

朱江, 唐晓, 王自发, 等. 2018. 大气污染资料同化与应用综述 [J]. 大气科学, 42 (3): 607–620. Zhu Jiang, Tang Xiao, Wang Zifa, et al. 2018. A review of air quality data assimilation methods and their application [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 42 (3): 607–620, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1802.17260.

## 大气污染资料同化与应用综述

朱江<sup>1,3</sup> 唐晓<sup>2</sup> 王自发<sup>2,3</sup> 吴林<sup>2</sup>

1 中国科学院大气物理研究所国际气候与环境科学中心 (ICCES), 北京 100029

2 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理与大气化学国家重点实验室 (LAPC), 北京 100029

3 中国科学院大学, 北京 100049

**摘 要** 我国正面临以高浓度臭氧和细颗粒物为典型特征的大气复合污染问题, 对其进行模拟和预报是有效应对大气污染的关键。大气复合污染预报的不确定性来源复杂, 同时存在化学非线性的影响, 各种模式输入不确定性对模拟预报影响的时空差异较大, 从而导致很多不确定性约束方法难以确定关键的不确定性因子而进行有针对性的约束和订正。利用资料同化方法融合模式、多源观测等信息, 减小模式输入数据的不确定性成为提升大气污染模拟预报精度的关键。本文将简要介绍大气污染资料同化相关的模式不确定性、同化算法以及污染物浓度场同化、源反演研究上的进展, 探讨大气污染资料同化面临的主要挑战和发展趋势。

**关键词** 资料同化 大气复合污染 模式不确定性 浓度场同化 源反演

文章编号 1006-9895(2018)03-0607-14

中图分类号 P402

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1802.17260

## A Review of Air Quality Data Assimilation Methods and Their Application

ZHU Jiang<sup>1,3</sup>, TANG Xiao<sup>2</sup>, WANG Zifa<sup>2,3</sup>, and WU Lin<sup>2</sup>

1 International Center for Climate and Environment Sciences (ICCES), Institute of Atmospheric Physics, Beijing 100029

2 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry (LAPC), Institute of Atmospheric Physics, Beijing 100029

3 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

**Abstract** China is facing serious air pollution problems especially that caused by high concentrations of ozone and fine particles. A key step to effectively control air pollution is the modeling and forecasting of air pollution. However, large uncertainties with complicated sources still exist in air pollution forecasting. The nonlinearity in chemical processes makes it difficult to identify those key uncertainty sources and carry out targeted constraints and corrections in the modeling study. Data assimilation method can combine modeling information with multi-source observations to improve the accuracy of air pollution simulation and forecast. In this paper, we briefly introduce model uncertainties, assimilation algorithms, and optimization of initial concentrations and emissions for air quality model in the field of air pollution data assimilation. Challenges and development trends in the study of atmospheric pollution data assimilation are also highlighted.

**Keywords** Data assimilation, Air pollution, Model uncertainty, Concentration field assimilation, Emission inversion

收稿日期 2017-10-28; 网络预出版日期 2018-03-12

作者简介 朱江, 男, 1963 年出生, 研究员, 主要从事资料同化理论与应用研究。E-mail: jzhu@mail.iap.ac.cn

资助项目 国家自然科学基金项目 91644216、41575128

Funded by National Natural Science Foundation (Grants 91644216, 41575128)

## 1 引言

我国正面临严峻的大气环境问题,以高浓度臭氧( $O_3$ )和细颗粒物( $PM_{2.5}$ )为典型特征的大气复合污染问题最为突出,引起了公众、政府和科学界的广泛关注。2012年我国正式发布新的国家环境空气质量标准(GB 3095-2012),将 $PM_{2.5}$ 、 $O_3$ 等污染物纳入评价标准,新标准下 $PM_{2.5}$ 已成为全国绝大部分地区的首要污染物,同时臭氧超标问题凸显,重污染发生频次较多。严重大气污染给人体健康和人类生活带来巨大影响,有研究表明大气污染暴露每年可导致我国过早死亡人口达百万以上(Liu et al., 2016)。因此,采取应急防控措施并及时向公众发布预报预警信息是应对当前严重大气污染问题的关键环节。2013年9月,国务院发布了《大气污染防治行动计划》对空气重污染应急预警、科学评价决策等提出迫切的需求,北京市等地方政府也编制了空气重污染应急预案,大气重污染应急预案的启动直接依据未来空气质量预报结果,对预报时长和精度要求均大幅提高。

为实现我国大气污染有效防治与科学管理,需进一步发展大气污染预报预警,然而我国大气复合污染的复杂性以及众多基础数据的不确定性使重污染预报预警的不确定性加大。目前国际主流数值模式对我国大气污染模拟预报都有明显偏差(Carmichael et al., 2008),特别是在重污染期间预报偏差可达30%~50%(Zheng et al., 2015),化学活性较强的硝酸盐等物种模拟的不确定性可达3倍以上(Hayami et al., 2008)。大气污染预报最为重要的基础数据之一是源清单,排放源主要通过自下而上方法来估算(Hao et al., 2002),其中,排放因子和活动水平数据的不确定性、时效性,导致源清单不确定性较大(Zheng et al., 2009; 曹国良等, 2011; 魏巍等, 2011),其中活性强的污染物(如 $NH_3$ 和挥发性有机物)排放量的不确定性可高达一倍以上(Streets et al., 2003; Zhang et al., 2009)。Roselle (1994)发现源清单不确定性大小在很大程度上决定了臭氧控制对策的选择。此外,数值模式本身不确定性也影响污染对策的制定, Sistla et al. (1996)发现采用两种不同垂直混合方案模拟得到的臭氧控制策略是相互矛盾的。因此,减小大气污染预报预警不确定性对我国当前大气污染防控具有非常重要的现实意义和科学价值。

数值预报的一个核心技术是资料同化。该技术已在天气预报领域被证明为行之有效的方法,世界上很多气象预报中心都已经开展业务化的资料同化工作(麻巨慧等, 2011)。美国国家环境预测中心(NCEP)、欧洲天气预报中心(ECMWF)等机构建立了各自的全球大气再分析数据(Kalnay et al., 1996; Dee et al., 2011)。随着观测数据增加,大气污染资料同化开始得到重视,具备与气象领域同等的应用潜力和价值(Carmichael et al., 2008)。欧洲(Kukkonen et al., 2012)、美国(Carmichael et al., 2008; Zhang et al., 2012)、日本(Sandu and Chai, 2011)等发达国家已将其列为大气污染的前沿研究方向。欧洲天气预报中心的大气成分与气候监测计划(MACC)开展了大气成分再分析数据研究(Inness et al., 2013),建立臭氧、一氧化碳、气溶胶光学厚度、二氧化氮柱浓度的再分析数据产品,并应用于模式边界条件(Zyryanov et al., 2011)、气溶胶辐射强迫估计(Bellouin et al., 2013)等。

鉴于资料同化在大气污染研究中的日益拓展和重要性,本文将简要介绍和回顾大气污染资料同化相关的模式不确定性、同化算法、浓度场同化以及污染源反演方面的进展,并探讨大气污染资料同化目前面临的主要挑战和发展趋势。

## 2 大气污染预报不确定性

数值模式是进行大气污染研究和预报的重要工具,很多国家都致力于发展先进的大气化学模式,如美国的CAMx(Comprehensive Air Quality with Extensions)、WRF-chem(Weather Research and Forecasting model coupled to Chemistry)和CMAQ(Community Multiscale Air Quality)模式,中国的NAQPMS(Nested Air Quality Prediction Modeling System)模式,这些模式在研究大气污染的生成机理、区域输送以及预报预警方面正发挥着越来越重要的作用。但是数值模式的应用仍然面临巨大的挑战,这些挑战主要来自于目前数值模式的不确定性。表1是一些研究对数值模式主要输入项的不确定性估计,其中很多输入项都存在较大的不确定性,如人为VOC(Volatile Organic Compounds)排放量、生物VOC排放量以及垂直混合参数等,这些因子在大气污染模拟中起着非常重要的作用。其不确定性使模式在大气污染预报和控制对策的制定上都存在一定风险,Sillman et al. (1995)发现输

入不确定性可以改变甚至消除控制策略的有效性，两种不同垂直混合方案模拟得到的臭氧控制策略是相互矛盾的，气象输入不确定性对控制措施效果的影响可达 1/3。

表 1 国际一些研究对大气化学模式输入变量不确定性的估计  
Table1 Estimate the uncertainty of input variables in atmospheric chemistry model by some international studies

模式输入变量	不确定性估算的标准差		
	Moore and Londergan (2001)	Hanna et al. (1998)	Beekmann and Derognat (2003)
人为排放源 (NO <sub>x</sub> )	25%~50%	30%~40%	40%
人为排放源 (VOC)	25%~50%	50%~80%	40%
生物排放源 (NO <sub>x</sub> )	25%~0	200%	—
生物排放源 (VOC)	25%~0	200%	50%
风向	11°	30°	—
风速	25%~0	30%	1.5 m/s
垂直混合高度	25%~0	50%	50%
温度	3 K	3 K	1.5 K
相对湿度	—	30%	20%
边界层高度	—	—	20%
沉降速度	25%~0	30%	25%
侧边界条件 (O <sub>3</sub> )	5%~10%	30%	—
侧边界条件 (NO <sub>x</sub> 、VOC)	5%~10%	80%	—
上边界条件 (O <sub>3</sub> )	5%~10%	70%	—
上边界条件 (NO <sub>x</sub> 、VOC)	5%~10%	200%	—
初始浓度 (O <sub>3</sub> )	15%~20%	30%	—
初始浓度 (NO <sub>x</sub> 、VOC)	15%~20%	50%	—
化学反应系数	25%	30%	10%~30%

