

利用 MOPITT 卫星资料计算 CO 源排放的新方法

林云萍 赵春生 彭丽 方圆圆

(北京大学物理学院大气科学系, 北京 100871; Atmospheric and Oceanic Sciences Program, Princeton University, New Jersey 08540, USA. E-mail: yplin@pku.edu.cn)

摘要 利用MOPITT卫星资料和MOZART模式, 提出一种新的计算CO源排放的方法. 大气中CO浓度的变化由排放、传输、化学转化及沉降等物理化学过程决定, 这些过程的相互关系可从CO的收支平衡方程分析得到. 利用Horowitz源排放清单和MOZART模式模拟这些物理化学过程, 分析各个格点上CO浓度与各物理化学过程的相互关系, 利用这个变化关系, 结合 2004 年MOPITT观测的月平均CO浓度, 即可建立 2004 年各月CO的收支平衡方程, 计算出 2004 年各月各格点上CO的排放量. 该方法直接明了, 易于更新, 可以得到特定时间分辨率的源排放, 因此更接近实际源排放的情况. 利用该方法得到的CO新排放分布特征与Horowitz源排放大体一致, 但强度明显大于后者, 约为后者的1~2倍, 新源更能代表21世纪初CO源的月排放情况, 在人类活动影响较大的东亚和美国东部地区, Horowitz源显著低估了实际的CO源排放.

关键词 CO MOZART MOPITT 源排放

痕量气体源排放清单的制订和改进不仅对于科学研究有很重大的意义, 同时它在政策制定方面也有着指导性的作用. 作为大气化学模拟前提条件, 一个准确的源排放清单, 对于正确模拟出痕量气体的浓度及其分布, 以及进一步分析他们对于大气辐射, 大气化学特性, 以及气候变化和全球环境变化等具有重要的作用.

目前计算源排放清单的方法主要有两种: 传统地空反演法和Bayesian synthesis inversion法. 地空反演法^[1,2]是基于典型源测量结果, 根据中国测定的源排放因子, 结合中国国家、部委和各省市统计年鉴公布的源排放数据, 进行源排放清单计算的. 这种方法的思路比较直接, 但是由于排放单位统计的质量和数量, 源的具体地理位置及源排放强度的变化等存在较大的不确定性, 这样的源时间代表性差, 更新的速度缓慢, 滞后性明显. 这种方法反演的结果相对于实际的排放来说存在较大的不确定性, 尤其是东亚地区, 这一差异格外突出. Bayesian synthesis inversion法^[3~7]结合卫星或地面观测与化学传输模式, 建立观测浓度值与源排放的线性关系, 利用最小二乘法或优化该线性关系求解源排放, 使得模式模拟结果与观测值匹配最好. 该方法必须先假定背景误差协方差和观测误差协方差已知, 同时该方法涉及

一个把模式变量转换为观测变量的非线性观测算子, 该算子的获得可以通过线性化有限差分方程得到, 也可以通过敏感性试验来实现, 前者需要花费相当大的计算量, 后者又是一个很复杂的设计过程.

CO是大气中含碳量第三的成分, 仅次于CO₂(约340 $\mu\text{L}\cdot\text{L}^{-1}$)和CH₄(1.6~1.7 $\mu\text{L}\cdot\text{L}^{-1}$), 是全球碳循环中一种重要的中介气体^[8]. CO并不强烈吸收陆地发射的红外辐射, 不足以作为一个直接的温室气体, 但是它能与对流层OH自由基发生反应, 消耗大约60%的OH自由基, 是OH自由基主要的汇; 同时, 由于它消耗OH自由基减弱了大气的氧化性, 阻碍CH₄等气体的氧化, 间接地影响了大气中CH₄含量和生命时间; CO还是对流层O₃的重要前体物, Tie等人^[9]的研究表明中国东部地区大约54%的臭氧来自于CO的氧化.

CO主要的排放源有: 化石燃料燃烧, 生物质燃烧以及自然界CH₄, NMHC的氧化等^[10]. 而它的汇则最主要是被OH自由基氧化成CO₂, 此外还有一部分耗散到平流层中, 另一部分被土壤生物氧化. IPCC 2001 报告^[10]给出了用不同的方法做出的CO收支情况, 氧化产生和直接排放两种源强度相当, 其中CH₄氧化、生物体燃烧和化石燃料燃烧是最重要的三个组成; 而CO与OH自由基的反应消耗了大约90% CO总量. Ma等人^[11]研究表明, 目前的源排放清单在对中

国地区CO源排放量的估计上存在很大的不确定性. Peng等人 [12]研究表明MOZART模拟计算的CO分布比MOPITT的CO浓度要低 20% ~ 40%, 这个差异很可能是由于 20 世纪 90 年代EDGAR的源资料低估了CO的排放引起的. 方圆圆等人 [13,14]指出东亚是CO高浓度分布区, 且在近几年内有明显增长的趋势, 冬季更为突出, 这一结果更加显示了进一步研究全球, 特别是亚洲地区季或月尺度上的CO源排放的重要性和必要性.

