

(Laboratory for Climate and Ocean-Atmosphere Studies, Department of Atmospheric and Oceanic Sciences, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: Satellite-based fast inversion for nitrogen oxides ($NO_x=NO+NO_2$) emissions at low computational costs and high resolutions (≤ 5 km or finer) can provide timely, detailed data to support targeted pollution control. To date, a variety of low-cost fast inversion methods have been developed, such as the Exponentially Modified Gaussian (EMG), Divergence (DIV), and the PHLET (Peking University High-resolution Lifetime-Emission-Transport) models. However, quantitative comparisons of these methods and their emission results are lacking. This study compares the above three inversion methods for the Beijing-Tianjin-Hebei region during the summer of 2019. We found that the EMG model, which was designed for point source emission inversion, performs poorly in Beijing-Tianjin-Hebei due to dense emission sources even within each city. The DIV considers the horizontal transport of NO_x with a predetermined (fixed) lifetime and can quickly identify the locations of emission sources; however, it tends to underestimate the emission amounts and even leads to negative emissions in many places. PHLET algorithm considers the horizontal transport of NO_2 , the nonlinear relationship between local NO_2 concentrations and lifetimes, and the two-way matching between irregular satellite pixels and regular model grid cells, resulting in more reliable emission estimates. Filling in missing satellite data through data fusion, improving wind data resolution and accuracy, and improving NO_x chemical loss estimation will significantly enhance the quality of emission inversion.

Key words: Satellite remote sensing; Nitrogen oxides; Fast emission inversion; Beijing-Tianjin-Hebei.

^{*} Foundation item: Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 42075175); The Second Tibetan Plateau Scientific Expedition and Research Program (Grant No. 2019QZKK0604).

First author: WANG Sijie, Ph. D student, research area includes satellite remote sensing. E-mail: wangsijie@stu.pku.edu.cn

^{*} Corresponding author: LIN Jintai, Professor, research areas include atmospheric chemistry, satellite remote sensing, and climate change. E-mail: linjt@pku.edu.cn