大气污染数值预报的挑战不仅体现在模式不确定性上，同时还体现在不确定性来源的复杂性上。预报不仅依赖于污染物的初边界条件，也依赖于气象模式的预报，还强烈依赖于由人类、生物和自然活动共同决定的污染物排放量，而目前模式系统对这些过程的描述仍然存在以下问题：

#### (1) 数值模式不可避免的误差

数值模式在空间和时间是离散的，对次网格尺度过程、微物理和化学反应等过程都只能采用参数化处理。

#### (2) 初始条件和边界条件的误差

现有区域或城市尺度的模拟常常采用定常的边界条件，无法有效考虑边界条件的变化。初始条件的误差也会通过模式积分引入到下一时刻预报。

#### (3) 气象场输入误差

大气污染模拟一般都由气象模式提供气象场驱动，这些气象模式在降水、风场、边界层高度的

模拟预报上仍然存在较大的不确定性，而气象场在大气污染生消演变过程中起着非常关键作用。其中风场决定污染物的输送，边界层高度决定污染物的扩散能力，温度和辐射要素决定化学反应的速率，降水决定大气污染的湿沉降量。

#### (4) 排放源的误差

污染物排放水平直接决定了当地污染浓度水平，因此污染物排放量的精确度直接决定了大气污染预报的精度。排放源不仅包括自然源还包括人为源，其排放量由非常复杂的人类活动和自然过程决定，在时空分布上很不均匀，如农作物生长季节的生物源排放增加，居民做饭时间的面源增加等。而目前对这些过程的污染物排放量进行精确统计还存在很大困难，从而使得目前模式采用的污染物排放源存在很大的不确定性。

#### (5) 化学转化过程的误差

大气污染中二次污染物的生消过程涉及到上百个物种参加的化学反应，化学物种间的活性差异很大并且联系非常广泛，包含气相、液相、均相和非均相反应。很多物种的生命周期非常短，化学反应非常快，目前数值模式还无法完全精确对其进行描述，必须根据其重要性做一定的简化，考虑部分物质的时间变化，而将其它物种当作平稳过程处理，考虑部分物质的非线性化学过程，而另外一些物种则采用线性方式处理。这样的近似和简化必然引入一定的不确定性，特别是对化学反应敏感的臭氧和二次气溶胶，这种不确定性的影响是不可忽视的。

#### (6) 干沉降过程的误差

干沉降过程是大气污染物的重要汇机制之一。干沉降速度是描述干沉降过程的重要参数，由下垫面、风场和大气稳定度等因素决定，沉降速度会随着稳定度的增加而减小，不稳定条件下的沉降速度可以达到稳定条件下的数倍，并且沉降速度还会随物种不同而变化。目前，无论是干沉降机理本身还是干沉降模型中的相关气象要素模拟都存在较大不确定性，Hanna et al. (1998, 2001)、Moore and Londergan (2001) 和 Beekmann and Derognat (2003) 估计模式干沉降速度的不确定性可达 25%~40%。

## 3 资料同化的作用和主要算法

### 3.1 定义和作用

对大气或海洋状态的记录或描述存在观测和

模式两套系统。观测系统一般具有较高的精度，能较好反映大气的真实状态，但观测在时空上都是稀疏的，存在大量信息盲点，并且观测很难直接用于预测未来状态；模式系统提供大气或海洋状态的近似，通过控制方程和参数化形式使大气或海洋的基本属性得到体现，能覆盖三维至四维的大气或海洋状态，很多模式系统还能用于预测未来状态，但由于模式采用很多近似和参数化过程，以及模式输入的初边界条件的不精确，使得模式系统不可避免存在不确定性。可以看出两个系统都存在各自信息的优点，也都存在各自信息的局限性，而资料同化就是一种将观测系统和模式系统联系起来的数据分析技术，它利用状态变量的时间演变规律和物理属性的持续约束将观测信息不断融入到模式系统中（Bouttier and Courtier, 1999），其目的是为了更加精确的估计或预测未知变量，减小不确定性。一个同化系统包括三个要素：模式系统、观测数据集、同化框架，同化的核心概念是误差，所有同化方法都围绕误差估计、误差模拟展开。

早期的资料同化主要是初值问题，同化目的是为了得到一个更加精确的状态变量初始场，从而减小模式的预报误差。而随着资料同化的发展，其作用也得到逐步扩展，下面介绍资料同化的几个主要作用：

#### (1) 状态变量估计

大气系统具有混沌特性，即初始条件的微小变化会最终导致系统的根本性变化，这种系统对初始条件非常敏感，初始条件的有限误差会随模式积分非线性增长，导致系统在积分一段时间后失去可预报性。而资料同化将观测资料融入模式得到更加精确的状态变量初始条件，从而能延长系统的可预报时间，这也是早期资料同化关注初值问题的关键原因。另外，同化将观测资料和模式结合可以得到一个动力上协调、分辨率和精度更高的状态变量四维资料集，如 NCEP/NCAR 再分析资料，为统计分析等研究提供更加精细的资料基础。

#### (2) 参数估计

模式系统包含多种参数，但很多参数化引入过程都包含多个假设，参数本身包含较大的不确定性，因此很多模式参数成为模式预报误差的重要来源。在很多研究中，常常采用人为调试参数方式来减小观测和模拟差异，但这种方式往往带有随意性，不具备严格理论基础。而资料同化可以结合观

测从统计最优角度来估计不确定性较大的模式参数，它通过参数与状态变量间的依赖关系，通过最小方差或求代价函数最小值等方式来得到参数估计值。基于数据同化的参数估计在大气和海洋等领域开始得到越来越广泛的应用（Tong and Xue, 2008; Evensen, 2009; Zheng et al., 2009）。

#### (3) 自适应观测或目标观测

很多常规观测点的位置选择主要是依据天气特征或排放特征，而自适应观测则起源于另外一种基于控制理论的思路，其目的是通过有目的性的增加少量观测来减小初始条件不确定性，从而达到对预报误差的最优约束，提高可预报性。例如，预报误差对某些区域的初始误差非常敏感，在这些区域增加观测点来减小初始误差可能会产生最大的预报技巧效益。因此，自适应观测问题也可以看作是同化需要增加怎样的观测资料融入模式，而使得同化效果最优的问题。同化通过系统性的客观量化方法来确定最优的观测点位置，使得观测能准确抓住动力系统的关键特征。Lorenz and Emanuel (1998) 通过 Lorenz 模型的理想试验发现通过自适应方法（如奇异向量法）选取观测站点的模式预报性能优于随机选取观测点的模式预报性能。关于利用数据同化方法开展自适应观测的研究，已经开始逐步得到重视，更多研究可以参考相关文献（Palmer et al., 1998; Uzunoglu, 2007）。

### 3.2 主要算法介绍

经过多年的发展，资料同化方法已经从简单插值方法发展到考虑误差协方差演变的高级资料同化方法，从最初的初值问题发展到包括初始条件在内的多种模式不确定性的全局约束问题。从资料同化发展来看，主要包括以下几类资料同化方法：

(1) 逐步订正法（Bergthorsson et al., 1955; Cressman, 1959）

变量  $x$  在网格点  $j$  的背景值为  $x_b(j)$ ，变量在空间上存在  $N$  个观测值  $y(i)$ ，则其在网格点  $j$  的分析值  $x_a(j)$  为

$$x_a(j) = x_b(j) + \frac{\sum_{i=1}^n w(i, j)[y(i) - x_b(i)]}{\sum_{i=1}^n w(i, j)}, \quad (1)$$

$$w(i, j) = \max(0, f(R, d_{i,j})), \quad (2)$$

其中， $w(i, j)$  是权重函数，依赖于观测点  $j$  和分析网格  $i$  间的距离  $d_{i,j}$  和根据经验定义的影响半径  $R$ 。这种方法的优点是简单易行，能进行多次反复的分

析, 其缺点是没法确定最优权重, 观测影响半径由经验确定, 属于经验方法, 在统计上不是最优, 无物理约束也可能导致物理上的不平衡或非物理现象。

(2) 牛顿松弛逼近法 (Kistler, 1974; Hoke and Anthes, 1976)

在预报方程中加入包含观测和模拟差异的附加项:

$$\frac{\partial x}{\partial t} = M(x, t) + \frac{y - Hx}{\tau}, \quad (3)$$

其中,  $M$  为模式项, 其右部分为增加的附加项,  $x$  为模式状态变量,  $y$  为状态变量的观测值,  $H$  是模式空间到观测空间的插值转换算子,  $\tau$  为松弛系数。通过增加这个附加项, 使得方程解逼近观测值, 其优点是能保持模式动力系统的近似平衡, 主要应用于中小尺度资料同化。牛顿松弛方法现在还保留在中尺度天气预报模式 WRF 中, 仍是一种简单可行的方法。其缺点是缺乏良好的理论基础, 松弛系数依赖经验确定, 是一种经验分析方法。

(3) 最优插值 (Gandin, 1963)