目前的源排放清单大多是基于年尺度的排放, 缺乏较好的月尺度的排放清单. 为了得到最新的月尺度的CO源排放的数据, 本文结合MOPITT卫星观测资料和Horowitz等人 [15]源排放清单, 利用MOZART模拟大气中CO浓度变化的物理化学过程, 研究各物理化学过程随CO浓度的变化规律, 在此规律基础上提出一种新的计算CO源排放的方法, 该方法得到的结果可以体现全球最新CO源的月排放情况. 而且该方法直观简便, 便于实时更新订正.

1 方法

1.1 MOPITT 数据与 MOZART 模式介绍

MOPITT(Measurement of Pollution In The Troposphere)是由加拿大COM DEV公司研制的搭载在美国EOS(Earth Observation System)/Terra卫星上的一个 8 通道的气体相关光谱仪 [16]. 它于 1999 年 12 月随着美国宇航局(NASA)的TERRA卫星的发射而升空工作. MOPITT从 2000 年 3 月份开始向地面提供观测数据, 到目前为止已经运行了将近 5 a的时间. MOPITT目前能够提供的数据主要是CO的柱总量和 6 层(850, 700, 500, 350, 250, 150 hpa)垂直廓线混合比数据. 该数据的水平分辨率可以达到 22 km, 精度优于 1%, 而垂直分辨率最高可以达到 3 km, 精度优于 10%. 这里使用的是MOPITT level 2 version 3 版本的数据¹⁾, 这一数据经过定标和校准 [17,18]能用于进一步的科学研究. MOPITT第一次连续全面地提供了覆盖全球范围的CO观测数据, MOPITT的CO数据为估计CO源排放提供了一个重要数据基础.

MOZART-2(MODEL FOR OZONE AND RELATED TRACES version-2)是由美国国家大气研究中心(NCAR)发展的全球大气化学传输模式, 主要用于

模拟对流层臭氧及其前提物的分布和收支预算. MOZART-2 可模拟 63 个化学物种从地面到 3 mb(~35 km)的全球分布, 每个物种都可从解各自的质量守恒方程得到. MOZART-2 兼容多种气象场输入, 这里采用NCEP 每天 4 次(6 h一次)的气象场数据, 模拟时间为 2003-01~2005-06. 各物种的源排放清单主要来自Horowitz等人 [15], 包括化石燃料燃烧、生物燃烧和生物质燃烧、生物和土壤排放以及海洋排放等 [15], 这些源清单主要代表 20 世纪 90 年代的情况. 模式输出结果的格点分辨率为 3.82°×3.75°(纬度×经度). 模式的详细介绍及初始源排放清单见Horowitz等人 [15].

图 1 为MOZART模拟CO柱总量与MOPITT观测值之间的比值, 可见MOZART模拟的CO浓度明显低于MOPITT的CO观测浓度, 尤其是2004年4~5月, 在陆地上, MOZART模拟值比MOPITT观测值低 30%~50%, 但在2004年7, 10月, 在南亚和东南亚的部分地区, MOZART模拟值却明显高于MOPITT CO浓度, 模拟值是观测值的 1~2 倍. IPCC 2001 报告指出, 受人类工业活动等影响, 近些年来全球CO浓度以 6 pL·L⁻¹·a⁻¹的趋势增长 [10]. 由于MOZART模拟时采用的源资料代表 20 世纪 90 年代的源排放情况, MOZART模拟值与MOPITT观测值间的差异很可能是这一源资料与2004年CO实际排放情况间的差异引起的.

1.2 CO 源排放计算方法

大气中影响 CO 浓度变化的物理化学过程有排放、传输过程、化学转化过程及沉降过程(包括土壤吸收)等, 这些过程构成了 CO 的收支平衡方程. 以 $\frac{dC}{dt}$, $\frac{dC}{dt}|_{emis}$, $\frac{dC}{dt}|_{trans}$, $\frac{dC}{dt}|_{chemprod}$, $\frac{dC}{dt}|_{chemloss}$, $\frac{dC}{dt}|_{drydep}$ 分别代表 CO 浓度、源排放、传输量、化学产生量、化学消耗量及干沉降量随时间的变化率, 则 CO 的收支平衡方程可表示为

$$\frac{dC}{dt} = \frac{dC}{dt}|_{emis} + \frac{dC}{dt}|_{trans} + \frac{dC}{dt}|_{chemprod} - \frac{dC}{dt}|_{chemloss} - \frac{dC}{dt}|_{drydep} \quad (1)$$