最优插值是一种最小均方误差的估计方法, 根据分析误差方差最小原则求解最优观测权重:

$$x_a = x_b + K(y - Hx_b), \quad (4)$$

$$K = BH^T(HBH^T + R)^{-1}, \quad (5)$$

其中,  $K$  为最优权重矩阵或增益矩阵,  $H$  为观测算子,  $H^T$  为其伴随观测算子,  $B$  为背景误差协方差矩阵,  $R$  为观测误差协方差矩阵。背景场误差协方差矩阵的构建依赖于自相关函数的设置 (如高斯或贝塞尔函数), 同时也依赖各种假定的平衡约束。和逐步订正法相比, 最优插值考虑了背景场误差和观测误差的统计特征。最优插值方案作为 20 世纪 80 年代和 90 年代的大气业务分析方案, 在资料同化发展中起着非常重要的作用, 其优点是简单易行、计算代价小。主要缺点是每个同化时刻的背景场误差协方差都需要用户给定, 没有考虑误差在预报中的传播和发展, 是一种静态的局地分析方法。

(4) 变分方法 (Sasaki, 1970; Parrish and Derber, 1992)

变分方法把一个物理学问题或其它学科问题转化求泛函极值的问题, 这样能减少原有某些问题的约束条件, 而最终解又能收敛或近似收敛到原约束问题的解。在三维变分资料同化中, 通过构造代价函数:

$$J(x) = (x - x_b)^T B^{-1}(x - x_b) + (y - Hx)^T R^{-1}(y - Hx). \quad (6)$$

将最小方差估计问题转化为求代价函数最小值的问题, 从而避免了直接求解权重矩阵  $K$ 。其求解方法是不断反复的计算和评估代价函数, 最终达到最小值。与最优插值的局地分析相比, 三维变分不需要挑选观测, 所有观测资料被同时使用, 分析解是基于全局代价函数的全局最优解或近似最优解, 可以考虑较为复杂和弱非线性的观测算子, 可以通过在代价函数中加入强迫项来实现观测引入时的物理或经验约束。由于三维变分计算方便, 计算代价小, 使其成为很多常规业务资料同化的首选。

四维变分将三维变分在某一时刻的空间全局最优, 扩展到某一时间段内的空间和时间的全局最优, 即分析是基于某一时间段内的观测资料, 其代价函数为

$$J(x) = (x - x_b)^T B^{-1}(x - x_b) + \sum_{i=1}^N (y_i - Hx_i)^T R^{-1}(y_i - Hx_i), \quad (7)$$

其中,  $i$  代表不同的时刻。四维变分利用模式动力特征来约束一段时间内的所有观测资料, 是一种平滑算法, 其背景场误差协方差矩阵是随模式动力隐式发展的。四维变分的主要缺点是需要编写伴随模式, 对复杂系统来说工作量很大, 需要引入模式的切线性假设并假设模式是完美的。

(5) 卡尔曼滤波 (Kalman, 1960)

卡尔曼滤波是一种最小化均方误差的估计方法, 也是一种高斯分布下的递归贝叶斯滤波方法, 它通过对状态变量的背景估计值和当前观测值进行加权平均得到状态变量的后验估计值:

$$x_a = x_b + K(y - Hx_b), \quad (8)$$

其权重系数或矩阵是基于后验估计值的均方误差最小推导出来:

$$K = BH^T(HBH^T + R)^{-1}. \quad (9)$$

滤波过程为预测和更新两个阶段。卡尔曼滤波不需要存储所有以前的数据, 每次有新的观测可用时, 都可以进行一次估计, 是一种顺序资料同化方法。和四维变分相比, 卡尔曼滤波使预报误差协方差矩阵随模式动力显示发展, 同化分析不仅给出最优分析解, 同时提供分析误差协方差。卡尔曼滤波的主要缺点是需要假定动力系统是线性的, 并且背景场误差协方差矩阵计算和存储的代价过大。

扩展卡尔曼滤波将卡尔曼滤波从线性问题扩展到非线性问题,是一种非线性滤波方法。对于非线性的模式动力系统和观测算子,扩展卡尔曼滤波根据切线性假设(即泰勒展开的一阶近似)进行误差协方差矩阵的计算和预报,忽略了二阶以上高次项的贡献,是卡尔曼滤波的近似,对于非线性问题,其估计是次优的。扩展卡尔曼滤波能较好应用弱非线性问题,对于强非线性问题,忽略高次项可能会导致较大误差。

集合卡尔曼滤波(Evensen, 1994)是卡尔曼滤波的蒙特卡罗近似,状态变量的初值不确定性以及模式不确定性(包括输入数据)用一系列的随机样本描述,不需用误差协方差矩阵来显示描述,通过蒙特卡罗集合模拟使得这些误差能在模式动力系统中发展,所有预报误差都基于集合预报的随机样本统计得到。这就使得问题大大简化,和卡尔曼滤波相比,集合卡尔曼滤波不需要误差协方差矩阵的存储和向前积分,并且卡尔曼滤波的线性假设约束不复存在。集合卡尔曼滤波能应用于复杂的非线性系统,方便考虑不同来源的模式误差,同时集合卡尔曼滤波还能方便应用于集合预报,即在提高确定性预报的基础上,提供预报不确定性以及概率预报等信息,这是其它很多方法不具备的。其缺点是计算成本较高,需要多次运行大气化学传输模式。

## 4 大气污染资料同化的发展

### 4.1 浓度场同化的研究进展

大气污染资料同化主要应用之一是将污染物观测数据同化到模式中,获得精度更高的污染物浓度场,为大气污染预报提供精度更高的初始条件。同化的观测数据主要包括卫星遥感、地基监测和雷达探测数据。卫星遥感包含覆盖度更广的大气污染观测信息(陶金花等, 2013; Lin et al., 2010),也能提供平流层大气化学成分的观测数据(Martin, 2008; Bowman et al., 2010);地基监测能获取连续、具备较高精度的大气污染物地面浓度时间序列(王跃思等, 2013; 张小曳等, 2013);雷达可探测到大气污染垂直分布信息(Liu and Chen, 2010)。

在卫星数据同化融合上, Austin (1992)首次将资料同化方法应用于全球二维化学输送模式,将LIMS卫星观测的 $O_3$ 、 $HNO_3$ 、 $NO_2$ 等资料和模式预报结合,为模式预报提供初始场。徐祥德等(2003, 2004)建立了变分泛函模型,将卫星遥感与地面或

探空观测信息进行融合,在沙尘暴大气要素场、北京周边地区气溶胶变分场等研究中取得了客观订正的显著效果。Nirala (2008)对MODIS气溶胶三级产品进行数据融合以提高数据空间覆盖率,融合算法采用极大似然估计法与最优插值法,发现该融合算法能够获得更高精度的具有完整空间覆盖的气溶胶产品。Kinne (2009)通过经验的权重关系将地基AERONET (Aerosol Robotic Network)数据与卫星数据融合。Liu et al. (2011)基于三维变分同化方法发展了一个气溶胶光学厚度(AOD)数据同化系统,通过同化卫星AOD数据对东亚沙尘暴过程模拟进行了改进。Dai et al. (2014)结合非静力平衡大气模式和局地集合转化卡尔曼滤波(LETKF)发展了全球气溶胶资料同化系统,对东亚典型沙尘和大气污染过程模拟进行了改进。Zoogman et al. (2014)利用卫星观测CO和边界层臭氧的关系,同化卫星CO有效地减小了边界层臭氧的模拟误差。Yumimoto et al. (2016)对日本最新发射的葵花静止卫星的气溶胶观测数据进行了同化,有效减小了沙尘暴前端的预报误差。

在地基监测数据同化融合上, Van Loon et al. (2000)利用集合卡尔曼滤波将地面臭氧观测资料同化到大气化学传输模型中,使臭氧预报误差显著减小,但 $NO_2$ 和 $SO_2$ 预报误差有所增大。崔应杰等(2006)将最优插值应用于嵌套网格空气质量模式(NAQPMS),同化可吸入颗粒物、二氧化氮、二氧化硫的观测资料,发现同化能有效订正各污染物的模拟偏差。白晓平等(2008)将最优插值和集合卡尔曼滤波应用于空气污染数值预报模式系统REMSAD (Regional Modeling System for Aerosols and Deposition),对 $NO_x$ 和 $SO_2$ 资料进行同化。发现两种方法都能有效减小模拟误差,但同化效果受集合成员数的影响,当集合成员数较小时,最优插值的同化性能优于集合卡尔曼滤波,当集合成员数较大时,集合卡尔曼滤波的同化效果优于最优插值。Lin et al. (2008a, 2008b)利用集合卡尔曼滤波同化地面 $PM_{10}$ 观测资料显著改进了沙尘暴预报,发现沙尘暴预报误差主要来自模式误差(气象场、干沉降、沙尘源等),需要在同化中对这些模式误差进行订正。Wu et al. (2008)针对臭氧预报比较了最优插值、降维平方根卡尔曼滤波、集合卡尔曼滤波和四维变分四种同化算法的性能,发现最优插值在同化窗口的效果最优,但集合卡尔曼滤波在预

报窗口的性能更好。Tang et al. (2011) 基于集合卡尔曼滤波同化地面臭氧观测数据对臭氧初始场、前体物初始场和排放源进行同化订正，发现同时订正三个因子可以显著减小北京及周边地区臭氧预报误差。Jiang et al. (2013) 利用三维变分方法对中国地面 PM<sub>10</sub> 观测进行了同化，显著减小气溶胶初始场误差并提高了后续 12 小时预报的技巧，但发现同化效果随预报积分而迅速衰减，指出了源不确定性和气溶胶垂直混合模拟不确定性的重要性。张金谱等 (2014) 利用集合最优插值对珠三角地区 NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub> 及 PM<sub>10</sub> 地面观测数据进行同化，使得污染物三维分析场的精度大幅提高。Gaubert et al. (2014) 使用集合卡尔曼滤波对地面臭氧观测进行同化，探讨了同化结果对背景误差和观测代表性误差估计的敏感性，发现误差估计过程的不确定性可导致同化结果精度差异达三分之一以上。黄思等 (2016) 比较了地面观测、模拟和同化再分析数据在 PM<sub>2.5</sub> 污染回顾分析上的应用潜力和优缺点，并利用 PM<sub>2.5</sub> 同化再分析数据对京津冀一次 PM<sub>2.5</sub> 污染过程时空演变特征进行了回顾分析。Peng et al. (2017) 利用集合卡尔曼滤波对模式初始浓度场和排放源进行同时订正，有效提高了 PM<sub>2.5</sub> 预报精度。

在激光雷达探测数据同化融合上，Yumimoto et al. (2008) 利用 4DVAR (四维变分) 同化 NIES 雷达消光系数，反演了起沙通量。发现通过伴随反演得到的起沙通量缓和了模式沙尘浓度的低估，得到的沙尘分布和垂直结构也和雷达观测比较接近。Sekiyama et al. (2010) 利用 4D-LETKF (四维卡尔曼滤波) 方法成功将 CALIPSO 卫星上搭载的云—气溶胶激光雷达观测的气溶胶后向散射系数同化到全球化学传输模式中。Zhang et al. (2011) 等随后利用 3D-VAR (三维变分) 方法，对 CALIPSO 卫星上激光雷达观测的气溶胶消光系数进行同化，显著改进了美国海军气溶胶分析与预测系统的边

界层内气溶胶模拟。地基激光雷达探测数据与空气质量模式的同化应用近年来才逐渐开展，Wang et al. (2013) 利用最优插值算法对欧洲地区 12 台激光雷达观测数据和 AirBase 地面观测网资料分别进行了同化，发现同化激光雷达观测数据使得粗颗粒物 (PM<sub>10</sub>) 24 小时预报均方根误差下降 54%。

总的来看，已有同化融合研究仍侧重：多源卫星数据融合和相互补充来提高数据覆盖率，卫星和地面数据融合来提高卫星产品精度，以及某一类观测数据与数值模型数据融合来提高预报精度。尚缺少将三类观测数据与数值模拟数据同时结合起来开展同化融合的研究。考虑到卫星遥感、地基监测和雷达探测数据各自具有的信息优势，互为补充，三类数据与模型的协同同化融合在大气污染预报上具有巨大的潜力，相关研究亟待开展。

#### 4.2 源清单反演的研究进展

随着大气化学观测资料的增多以及资料同化方法的发展，利用污染物浓度观测对排放源进行反演优化为减小排放源不确定性提供了新的途径 (Enting, 2002)。污染源反演方法利用大气化学模式的物理化学约束将各种包含真实大气状态信息的实际观测资料融合到模式系统中，实现对已有排放源清单的反向优化和快速更新 (Sportisse, 2007)。该方法具有成本低、预报效果好的优点。污染源清单的反演订正已成为大气污染资料同化的一个重要发展和应用方向 (表 2)。在 Robertson and Persson (1992) 建立四维变分反演的理论框架后，已有很多研究将其和三维空气质量模式结合起来反演 CO、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 等排放源 (Elbern et al., 2007; Henze et al., 2008)。Hartley and Prinn (1993) 基于卡尔曼滤波建立了迭代反演方法，为后续研究提供了理论基础。该方法在 NH<sub>3</sub>、NO<sub>x</sub> 等排放源的反演中得到了很好应用 (Gilliland et al., 2006; Napelenok et al., 2008)。朱江和汪萍 (2006) 从理论和理想试验上

表 2 近 6 年大气污染源反演的一些典型应用

Table 2 Typical applications of air pollution source inversion in recent six years

文献出处	物种	观测数据	反演区域	空间分辨率	反演算法
Bergamaschi et al. (2014)	CH <sub>4</sub> 、N <sub>2</sub> O	地面站点	欧洲	约 1°×1°	四维变分
Koohkan et al. (2013)	VOCs	地面站点	西欧	0.5°×0.5°	四维变分
Tang et al. (2013)	CO	地面站点	北京及周边	约 0.11°×0.08°	集合卡尔曼滤波
Ghude et al. (2013)	NO <sub>x</sub>	卫星观测	印度半岛	2.8°×2.8°	质量平衡方法
Miyazaki et al. (2012)	NO <sub>2</sub> 、O <sub>3</sub> 、CO、HNO <sub>3</sub>	卫星观测	全球	2.8°×2.8°	集合卡尔曼滤波
Huneeus et al. (2012)	沙尘、海盐、BC (黑炭)、OC (有机碳)、SO <sub>2</sub>	卫星观测	全球	全球分为 9 至 11 个区域	四维变分
Hooghiemstra et al. (2012)	CO	卫星观测	全球	6°×4°	四维变分
Sugimoto et al. (2010)	沙尘	激光雷达	蒙古及周边	约 0.5°×0.4°	四维变分

探讨了利用集合卡尔曼滤波和集合卡尔曼平滑开展污染源反演的可行性。Tang et al. (2011) 利用 EnKF 同化臭氧资料对  $\text{NO}_x$  和挥发性有机物 VOCs 排放源进行了反向调整, 并初步考虑了模式误差, 但该研究主要目的是提高臭氧预报技巧, 没有评估排放源反向调整后的合理性, 对模式误差也没有进行详细估计。

Chang et al. (1996) 对比了南加州地区空气质量观测数据和模拟数据, 发现光化学传输模型低估了环境异戊二烯的浓度水平, 推断是由于排放清单低估了异戊二烯的排放强度导致。然后, 依据在多个站点观测到的异戊二烯浓度, 利用卡尔曼滤波法对异戊二烯排放清单进行校正。Elbern et al. (2000) 利用四维变分方法开展理想条件下臭氧前体物排放反演试验, 发现四维变分能有效订正一氧化氮的排放误差, 但不能有效订正挥发性有机物 (VOCs) 的排放误差。Fu et al. (2007) 利用 GOME 卫星反演的甲醛柱浓度作为约束条件来校正甲醛前体物 VOCs 的排放数据。将 GEO-CHEM 模型模拟的甲醛柱浓度与卫星观测到的甲醛柱浓度进行比较, 发现冬季卫星观测值要显著高于模拟值, 推断是甲醛的一次来源或者甲醛前体物的排放强度在清单中被低估造成的。Martin et al. (2003), Wang et al. (2007) 和 Boersma et al. (2008) 分别同化卫星观测的月均二氧化氮数据对氮氧化物排放源进行了反演订正。Stavrakou et al. (2009) 通过分析 SCIAMACHY 卫星的乙二醛和甲醛柱浓度数据, 发现已有模型研究大大低估了大气环境中乙二醛的柱浓度, 考虑陆地上可能还存在额外的来自生物排放的乙二醛源。因此, 选取甲醛柱浓度作为约束条件, 利用 IMAGESv2 全球化学传输模型的伴随模块, 分别反演估算了直接排放和前体物二次生成两种情形下的乙二醛排放源的量, 结果表明直接排放估算的乙二醛排放源的量较先验排放源的量高约  $38 \text{ Tg a}^{-1}$  (T 为单位词头, 表示  $10^{12}$ ), 而由前体物二次生成估算的乙二醛排放源的量约为先验排放源量的 2 倍。Barbu et al. (2009) 反演硫化物排放时发现, 二氧化硫氧化速率模拟对反演影响很大, 反演时不考虑其不确定性会导致源排放的错误订正。Cheng et al. (2010) 采用变分订正方法建立卫星遥感产品源同化模型, 采用卫星观测  $\text{NO}_2$  柱浓度观测数据对源清单进行了订正。Manning et al. (2011) 通过同化反演得到了英国 1990~2007 年

间甲烷和氮氧化物排放的演变趋势。Yang et al. (2011) 通过卫星资料同化反演评估了华北地区氮氧化物在 2008 年北京奥运期间的减排幅度及其对臭氧的影响。Corazza et al. (2011) 使用变分方法, 结合地面观测反演欧洲的  $\text{N}_2\text{O}$  排放。大部分污染源反演研究基本都假定模式是完美的, 即假定观测和模拟差异全部来自排放源和观测误差, 对模式误差 (排放源和观测误差以外的误差) 关注较少。Jiang et al. (2011) 发现 CO 源反演中忽略模式误差引入的反演偏差超过 20%, 并导致排放源负值的出现。Mijling and Van Der A (2012) 通过大气化学传输模式的模拟建立短寿命物种的排放与浓度关系, 再通过向后轨迹找出敏感区域, 从而用观测模拟的浓度差异调整排放源。Koochkan et al. (2013) 基于西欧地区 11 个站点 VOCs 观测数据, 利用经过验证的快速伴随化学传输模型, 反演估算了包括 5 种芳香烃、6 种烷烃、2 种烯烃、1 种炔烃和 1 种生物二烯共 15 种 VOCs 的排放量, 反演估算结果表明初始清单中丙烷、乙烷、乙烯和乙炔低估将近一半。此外, 研究也指出使用相对稀疏的站点观测数据来估算异戊二烯是不恰当的, 因为异戊二烯在大气中的生命周期很短, 站点数据的空间代表性十分有限。Tang et al. (2013) 基于集合卡尔曼滤波建立了城市尺度的大气污染源清单反演系统, 通过随机参数化在反演中对模式误差进行了估计, 解决了污染源反演过程中模式误差不恰当估计导致的反演偏差, 并且量化了反演清单不确定性。Wang et al. (2014) 等利用北京市 27 个站点 2009 年 6 月至 2012 年 1 月的 VOC 观测数据, 选取 CO 作为参比化合物和基于甲苯和二甲苯观测数据的光化学龄法, 结合反演校正后的 CO 清单, 估算了北京市 VOCs 排放量, 结果显示现有清单可能低估了含氧挥发性有机物 (OVOC) 和 C2-C4 的链式烷烃的排放量, 而苯乙烯和 1, 3-丁二烯的排放量可能被高估。Wang et al. (2016) 利用集合最优插值算法对地面黑炭观测数据进行同化, 反演订正了中国地区黑炭排放源清单。Zhang et al. (2016) 通过地面  $\text{PM}_{2.5}$  和  $\text{SO}_2$  观测数据反演估计了 2015 年 APEC (Asia-Pacific Economic Cooperation) 阅兵期间京津冀气溶胶排放, 指出反演结果对无机气溶胶、氨和氮氧化物不确定性非常敏感。