1) <http://www.eos.ucar.edu/mopitt/data/index.html>

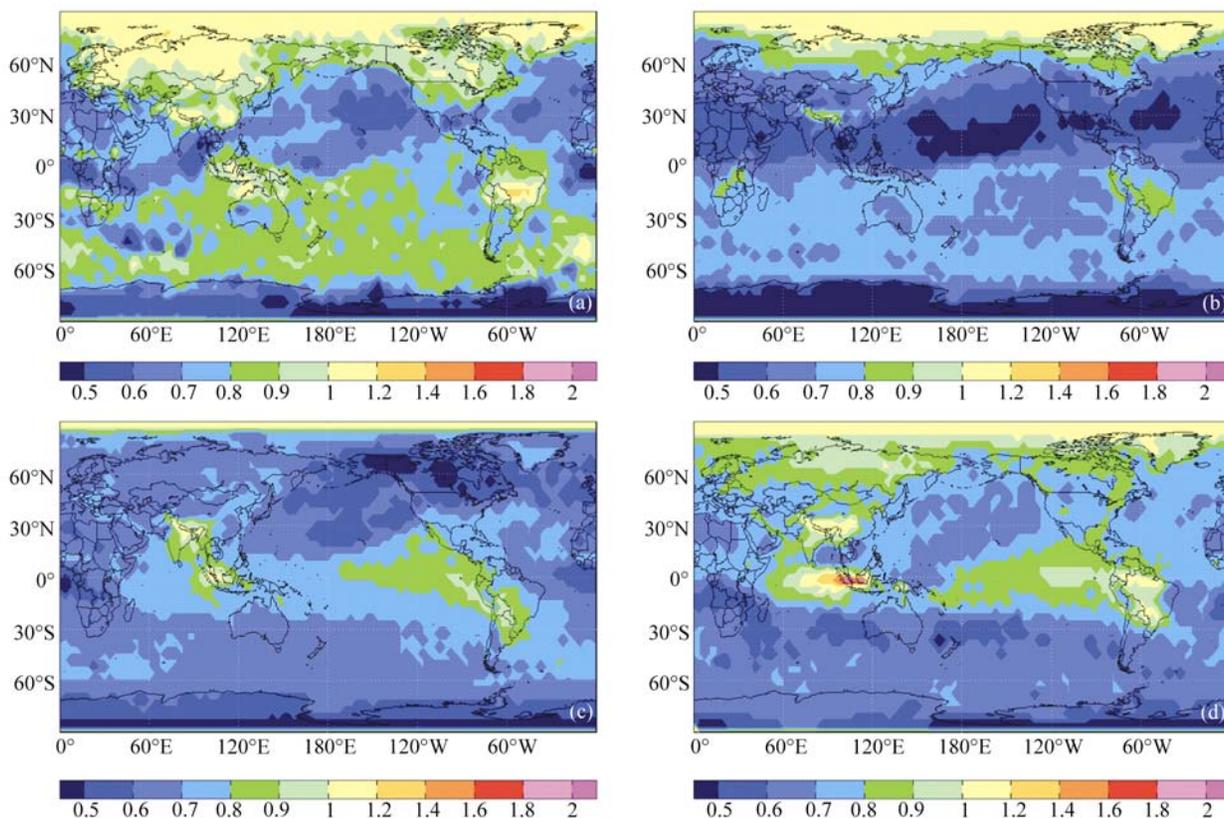


图1 2004年1, 4, 7, 10月 MOZART 模拟 CO 柱总量与 MOPITT 观测值的比值
(a) 1月, (b) 4月, (c) 7月, (d) 10月

上述这些过程共同作用, 影响大气中 CO 浓度的大小, 但同时可以发现, 上述方程中, 除排放项 $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{emis}$ 与化学产生项 $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemprod}$ 外, 其余各项在影响 CO 浓度的同时, 反过来也受到浓度大小的影响. 而化学产生项 $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemprod}$ 只与反应物的浓度有关, 与 CO 浓度变化关系不大. 由 MOZART 模式, 可以得到各个格点上 CO 浓度及其收支方程各项的模拟结果, 分析这些结果, 可以发现收支方程中各项 ($\left. \frac{dC}{dt} \right|_{trans}$, $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemloss}$, $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{drydep}$) 与 CO 浓度之间有直接的变化关系, 那么利用这个变化关系, 结合 2004 年 MOPITT 观测的月平均 CO 浓度, 就可以得到 2004 年各月 CO 各个物理化学过程的变化情况, 建立 2004 年各月 CO 的收支平衡方程, 由这些方程计算出 2004 年各月各格点上 CO 的排放量.

1.2.1 传输过程 某格点的 CO 质量通量为单位时间内通过该格点的 CO 的质量. 设 CO 浓度为 $[CO]$, $xflux$ 为东西方向通量, $yflux$ 为南北方向通量, 该层垂直于 $xflux$ 的格点面积为 S_{yz} , 该层垂直于 $yflux$ 的格点面积为 S_{xz} , u 代表纬向风, v 代表经向风, 则对于任一时间步长 Δt ,

$$xflux = [CO]uS_{yz}\Delta t, \quad yflux = [CO]vS_{xz}\Delta t. \quad (2)$$

某格点的质量传输净通量大小不仅取决于该格点本身的质量通量, 同时还受其周边格点的质量通量输送影响. 图 2 表示任一格点质量通量传输示意图. 图 2 中 $xflux_{in}$, $yflux_{in}$ 表示周边格点对该格点的可能的质量通量输入方向, $xflux_{out}$, $yflux_{out}$ 表示该格点可能的质量通量输出方向. 总的来看, 该格点净质量通量 $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{trans}$ 为所有输入和输出该格点的质量通量之差, 即

$$\left. \frac{dC}{dt} \right|_{trans} = (xflux_{in} - xflux_{out}) + (yflux_{in} - yflux_{out}), \quad (3)$$

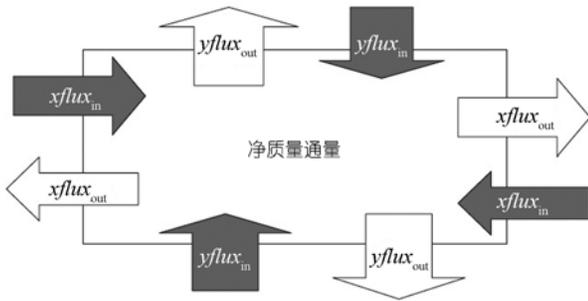


图 2 各层任一格点质量通量传输示意图

对于固定格点、时刻和固定 Δt ，其 S_{yz} ， S_{xz} ， u ， v 一定，由公式(2)可知格点的质量通量只与浓度有关，这样由 MOZART 模拟得到的格点的质量通量及其对应格点 MOPITT 观测的 CO 浓度与 MOZART 模拟浓度的比值得到格点实际的 CO 的质量通量：

$$\begin{aligned} xflux_{real} &= xflux_{moz} \cdot \frac{[CO]_{mop}}{[CO]_{moz}}, \\ yflux_{real} &= yflux_{moz} \cdot \frac{[CO]_{mop}}{[CO]_{moz}}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中， $xflux_{real}$ 表示实际大气中的东西向质量通量， $yflux_{real}$ 表示实际大气中的南北向质量通量， $xflux_{moz}$ 表示由 MOZART 模拟得到的东西向质量通量， $yflux_{moz}$ 表示由 MOZART 模拟得到的南北向质量通量， $[CO]_{moz}$ ， $[CO]_{mop}$ 分别表示对应格点 MOZART 模拟的 CO 浓度和 MOPITT 观测的 CO 浓度。

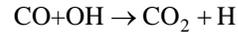
判断该格点及其周边格点 $xflux_{real}$ 和 $yflux_{real}$ 的传输方向，由公式(3)，即可得到实际大气中各个格点由大气传输引起的 CO 浓度的变化情况。

1.2.2 化学过程 化学过程包括化学产生和化学消耗，化学产生有甲烷氧化和非甲烷碳氢化合物的氧化反应，由化学反应原理可知，生成物的浓度大小主要决定于反应物的浓度和反应速率。对于同一时间段同一格点处，反应速率一致，因此 CO 的化学产生量只与甲烷和非甲烷碳氢化合物的浓度有关，由于甲烷性质稳定少变，在年或月尺度上可近似不变，而对于非甲烷碳氢化合物，一方面大气中含量较少，另一方面生命时间较短，反应快，可近似为大气中 CO 的直接排放，这样，MOZART 模式模拟的化学产生量 $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemprod-moz}$ 即可视为实际大气中 CO 的化学产生量

$\left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemprod-real}$ ，即：

$$\left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemprod-real} = \left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemprod-moz} \quad (5)$$

对于化学消耗，主要是与 OH 的化学消耗。CO 与 OH 的反应属于基元反应，反应速率只与温度有关，其化学反应方程式为



对于特定的时间和格点，OH 浓度(以 [OH] 表示)与反应速率 k 一定，CO 化学消耗量的多少只与 CO 浓度有关，这样利用大气中 CO 实际浓度 ($[CO]_{mop}$ ，MOPITT 观测)与 MOZART 模拟浓度 ($[CO]_{moz}$) 的比值，结合 MOZART 模拟的化学消耗量 $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemloss-moz}$ ，就可以得到实际大气中的化学消耗率

$$\left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemloss-real} = k[CO]_{mop}[OH] = \left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemloss-moz} \cdot \frac{[CO]_{mop}}{[CO]_{moz}} \quad (6)$$

1.2.3 干沉降 单位时间内 CO 干沉降量与大气底层 CO 的浓度成正比，若 k_d 为干沉降速度， $[CO]_{srf}$ 为地面 CO 浓度，则单位时间内 CO 干沉降量

$$\left. \frac{dC}{dt} \right|_{drydep} = k_d \cdot [CO]_{srf} \quad (7)$$

结合 MOZART 模拟结果，实际 CO 损耗为

$$\left. \frac{dC}{dt} \right|_{drydep-real} = k_d \cdot [CO]_{mop} = \left. \frac{dC}{dt} \right|_{drydep-moz} \cdot \frac{[CO]_{mop}}{[CO]_{moz}} \quad (8)$$

其中 $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{drydep-real}$ ， $\left. \frac{dC}{dt} \right|_{drydep-moz}$ 为 MOZART 模拟和实际计算的单位时间消耗量， $[CO]_{mop}$ ， $[CO]_{moz}$ 代表 MOPITT 观测和 MOZART 模拟的地面 CO 的浓度。

1.2.4 CO 月排放量的计算结果 利用上面计算得到的 2004 年实际大气中 CO 各收支项，建立实际大气中 CO 的收支方程：

$$\left. \frac{dC}{dt} \right|_{mop} = \left(\left. \frac{dC}{dt} \right|_{emis} + \left. \frac{dC}{dt} \right|_{trans} + \left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemprod} - \left. \frac{dC}{dt} \right|_{chemloss} - \left. \frac{dC}{dt} \right|_{drydep} \right)_{real} \quad (9)$$

结合 MOZART 模式模拟的收支方程：

$$\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{moz}} = \left[\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{emis}} + \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{trans}} + \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{chemprod}} - \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{chemloss}} - \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{drydep}} \right]_{\text{moz}}, \quad (10)$$