目前已有的研究主要以弱化学活性污染物 (如 CO 和  $\text{CH}_4$ ) 的源排放为反演对象, 强化学活性污



染物的源反演以氮氧化物粗时空分辨率反演为主, 而其它强化学污染物(如  $\text{NH}_3$  和 VOCs)的反演研究较少, 其反演仍具有很大的挑战性。反演时间分辨率多为年或月尺度, 空间分辨率较低。部分区域研究中使用密集的地面站点或航测数据, 分辨率能达到  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$  以下 (Mijling and Van Der A, 2012; Tang et al., 2013)。此外, 在反演中需要对一些重要的误差来源进行考虑和处理。使用卫星观测时一个重要的工作是对卫星信号进行偏差订正 (Streets et al., 2003)。卫星在不同波段的垂直敏感性不一, 使用不同波段的产品对反演结果能有明显影响 (Jiang et al., 2015), 反演中融合多套数据的垂直信息能提高结果精度。排放之外, 汇也是模拟浓度重要的影响因素, 若未考虑其不确定性, 可能过度调整排放源。使用更细致的沉降模型或考虑与其反应物种的不确定性 (Stavrakou et al., 2009), 可进一步提高源反演结果的精度。不同传输方案在网格尺度上能达到 150% 的不确定性, 在高精度反演中需要加以考虑 (Zhang et al., 2015)。由于物种间的化学反应, 非反演物种的浓度误差能干扰反演结果, 同时进行多物种同化能提高反演精度 (Miyazaki et al., 2012; Tang et al., 2016)。

## 5 面临的挑战

虽然大气污染资料同化在污染物浓度场同化和污染源清单反演订正上取得了很多重要进展, 但已有的资料同化方案主要基于天气预报的相关理论和方法, 目前在提高大气污染预报上也遇到了不少瓶颈问题和挑战。

(1) 大气污染监测数据从以往少量稀缺开始向区域性全覆盖海量多源转变, 地面、卫星、雷达等使得大气污染监测在空间上向立体多维发展, 而以往资料同化方法研发主要针对某一类观测或污染物种, 海量多源数据使同化变量维度大幅增加, 也使观测误差协方差估计变得困难。国家环境空气质量监测网包含上千个地面观测站点, 站点空间分布很不规则, 受局地源排放和气象场等因素影响, 不同站点监测数据的空间代表性差异很大。同化这些数据进模式系统时, 需合理评估其代表性误差。目前估计大气污染地面观测代表性误差主要采用 Elbern et al. (2007) 提出的方法, 观测站点的代表性范围根据站点分类(城区、郊区和农村)分别设为 2、4、10 km。由于我国排放水平、气象条件与

欧美地区存在显著差异, 将其直接应用于我国存在很大不确定性。考虑我国地面观测的自身特点, 客观合理评估观测的空间代表性误差非常必要。因此, 如何结合我国自身观测特点, 构建具备海量多源数据同化能力的三维立体资料同化方法是一个关键挑战。

(2) 与数值天气预报的资料同化相比, 大气污染资料同化最大的不同与挑战主要有两点。第一, 数值天气预报主要是初值问题, 因此气象资料同化重点在减少初值的不确定性。而大气污染预报不仅是污染物浓度的初值问题, 还涉及污染源清单、天气预报场和模式参数的不确定性等。因此大气污染资料同化不但要减少污染物初始浓度场的不确定性, 还要尽可能减少污染源清单的误差, 并且这些工作也需要同时考虑天气预报场的不确定性, 否则就会把帐都算到污染物初值、源清单上, 导致“过分调整”问题。第二, 大气复合污染资料同化需要处理强非线性的化学反应。Tang et al. (2016) 研究表明, 采用目前大气资料同化上最为先进的算法之一集合卡尔曼滤波算法, 其在处理臭氧资料同化的强化学非线性问题时, 也会出现同化负效应。因此, 如何处理强化学非线性同化问题是大气污染资料同化面临的关键难题。同时, 大气复合污染数值模式中  $\text{PM}_{2.5}$  的成分多达几十乃至上百个, 其平衡关系复杂, 远比气象资料同化的“热成风”关系复杂。

(3) 大气污染资料同化的一个重要目标是减小源清单不确定性, 然而目前仍侧重于弱化学活性物质 ( $\text{CH}_4$ 、 $\text{CO}$  等) 以及少数强化学活性物质 (如  $\text{NO}_x$ ) 的排放源反演, 对臭氧和细颗粒物预报至关重要的强活性前体物排放源 ( $\text{NH}_3$  和 VOCs 等) 反演工作有限, 原因在于这些污染物观测数据稀缺, 且对强活性物质化学反应过程认识不足。例如, Barbu et al. (2009) 对硫化物反演时发现不考虑二氧化硫氧化速率存在的较大不确定性会导致对源的错误订正。

(4)  $\text{PM}_{2.5}$  数据同化与  $\text{CO}$ 、 $\text{O}_3$  等污染物数据同化最显著差别在于,  $\text{PM}_{2.5}$  在模式中是基于硫酸盐、硝酸盐等气溶胶组分诊断出来的间接变量, 实际观测变量主要是  $\text{PM}_{2.5}$  总质量浓度, 而气溶胶组分观测非常稀少, 难以满足大范围数据同化对气溶胶组分观测数据的需求。常用做法是同化  $\text{PM}_{2.5}$  观测数据, 得到对  $\text{PM}_{2.5}$  模拟浓度的订正量, 然后将该订正量按模拟的气溶胶组分比例线性分摊到气溶胶

组分 (Pagowski et al., 2014)。其主要局限在于:难以考虑不同气溶胶组分模拟不确定性的动态变化,当模拟的气溶胶组分比例与实际大气差别较大时,这种订正方式会给气溶胶组分估计引入新的不确定性。背景场误差协方差矩阵决定了同化时观测信息对模式变量的订正范围和程度,其估计问题是资料同化的核心。 $PM_{2.5}$ 模拟误差受气象场、排放源、模式参数等众多复杂因子影响,时空变化非常复杂,并且缺乏足够观测信息对其进行完整评估。扰动模式参量来构建集合预报是解决这一问题的可行途径,但扰动单因子可能导致背景场误差协方差的严重低估 (Pagowski and Grell, 2012),扰动过多参量会引入大量随机噪声,产生的虚假相关性会导致虚假同化订正。因此,如何克服上述问题,动态合理估计  $PM_{2.5}$  背景场误差协方差,如何合理考虑不同气溶胶组分模拟不确定性的差别,实现  $PM_{2.5}$  观测数据的多变量协同同化是目前面临的一大关键挑战。

### 参考文献 (References)

- Austin J. 1992. Toward the four dimensional assimilation of stratospheric chemical constituents [J]. *J. Geophys. Res.*, 97 (D2): 2569–2588, doi:10.1029/91JD02603.
- 白晓平, 李红, 方栋, 等. 2008. 资料同化方法在空气污染数值预报中的应用研究 [J]. *环境科学*, 29 (2): 283–289. Bai Xiaoping, Li Hong, Fang Dong, et al. 2008. Application research of data assimilation in air pollution numerical prediction [J]. *Environmental Science (in Chinese)*, 29 (2): 283–289, doi:10.3321/j.issn:0250-3301.2008.02.002.
- Barbu A L, Segers A J, Schaap M, et al. 2009. A multi-component data assimilation experiment directed to sulphur dioxide and sulphate over Europe [J]. *Atmos. Environ.*, 43 (9): 1622–1631, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.12.005.
- Beekmann M, Derognat C. 2003. Monte Carlo uncertainty analysis of a regional-scale transport chemistry model constrained by measurements from the atmospheric pollution over the Paris area (ESQUIF) campaign [J]. *J. Geophys. Res.*, 108 (D17): 8559, doi:10.1029/2003JD003391.
- Bellouin N, Quaas J, Morcrette J J, et al. 2013. Estimates of aerosol radiative forcing from the MACC re-analysis [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13 (4): 2045–2062, doi:10.5194/acp-13-2045-2013.
- Bergamaschi P, Corazza M, Karstens U, et al. 2014. Top-down estimates of European  $CH_4$  and  $N_2O$  emissions based on four different inverse models [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15 (2): 715–736, doi:10.5194/acp-15-715-2015.
- Bergthorsson P, Döös B R, Fryklund S, et al. 1955. Routine forecasting with the barotropic model [J]. *Tellus*, 7 (2): 272–274, doi:10.1111/j.2153-3490.1955.tb01162.x.
- Boersma K F, Jacob D J, Bucsela E J, et al. 2008. Validation of OMI tropospheric  $NO_2$  observations during INTEX-B and application to constrain  $NO_x$  emissions over the eastern United States and Mexico [J]. *Atmos. Environ.*, 42 (19): 4480–4497, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.02.004.
- Bouttier F, Courtier P. 1999. Data assimilation concepts and methods [R]. Meteorological Training Course Lecture Series. ECMWF.
- 曹国良, 张小曳, 龚山陵, 等. 2011. 中国区域主要颗粒物及污染气体的排放源清单 [J]. *科学通报*, 56 (3): 261–268. Cao Guoliang, Zhang Xiaoye, Gong Shanling, et al. 2011. Emission inventories of primary particles and pollutant gases for China [J]. *Chinese Science Bulletin*, 56 (8): 781–788, doi:10.1007/s11434-011-4373-7.
- Carmichael G R, Sandu A, Chai T F, et al. 2008. Predicting air quality: Improvements through advanced methods to integrate models and measurements [J]. *J. Comput. Phys.*, 227 (7): 3540–3571, doi:10.1016/j.jcp.2007.02.024.
- Chang M E, Hartley D E, Cardelino C, et al. 1996. Inverse modeling of biogenic isoprene emissions [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 23 (21): 3007–3010, doi:10.1029/96GL02370.
- Cheng X H, Xu X D, Ding G A. 2010. An emission source inversion model based on satellite data and its application in air quality forecasts [J]. *Science China Earth Sciences*, 53 (5): 752–762, doi:10.1007/s11430-010-0044-9.
- Corazza M, Bergamaschi P, Vermeulen A T, et al. 2011. Inverse modelling of European  $N_2O$  emissions: Assimilating observations from different networks [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11 (5): 2381–2398, doi:10.5194/acp-11-2381-2011.
- Cressman G P. 1959. An operational objective analysis system [J]. *Monthly Weather Review*, 87 (10): 367–374, doi: 10.1175/1520-0493(1959)087<0367:AOOAS>2.0.CO;2
- 崔应杰, 王自发, 朱江, 等. 2006. 空气质量数值模式预报中资料同化的初步研究 [J]. *气候与环境研究*, 11 (5): 616–626. Cui Yingjie, Wang Zifa, Zhu Jiang, et al. 2006. A preliminary study on data assimilation for numerical air quality model prediction [J]. *Climatic and Environmental Research (in Chinese)*, 11 (5): 616–626, doi:10.3969/j.issn.1006-9585.2006.05.006.
- Dai T, Schutgens N A J, Goto D, et al. 2014. Improvement of aerosol optical properties modeling over eastern Asia with MODIS AOD assimilation in a global non-hydrostatic icosahedral aerosol transport model [J]. *Environmental Pollution*, 195: 319–329, doi:10.1016/j.envpol.2014.06.021.
- Dee D P, Uppala S M, Simmons A J, et al. 2011. The ERA-interim reanalysis: Configuration and performance of the data assimilation system [J]. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 137 (656): 553–597, doi:10.1002/qj.828.
- Elbern H, Schmidt H, Talagrand O, et al. 2000. 4D-variational data assimilation with an adjoint air quality model for emission analysis [J]. *Environmental Modelling & Software*, 15 (6–7): 539–548, doi:10.1016/S1364-8152(00)00049-9.
- Elbern H, Strunk A, Schmidt H, et al. 2007. Emission rate and chemical state estimation by 4-dimensional variational inversion [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7 (14): 3749–3769, doi:10.5194/acp-7-3749-2007.
- Enting I G. 2002. Inverse Problems in Atmospheric Constituent Transport

- [M]. Cambridge: Cambridge University Press.
- Evensen G. 1994. Sequential data assimilation with a nonlinear quasi-geostrophic model using Monte Carlo methods to forecast error statistics [J]. *J. Geophys. Res.*, 99 (C5): 10143–10162, doi:10.1029/94JC00572.
- Evensen G. 2009. The ensemble Kalman filter for combined state and parameter estimation [J]. *IEEE Control Systems*, 29 (3): 83–104, doi:10.1109/MCS.2009.932223.
- Fu T M, Jacob D J, Palmer P I, et al. 2007. Space-based formaldehyde measurements as constraints on volatile organic compound emissions in East and South Asia and implications for ozone [J]. *J. Geophys. Res.*, 112 (D6): D06312, doi:10.1029/2006JD007853.
- Gandin L S. 1963. *Objective Analysis of Meteorological Fields* [J]. Leningrad: Gidromet.
- Gaubert B, Coman A, Foret G, et al. 2014. Regional scale ozone data assimilation using an ensemble Kalman filter and the CHIMERE chemical transport model [J]. *Geoscientific Model Development Discussions*, 6 (2): 3033–3083, doi:10.5194/gmd-6-3033-2013.
- Ghude S D, Kulkarni S H, Jena C, et al. 2013. Application of satellite observations for identifying regions of dominant sources of nitrogen oxides over the Indian subcontinent [J]. *J. Geophys. Res.*, 118 (2): 1075–1089, doi:10.1029/2012JD017811.
- Gilliland A B, Wyatt Appel K, Pinder R W, et al. 2006. Seasonal NH<sub>3</sub> emissions for the continental united states: Inverse model estimation and evaluation [J]. *Atmos. Environ.*, 40 (26): 4986–4998, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.12.066.
- Hanna S R, Chang J C, Fernau M E. 1998. Monte Carlo estimates of uncertainties in predictions by a photochemical grid model (UAM-IV) due to uncertainties in input variables [J]. *Atmos. Environ.*, 32 (21): 3619–3628, doi:10.1016/S1352-2310(97)00419-6.
- Hanna S R, Lu Z G, Frey H C, et al. 2001. Uncertainties in predicted ozone concentrations due to input uncertainties for the UAM-V photochemical grid model applied to the July 1995 OTAG domain [J]. *Atmos. Environ.*, 35 (5): 891–903, doi:10.1016/S1352-2310(00)00367-8.
- Hao J M, Tian H Z, Lu Y Q. 2002. Emission inventories of NO<sub>x</sub> from commercial energy consumption in China, 1995–1998 [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 36 (4): 552–560, doi:10.1021/es015601k.
- Hartley D, Prinn R. 1993. Feasibility of determining surface emissions of trace gases using an inverse method in a three-dimensional chemical transport model [J]. *J. Geophys. Res.*, 98 (D3): 5183–5197, doi:10.1029/92JD02594.
- Hayami H, Sakurai T, Han Z, et al. 2008. MICS-Asia II: Model intercomparison and evaluation of particulate sulfate, nitrate and ammonium [J]. *Atmos. Environ.*, 42 (15): 3510–3527, doi:10.1016/j.atmosenv.2007.08.057.
- Henze D K, Seinfeld J H, Shindell D T. 2008. Inverse modeling and mapping US air quality influences of inorganic PM<sub>2.5</sub> precursor emissions using the adjoint of GEOS-Chem [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 8 (4): 15031–15099.
- Hoke J E, Anthes R A. 1976. The initialization of numerical models by a dynamic-initialization technique [J]. *Mon. Wea. Rev.*, 104 (12): 1551–1556, doi:10.1175/1520-0493(1976)104<1551:TIONMB>2.0.CO;2.
- Hooghiemstra P B, Krol M C, Bergamaschi P, et al. 2012. Comparing optimized CO emission estimates using MOPITT or NOAA surface network observations [J]. *J. Geophys. Res.*, 117 (D6): D06309, doi:10.1029/2011JD017043.
- 黄思, 唐晓, 王自发, 等. 2016. 基于观测、模拟和同化数据的 PM<sub>2.5</sub> 污染回顾分析 [J]. *气候与环境研究*, 21 (6): 700–710. Huang Si, Tang Xiao, Wang Zifa, et al. 2016. Evaluating the PM<sub>2.5</sub> pollution over Beijing–Hebei–Tianjin region based on observations, simulations, and data assimilation results [J]. *Climatic and Environmental Research (in Chinese)*, 21 (6): 700–710, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2016.14284.
- Huneeus N, Chevallier F, Boucher O. 2012. Estimating aerosol emissions by assimilating observed aerosol optical depth in a global aerosol model [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12 (10): 4585–4606, doi:10.5194/acp-12-4585-2012.
- Inness A, Baier F, Benedetti A, et al. 2013. The MACC reanalysis: An 8 yr data set of atmospheric composition [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13 (8): 4073–4109, doi:10.5194/acp-13-4073-2013.
- Jiang Z, D. B. A. Jones, M. Kopacz, et al. 2011. Quantifying the impact of model errors on top-down estimates of carbon monoxide emissions using satellite observations [J]. *J. Geophys. Res.*, 116, D15306, doi:10.1029/2010JD015282.
- Jiang Z, Jones D B A, Worden H M, et al. 2015. Sensitivity of top-down CO source estimates to the modeled vertical structure in atmospheric CO [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15 (3): 1521–1537, doi:10.5194/acp-15-1521-2015.
- Jiang Z P, Liu Z Q, Wang T J, et al. 2013. Probing into the impact of 3DVAR assimilation of surface PM<sub>10</sub> observations over China using process analysis [J]. *J. Geophys. Res.*, 118 (12): 6738–6749, doi:10.1002/jgrd.50495.
- Kalman R E. 1960. A new approach to linear filtering and prediction problems [J]. *Journal of Basic Engineering*, 82(1): 35–45, doi:10.1115/1.3662552.
- Kalnay E, Kanamitsu M, Kistler R, et al. 1996. The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project [J]. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 77 (3): 437–472, doi:10.1175/1520-0477(1996)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2.
- Kinne S. 2009. *Remote sensing data combinations: Superior global maps for aerosol optical depth*[M]/Kokhanovsky A, De Leeuw G. *Satellite Aerosol Remote Sensing over Land*. Berlin, Heidelberg: Springer, 361–381, doi:10.1007/978-3-540-69397-0.
- Kistler R E. 1974. A study of data assimilation techniques in an autobarotropic, primitive equation, channel model [D]. M. S. thesis, Pennsylvania State University.
- Koohkan M R, Bocquet M, Roustan Y, et al. 2013. Estimation of volatile organic compound emissions for Europe using data assimilation [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13 (12): 5887–5905, doi:10.5194/acp-13-5887-2013.
- Kukkonen J, Olsson T, Schultz D M, et al. 2012. A review of operational, regional-scale, chemical weather forecasting models in Europe [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12 (1): 1–87, doi:10.5194/acp-12-1-2012.
- Lin C, Wang Z, Zhu J. 2008a. An ensemble Kalman filter for severe dust storm data assimilation over China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8 (11): 2975–2983, doi:10.5194/acp-8-2975-2008.