(9), (10)两式相减, 得到 2004 年各月实际 CO 排放量的计算公式为

$$\begin{aligned} \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{emis-real}} = & \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{emis-moz}} + \left(\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{mop}} - \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{moz}} \right) \\ & - \left(\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{trans-real}} - \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{trans-moz}} \right) \\ & + \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{chemloss-moz}} \times \left(\frac{[\text{CO}]_{\text{mop}}}{[\text{CO}]_{\text{moz}}} - 1 \right) \\ & + \frac{dC}{dt}\Big|_{\text{drydep-moz}} \times \left(\frac{[\text{CO}]_{\text{mop}}}{[\text{CO}]_{\text{moz}}} - 1 \right). \quad (11) \end{aligned}$$

其中实际 CO 柱总量的月变化率 $\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{mop}}$, $\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{moz}}$ 由

MOPITT 观测及 MOZART 模式模拟的月平均 CO 柱总量得到. 由(11)式可知, CO 计算结果的误差主要包括 MOZART 模式的误差、MOPITT 观测反演误差以及新方法中计算

$\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{trans}}$, $\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{chemprod}}$, $\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{chemloss}}$ 和

$\frac{dC}{dt}\Big|_{\text{drydep}}$ 时假定的条件限制所造成的计算误差等.

2 结果与讨论

图 3 为 1, 4, 7, 10 月份 Horowitz 源和计算得到的 CO 新源的分布图. CO 的源排放主要集中在亚洲东部和南部、印度半岛、非洲中部和南部、南美和美国东部地区, 且具有明显的季节变化. 新方法得到的 CO 的主要源区分布与 Horowitz 源大体一致, 但强度明显大于后者, 尤其是在东亚、非洲和美国东部地区. 图 4 为各主要源区(图 3(h)所示分区)的新源与 Horowitz 源区域平均的月排放强度, 同样可以看到, 区域平均的新源强度大于 Horowitz 源, 且 1~6 月二者之差大于 7~12 月, 差异最大的地区为东亚和美国东部. 尽管图 3 中东亚和美国东部的 CO 排放高值以 1 月份最为显著, 但就区域平均的月排放强度来看, 却是以 4 月份为最大, 而且新源的季节变化明显比 Horowitz 源显著; 而对于东南亚(包括澳洲北部)和南美洲的源区 CO 排放, 新源与 Horowitz 源差异在 6~8

月最小, 3~5 月最大. 排放最大值出现在 9~10 月, 另外, 在 9 月的南美和 10 月的东南亚, 区域平均的新源略低于 Horowitz 源, 这与前面提到的 MOZART 模拟浓度高与 MOPITT 观测浓度(图 1)出现的时间一致; 非洲地区新源与 Horowitz 源之差年内变化较小, 排放强度 1 月最大, 4 月最小, 10 月高值区转移到南部地区, 从区域平均图上还可发现, 在 8 月, 非洲地区, 出现另一高值点. 从 CO 排放的全球分布特征来看, 东亚和美国东部排放区与人类活动密集区分布较为一致, 日益发达的工业, 众多的人口和繁忙的交通应该是造成这些地区 CO 高排放的原因, 从图 4 可以看到 Horowitz 源在很大程度上低估了这两个地区的源排放. 而非洲和南美地区的排放主要是与植被和生物质燃烧有关, 东南亚和印度半岛地区除了人类活动外, 其明显的季节变化还与这些地区火灾易发时间有关, 冬春季是中南半岛和非洲中部地区火灾的频发季节, 而夏秋季则是南美、非洲南部和印度尼西亚及澳大利亚北部火灾的多发期.

图 5 为 1, 4, 7, 10 月 Horowitz 源与 CO 新源的比值分布情况, 新源约为 Horowitz 源的 1~2 倍, 二者在 1 月和 4 月差异较大. 对比图 1, 可以发现 Horowitz 源与 CO 新源的比值分布情况与图 1 中 MOZART 模拟浓度与 MOPITT 观测浓度之比具有较好的对应关系. 在 MOZART 模拟浓度高与 MOPITT 观测浓度的地区或月份, Horowitz 源与新源之比 > 1, 相反, 在浓度之比 < 1 的地区或月份, Horowitz 源与 CO 新源之比 < 1. 在非洲北部终年 Horowitz 源与新源之比 < 0.1, 这主要是因为非洲北部主要为沙漠地区, Horowitz 源较小, 基本为 0, 而新源中该地区的源不为 0 引起的. 总的看来, Horowitz 源除了在南美和东南亚的部分地区略有高估外, 其余地区基本上都低估了实际的 CO 源排放, 尤其是在东亚、美国东部及非洲地区. 总体上新源比 Horowitz 源更能代表 2004 年 CO 的实际排放情况.