- Lin C Y, Zhu J, Wang Z F. 2008b. Model bias correction for dust storm forecast using ensemble Kalman filter [J]. *J. Geophys. Res.*, 113 (D14): D14306, doi:10.1029/2007JD009498.
- Liu J, Han Y Q, Tang X, et al. 2016. Estimating adult mortality attributable to PM<sub>2.5</sub> exposure in China with assimilated PM<sub>2.5</sub> concentrations based on a ground monitoring network [J]. *Science of the Total Environment*, 568: 1253–1262, doi:10.1016/j.scitotenv.2016.05.165.
- Lin J T, Nielsen C P, Zhao Y, et al. 2010. Recent changes in particulate air pollution over China observed from space and the ground: Effectiveness of emission control [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 44 (20): 7771–7776, doi:10.1021/es101094t.
- Liu P, Chen H. 2010. Research on the application of lidar extinction coefficient inversion method [C]//Proceedings of SPIE 7656, 5th International Symposium on Advanced Optical Manufacturing and Testing Technologies: Optical Test and Measurement Technology and Equipment. Dalian, China: SPIE, 76565L, doi:10.1117/12.866050.
- Liu Z Q, Liu Q H, Lin H C, et al. 2011. Three-dimensional variational assimilation of MODIS aerosol optical depth: Implementation and application to a dust storm over East Asia [J]. *J. Geophys. Res.*, 116 (D23): D23206, doi:10.1029/2011JD016159.
- Lorenz E N, Emanuel K A. 1998. Optimal sites for supplementary weather observations: Simulation with a small model [J]. *J. Atmos. Sci.*, 55 (3): 399–414, doi:10.1175/1520-0469(1998)055<0399:OSFSWO>2.0.CO;2.
- 麻巨慧, 朱跃进, 王盘兴, 等. 2011. NCEP、ECMWF 及 CMC 全球集合预报业务系统发展综述 [J]. *大气科学学报*, 34 (3): 370–380. Ma Juhui, Zhu Yuejian, Wang Panxing, et al. 2011. A review on the developments of NCEP, ECMWF and CMC global ensemble forecast system [J]. *Trans. Atmos. Sci. (in Chinese)*, 34 (3): 370–380, doi:10.3969/j.issn.1674-7097.2011.03.015.
- Manning A J, O'Doherty S, Jones A R, et al. 2011. Estimating UK methane and nitrous oxide emissions from 1990 to 2007 using an inversion modeling approach [J]. *J. Geophys. Res.*, 116 (D2): D02305, doi:10.1029/2010JD014763.
- Martin R V, Jacob D J, Chance K, et al. 2003. Global inventory of nitrogen oxide emissions constrained by space-based observations of NO<sub>2</sub> columns [J]. *J. Geophys. Res.*, 108 (D17): 4537, doi:10.1029/2003JD003453.
- Martin, R.V. 2008. Satellite remote sensing of surface air quality [J]. *Atmos. Environ.*, 42 (34): 7823–7843, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.07.018
- Mijling B, Van Der A R J. 2012. Using daily satellite observations to estimate emissions of short-lived air pollutants on a mesoscopic scale [J]. *J. Geophys. Res.*, 117 (D17): D17302, doi:10.1029/2012JD017817.
- Miyazaki K, Eskes H J, Sudo K, et al. 2012. Simultaneous assimilation of satellite NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, CO, and HNO<sub>3</sub> data for the analysis of tropospheric chemical composition and emissions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12 (7): 16131–16218, doi:10.5194/acpd-12-16131-2012.
- Moore G E, Londergan R J. 2001. Sampled Monte Carlo uncertainty analysis for photochemical grid models [J]. *Atmos. Environ.*, 35 (28): 4863–4876, doi:10.1016/S1352-2310(01)00260-6.
- Napelenok S L, Pinder R W, Gilliland A B, et al. 2008. A method for evaluating spatially-resolved NO<sub>x</sub> emissions using Kalman filter inversion, direct sensitivities, and space-based NO<sub>2</sub> observations [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8 (18): 5603–5614, doi:10.5194/acp-8-5603-2008.
- Nirala M. 2008. Technical note: Multi-sensor data fusion of aerosol optical thickness [J]. *Int. J. Remote Sens.*, 29 (7): 2127–2136, doi:10.1080/01431160701395336.
- Pagowski, M. and Grell G A. 2012. Experiments with the assimilation of fine aerosols using an ensemble Kalman filter [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 117: 15, doi: 10.1029/2012JD018333.
- Pagowski M, Liu Z, Grell G A, et al. 2014. Implementation of aerosol assimilation in gridpoint statistical interpolation (v.3.2) and WRF-Chem (v.4.3.1) [J]. *Geoscientific Model Development*, 7 (4): 1621–1627, doi:10.5194/gmd-7-1621-2014.
- Palmer T N, Gelaro R, Barkmeijer J, et al. 1998. Singular vectors, metrics, and adaptive observations [J]. *J. Atmos. Sci.*, 55 (4): 633–653, doi:10.1175/1520-0469(1998)055<0633:SVMAAO>2.0.CO;2.
- Parrish D F, Derber J C. 1992. The national meteorological center's spectral statistical-interpolation analysis system [J]. *Mon. Wea. Rev.*, 120 (8): 1747–1763, doi:10.1175/1520-0493(1992)120<1747:TNMCSS>2.0.CO;2.
- Peng Z, Liu Z, Chen D, et al. 2017. Improving PM<sub>2.5</sub> forecast over China by the joint adjustment of initial conditions and source emissions with an ensemble Kalman filter [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17 (7): 4837–4855, doi:10.5194/acp-17-4837-2017.
- Robertson L, Persson C. 1992. On the application of four dimensional data assimilation of air pollution data using the ajoin technique [M]//Van Dop H, Kallos G. *Air Pollution Modeling and Its Application IX*. Boston, MA: Springer, 365–373, doi:10.1007/978-1-4615-3052-7\_37.
- Roselle S J. 1994. Effects of biogenic emission uncertainties on regional photochemical modeling of control strategies [J]. *Atmos. Environ.*, 28 (10): 1757–1772, doi:10.1016/1352-2310(94)90138-4.
- Sandu A, Chai T F. 2011. Chemical data assimilation—An overview [J]. *Atmosphere*, 2 (3): 426–463, doi:10.3390/atmos2030426.
- Sasaki Y. 1970. Some basic formalisms in numerical variational analysis [J]. *Mon. Wea. Rev.*, 98 (12): 875–883, doi:10.1175/1520-0493(1970)098<0875:SBFINV>2.3.CO;2.
- Sekiyama T T, Tanaka T Y, Shimizu A, et al. 2010. Data assimilation of CALIPSO aerosol observations [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10 (1): 39–49, doi:10.5194/acp-10-39-2010.
- Sillman S, Al-Wali K I, Marsik F J, et al. 1995. Photochemistry of ozone formation in Atlanta, GA—Models and measurements [J]. *Atmos. Environ.*, 29 (21): 3055–3066, doi:10.1016/1352-2310(95)00217-M.
- Sistla G, Zhou N, Hao W, et al. 1996. Effects of uncertainties in meteorological inputs on urban airshed model predictions and ozone control strategies [J]. *Atmos. Environ.*, 30 (12): 2011–2025, doi:10.1016/1352-2310(95)00268-5.
- Sportisse B. 2007. A review of current issues in air pollution modeling and simulation [J]. *Computational Geosciences*, 11 (2): 159–181, doi:10.1007/s10596-006-9036-4.
- Stavrakou T, Müller J F, De Smedt I, et al. 2009. The continental source of glyoxal estimated by the synergistic use of spaceborne measurements and inverse modelling [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9 (21): 8431–8446, doi:10.5194/acp-9-8431-2009.
- Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, et al. 2003. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000 [J]. *J.*