3 小结

为了得到最新的月尺度的 CO 源排放的数据, 本文利用 MOPITT 卫星资料和 MOZART 模式, 提出一种新的计算 CO 源排放的方法. 大气中影响 CO 浓度的物理化学过程主要有排放、传输、化学转化(化学产生和化学消耗)及沉降过程(包括土壤吸收)等, 这些过程构成了 CO 的收支平衡方程. 利用 Horowitz 等

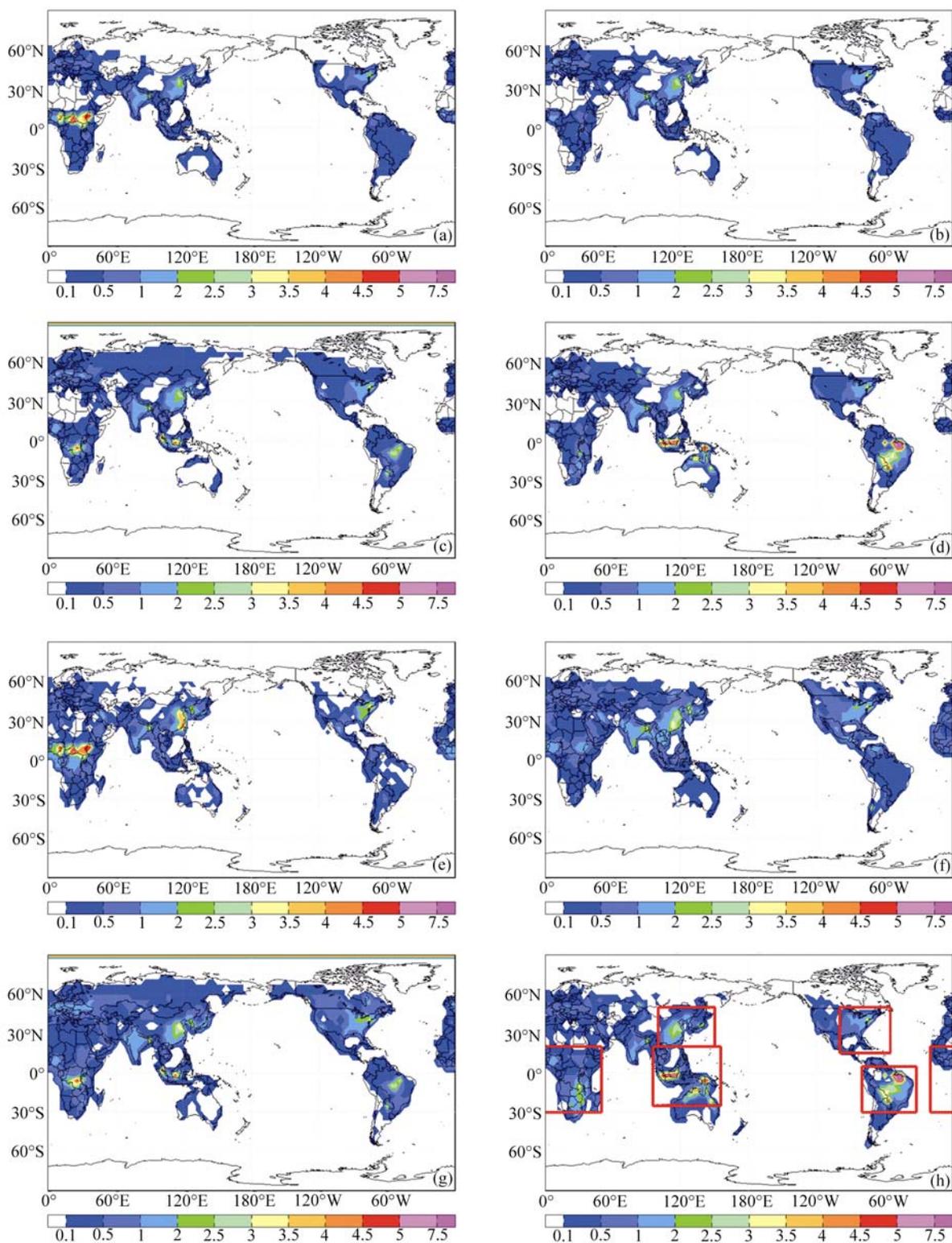


图 3 Horowitz 源与新源 CO 源强分布的比较图

单位: $10^{12} \text{molec} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; (a)~(d) 为 Horowitz 源 1, 4, 7, 10 月的排放情况, (e)~(h) 为新源 1, 4, 7, 10 月的排放情况

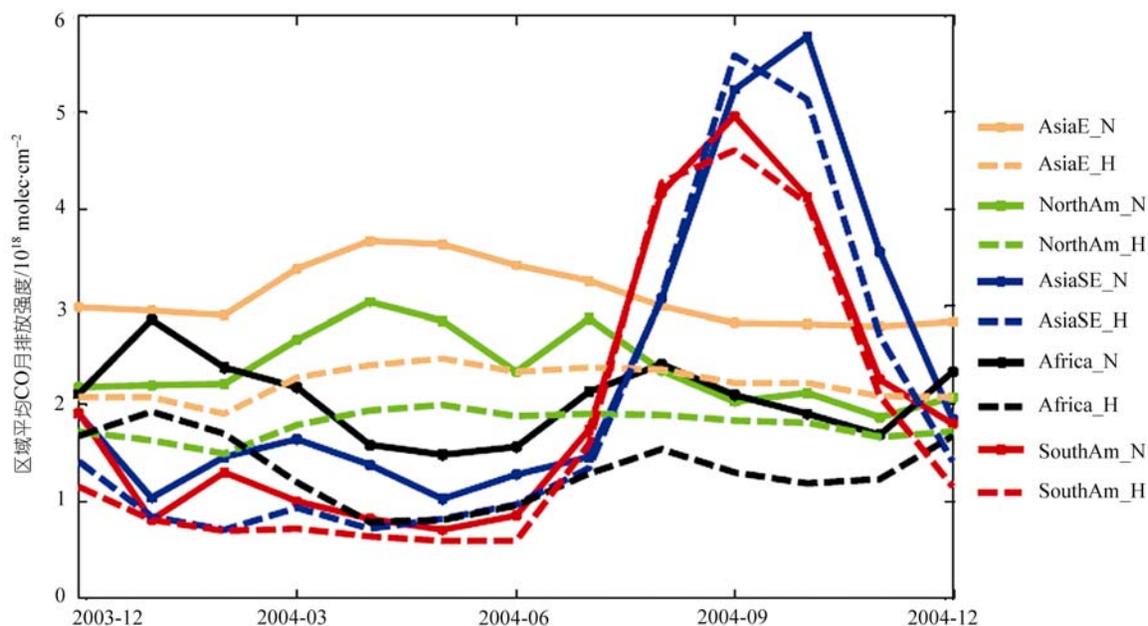


图4 区域平均新源(实线)与 Horowitz 源(虚线)CO 月排放强度

单位: $10^{18} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$; AsiaE_N, NorthAm_N, AsiaSE_N, Africa_N, SouthAm_N 分别代表东亚、北美、东南亚、非洲及南美地区的新源, AsiaE_H, NorthAm_H, AsiaSE_H, Africa_H, SouthAm_H 分别代表东亚、北美、东南亚、非洲及南美地区的 Horowitz 源

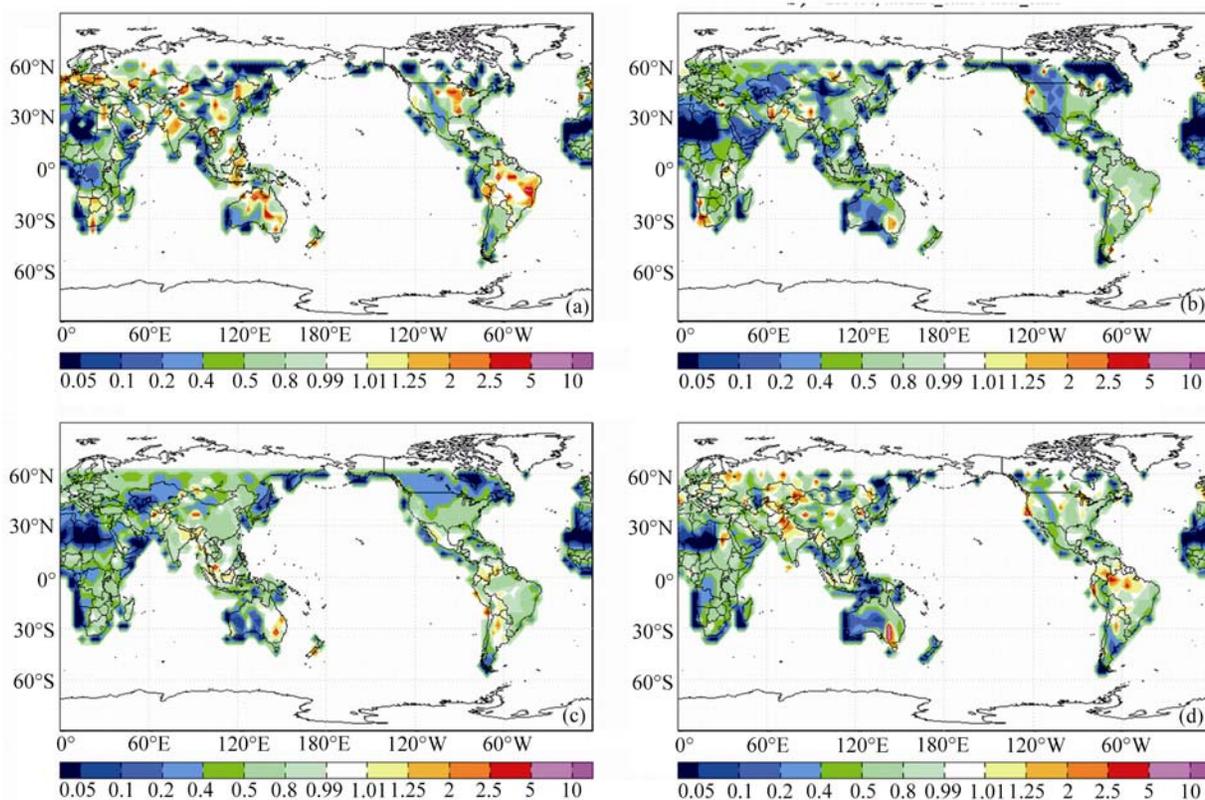


图5 Horowitz 源与 CO 新源的比值图
(a)~(d)分别为 1, 4, 7, 10 月的情况

人 [15] 源排放清单和 MOZART 模式模拟这些物理化学过程, 分析各个格点上 CO 浓度及各物理化学过程的模拟结果表明, 在一定条件下, 这些物理化学过程只与 CO 浓度的变化有关, 利用这个变化关系, 结合 2004 年 MOPITT 观测的月平均 CO 浓度, 建立 2004 年各月 CO 的收支平衡方程, 即可计算出 2004 年各月各格点上 CO 的排放量. CO 计算结果的误差主要包括 MOZART 模式的误差、MOPITT 观测反演误差以及新方法中计算 $\frac{dC}{dt}\Big|_{trans}$, $\frac{dC}{dt}\Big|_{chemprod}$, $\frac{dC}{dt}\Big|_{chemloss}$ 和

$\frac{dC}{dt}\Big|_{drydep}$ 时假定的条件限制所造成的计算误差.