- Geophys. Res., 108 (D21): 8809, doi:10.1029/2002JD003093.
- Sugimoto N, Hara Y, Yumimoto K, et al. 2010. Dust emission estimated with an assimilated dust transport model using lidar network data and vegetation growth in the Gobi desert in Mongolia [J]. SOLA, 6 (1): 125–128, doi:10.2151/sola.2010-032.
- Tang X, Zhu J, Wang Z F, et al. 2011. Improvement of ozone forecast over Beijing based on ensemble Kalman filter with simultaneous adjustment of initial conditions and emissions [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 11 (24): 12901–12916, doi:10.5194/acp-11-12901-2011.
- Tang X, Zhu J, Wang Z F, et al. 2013. Inversion of CO emissions over Beijing and its surrounding areas with ensemble Kalman filter [J]. Atmos. Environ., 81: 676–686, doi:10.1016/j.atmosenv.2013.08.051.
- Tang X, Zhu J, Wang Z F, et al. 2016. Limitations of ozone data assimilation with adjustment of NO<sub>x</sub> emissions: Mixed effects on NO<sub>2</sub> forecasts over Beijing and surrounding areas [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 16 (10): 6395–6405, doi:10.5194/acp-16-6395-2016.
- 陶金花, 张美根, 陈良富, 等. 2013. 一种基于卫星遥感 AOT 估算近地面颗粒物的方法 [J]. 中国科学: 地球科学, 43 (10): 143–154. Tao Jinhua, Zhang Meigen, Chen Liangfu, et al. 2013. A method to estimate concentrations of surface-level particulate matter using satellite-based aerosol optical thickness [J]. Science China Earth Sciences, 56 (8): 1422–1433, doi:10.1007/s11430-012-4503-3.
- Tong M J, Xue M. 2008. Simultaneous estimation of microphysical parameters and atmospheric state with simulated radar data and ensemble square root Kalman filter. Part I: Sensitivity analysis and parameter identifiability [J]. Mon. Wea. Rev., 136 (5): 1630–1648, doi:10.1175/2007MWR2070.1.
- Uzunoglu B. 2007. Adaptive observations in ensemble data assimilation [J]. Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, 196 (41–44): 4207–4221, doi:10.1016/j.cma.2007.04.004.
- Van Loon M, Builtjes P J H, Segers A J. 2000. Data assimilation of ozone in the atmospheric transport chemistry model LOTOS [J]. Environmental Modelling & Software, 15 (6–7): 603–609, doi:10.1016/S1364-8152(00)00048-7.
- Wang M, Shao M, Chen W, et al. 2014. A temporally and spatially resolved validation of emission inventories by measurements of ambient volatile organic compounds in Beijing, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 14 (12): 5871–5891, doi:10.5194/acp-14-5871-2014.
- Wang P, Wang H, Wang Y Q, et al. 2016. Inverse modeling of black carbon emissions over China using ensemble data assimilation [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 16 (2): 989–1002, doi:10.5194/acp-16-989-2016.
- Wang Y, Sartelet K N, Bocquet M, et al. 2013. Assimilation of ground versus lidar observations for PM<sub>10</sub> forecasting [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 13 (1): 269–283, doi:10.5194/acp-13-269-2013.
- 王跃思, 姚利, 刘子锐, 等. 2013. 京津冀大气霾污染及控制策略思考 [J]. 中国科学院院刊, 28 (3): 353–363. Wang Yuesi, Yao Li, Liu Zirui, et al. 2013. Formation of haze pollution in Beijing–Tianjin–Hebei region and their control strategies [J]. Bulletin of Chinese Academy of Sciences (in Chinese), 28 (3): 353–363, doi:10.3969/j.issn.1000-3045.2013.03.009.
- Wang Y X, McElroy M B, Martin R V, et al. 2007. Seasonal variability of NO<sub>x</sub> emissions over east China constrained by satellite observations: Implications for combustion and microbial sources [J]. J. Geophys. Res., 112 (D6): D06301, doi:10.1029/2006JD007538.
- 魏巍, 王书肖, 郝吉明. 2011. 中国人源 VOC 排放清单不确定性研究 [J]. 环境科学, 32 (2): 305–312. Wei Wei, Wang Shuxiao, Hao Jiming. 2011. Uncertainty analysis of emission inventory for volatile organic compounds from anthropogenic sources in China [J]. Environmental Science (in Chinese), 32 (2): 305–312, doi:10.13227/j.hjxx.2011.02.021.
- Wu L, Mallet V, Bocquet M, et al. 2008. A comparison study of data assimilation algorithms for ozone forecasts [J]. J. Geophys. Res., 113 (D20): D20310, doi:10.1029/2008JD009991.
- 徐祥德, 许建民, 王继志, 等. 2003. 大气遥感再分析场构造技术与原理 [M]. 北京: 气象出版社. Xu Xiangde, Xu Jianmin, Wang Jizhi, et al. 2003. The Technology and Principle of Atmospheric Remote Sensing Reanalysis Field (in Chinese) [M]. Beijing: China Meteorological Press.
- 徐祥德, 周丽, 周秀骥, 等. 2004. 城市环境大气重污染过程周边源影响域 [J]. 中国科学 D 辑 地球科学, 34 (10): 958–966. Xu Xiangde, Zhou Li, Zhou Xiujie, et al. 2004. Influencing domain of peripheral sources in the urban heavy pollution process of Beijing [J]. Science in China Series D Earth Sciences, 48 (4): 565–575, doi:10.3969/j.issn.1674-7240.2004.10.009.
- Yang Q, Wang Y H, Zhao C, et al. 2011. NO<sub>x</sub> emission reduction and its effects on ozone during the 2008 Olympic Games [J]. Environ. Sci. Technol., 45 (15): 6404–6410, doi:10.1021/es200675v.
- Yumimoto K, Uno I, Sugimoto N, et al. 2008. Adjoint inversion modeling of Asian dust emission using lidar observations [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 8 (11): 2869–2884, doi:10.5194/acp-8-2869-2008.
- Yumimoto K, Nagao T M, Kikuchi M, et al. 2016. Aerosol data assimilation using data from Himawari-8, a next-generation geostationary meteorological satellite [J]. Geophys. Res. Lett., 43 (11): 5886–5894, doi:10.1002/2016GL069298.
- Zhang J L, Campbell J R, Reid J S, et al. 2011. Evaluating the impact of assimilating CALIOP-derived aerosol extinction profiles on a global mass transport model [J]. Geophys. Res. Lett., 38 (14): L14801, doi:10.1029/2011GL047737.
- 张金谱, 胡嘉镱, 王雪梅. 2014. 集合最优插值同化方法在珠三角空气质量模拟中的初步应用 [J]. 环境科学学报, 34 (3): 558–566. Zhang Jinpu, Hu Jiatang, Wang Xuemei. 2014. Preliminary application of ensemble optimal interpolation data assimilation method on air quality numerical modeling in the Pearl River Delta [J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 34 (3): 558–566, doi:10.13671/j.hjxxb.2014.0103.
- Zhang L, Shao J Y, Lu X, et al. 2016. Sources and processes affecting fine particulate matter pollution over North China: An adjoint analysis of the Beijing APEC period [J]. Environ. Sci. Technol., 50 (16): 8731–8740, doi:10.1021/acs.est.6b03010.
- Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, et al. 2009. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 9 (14): 5131–5153, doi:10.5194/acp-9-5131-2009.
- Zhang X L, Li Q B, Su G F, et al. 2015. Ensemble-based simultaneous emission estimates and improved forecast of radioactive pollution from nuclear power plant accidents: Application to ETEX tracer experiment [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 142: 78–86, doi:10.1016/j.jenvrad.2015.01.013.

- 张小曳, 孙俊英, 王亚强, 等. 2013. 我国雾-霾成因及其治理的思考 [J]. 科学通报, 58 (13): 1178–1187. Zhang Xiaoye, Sun Junying, Wang Yaqiang, et al. 2013. Factors contributing to haze and fog in China [J]. Chinese Science Bulletin (in Chinese), 58 (13): 1178–1187, doi:10.1360/972013-150.
- Zhang Y, Bocquet M, Mallet V, et al. 2012. Real-time air quality forecasting. Part II: State of the science, current research needs, and future prospects [J]. Atmos. Environ., 60: 656–676, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.02.041.
- Zheng B, Zhang Q, Zhang Y, et al. 2015. Heterogeneous chemistry: A mechanism missing in current models to explain secondary inorganic aerosol formation during the January 2013 haze episode in North China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 15 (4): 2031–2049, doi:10.5194/acp-15-2031-2015.
- Zheng D Q, Leung J K C, Lee B Y. 2009. Online update of model state and parameters of a Monte Carlo atmospheric dispersion model by using ensemble Kalman filter [J]. Atmos. Environ., 43 (12): 2005–2011, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.01.014.
- 朱江, 汪萍. 2006. 集合卡尔曼平滑和集合卡尔曼滤波在污染源反演中的应用 [J]. 大气科学, 30 (5): 871–882. Zhu Jiang, Wang Ping. 2006. Ensemble Kalman smoother and ensemble Kalman filter approaches to the joint air quality state and emission estimation problem [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 30 (5): 871–882, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2006.05.16.
- Zoogman P, Jacob D J, Chance K, et al. 2014. Improved monitoring of surface ozone by joint assimilation of geostationary satellite observations of ozone and CO [J]. Atmospheric Environment, 84 (2):254-261, doi:10.1016/j.atmosenv.2013.11.048
- Zyryanov D, Foret G, Eremenko M, et al. 2011. 3-D evaluation of tropospheric ozone simulations by an ensemble of regional chemistry transport model [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 11 (10): 28797-28849, doi:10.5194/acpd-11-28797-2011.