新方法得到的 CO 的源排放的空间分布特征与 Horowitz 源排放一致, 但强度明显大于后者, 约为后者的 1~2 倍, 新源更能代表 21 世纪初 CO 源的月排放情况. Horowitz 源除了在东南亚和南美部分地区略有高估外, 其余地区基本上都低估了 CO 的源排放, 尤其是在人类活动影响较大的东亚和美国东部地区, Horowitz 源显著低估了实际的 CO 源排放.

致谢 MOPITT 数据来自美国 NASA 大气科学数据中心, MOZART 模式由美国大气研究中心(NCAR)大气化学部(ACD)提供, 在此一并表示感谢.

参 考 文 献

- 1 Olivier J G J, Bloos J P J, Berdowski J J M, et al. A 1990 global emission inventory of anthropogenic sources of carbon monoxide on 1°×1° developed in the framework of EDGAR/GEIA. *Chemosphere: Glob Change Sci*, 1999, 1: 1—17
- 2 白乃彬. 中国大陆 CO₂, SO₂ 和 NO 1°×1° 网格排放估计. 见: 周秀骥, 编. 中国地区大气臭氧变化及其对气候环境的影响(一). 北京: 气象出版社, 1996. 145—150
- 3 Bergamaschi P, Hein R, Heimann M, et al. Inverse modeling of the global CO cycle: 1. inversion of CO mixing ratios. *J Geophys Res*, 2000, 105: 1909—1927
- 4 Kasibhatla P, Arellano A, Logan J, et al. Top-down estimate of a large source of atmospheric carbon monoxide associated with fuel combustion in Asia. *Geophys Res Lett*, 2002, 29(19): 1900, doi: 10.1029/2002GL015581

- 5 Pétron G, Granier C, Khattatov B, et al. Inverse modeling of carbon monoxide surface emissions using CMDL network observations. *J Geophys Res*, 2002, 107(D24): 4761, doi: 10.1029/2001JD001305
- 6 Pétron G, Granier C, Khattatov B, et al. Monthly CO surface sources inventory based on the 2000—2001 MOPITT satellite data. *Geophys Res Lett*, 2004, 31: L21107, doi: 10.1029/2004GL020560
- 7 Arellano A F J, Kasibhatla P S, Giglio L, et al. Top-down estimates of global CO sources using MOPITT measurements. *Geophys Res Lett*, 2004, 31: L01104, doi:10.1029/2003GL018609
- 8 秦瑜, 赵春生. 大气化学基础. 北京: 气象出版社, 2003. 168—170
- 9 Tie X, Brasseur G P, Zhao C S, et al. Chemical characterization of air pollution in eastern China and the eastern United States. *Atmos Environ*, 2006, 40: 2607—2625
- 10 Houghton J T, Ding Y, Griggs D J, et al. *Climate Change 2001: The Scientific Basis*. Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) Working Group I Third Assessment Report. New York: Cambridge University Press, 2001
- 11 Ma J, van Aardenne J A. Impact of different emission inventories on simulated tropospheric ozone over China: A regional chemical transport model evaluation. *Atmos Chem Phys*, 2004, 4: 877—887
- 12 Peng L, Zhao C S, Lin Y P, et al. Analysis of carbon monoxide budget in North China. *Chemosphere*, 2006, 9: 55, doi: 10.1016/j.chemosphere.2006.09.055
- 13 方圆圆, 赵春生, 李成才. 利用对流层污染测量仪研究 2002 年东亚地区 CO 总量分布特征. *大气科学*, 2005, 29(3): 363—371
- 14 方圆圆. 应用卫星资料研究 CO 的分布和输送特征. 硕士学位论文. 北京: 北京大学物理学院大气科学系, 2005. 37—50
- 15 Horowitz L W, Walters S, Mauzerall D, et al. A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2. *J Geophys Res*, 2003, 108: 4784, doi: 10.1029/2002JD002853
- 16 Drummond J R, Mand G S. The Measurement of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument: Overall performance and calibration performance. *J Atmos Ocean Technol*, 1996, 13: 312—320
- 17 Deeter M N, Emmons L K, Francis G L, et al. Operational carbon monoxide retrieval algorithm and selected results for the MOPITT instrument. *J Geophys Res*, 2003, 108, doi: 10.1029/2002JD003186
- 18 Wang J X, Deeter M N, Gille J C, et al. Retrieval of tropospheric carbon monoxide profiles from MOPITT: Algorithm description and retrieval simulation. *J Geophys Res*, 1999, 56: 219—232