

李飞, 唐晓, 王自发, 等. 2019. 基于京津冀高密度地面观测网络的大气污染物浓度地面观测代表性误差估计 [J]. 大气科学, 43 (2): 277–284. Li Fei, Tang Xiao, Wang Zifa, et al. 2019. Estimation of representative errors of surface observations of air pollutant concentrations based on high-density observation network over Beijing–Tianjin–Hebei region [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 43 (2): 277–284, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1804.17267.

基于京津冀高密度地面观测网络的大气污染物浓度 地面观测代表性误差估计

李飞^{1,4} 唐晓¹ 王自发^{1,4} 朱莉莉³ 王晓彦³ 吴煌坚^{1,4}
卢苗苗^{1,4} 李健军³ 朱江^{2,4}

1 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, 北京 100029

2 中国科学院大气物理研究所国际气候与环境科学中心, 北京 100029

3 中国环境监测总站, 北京 100012

4 中国科学院大学, 北京 100049

摘 要 地面观测提供空间点的浓度信息, 三维化学模式提供网格面的浓度信息, 两者在进行对比验证或同化融合时会因为空间尺度不匹配引入误差, 即观测代表性误差。本研究将大气污染地面国控监测站与区县监测站结合起来, 获得了京津冀地区高密度地面观测数据, 利用该数据首次对京津冀地区 6 项常规大气污染物 (PM_{2.5}、PM₁₀、SO₂、NO₂、CO 和 O₃) 的地面观测代表性误差进行了客观估计, 并与 Elbern et al. (2007) 方法估计的代表性误差进行了对比。结果发现: 两种方法对京津冀地区 NO₂ 地面观测代表性误差估计非常接近, 但 Elbern et al. (2007) 方法显著低估了 SO₂、CO 和 O₃ 地面观测的代表性误差。在此基础上, 我们对 Elbern et al. (2007) 方法及其误差特征参数进行了本地化修正, 并增加了 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的代表性误差特征参数, 建立了京津冀大气污染地面观测代表性误差的客观估计方法。

关键词 地面观测 代表性误差 资料同化 大气污染物

文章编号 1006-9895(2019)02-0277-08

中图分类号 P402

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1804.17267

Estimation of Representative Errors of Surface Observations of Air Pollutant Concentrations Based on High-Density Observation Network over Beijing–Tianjin–Hebei Region

LI Fei^{1,4}, TANG Xiao¹, WANG Zifa^{1,4}, ZHU Lili³, WANG Xiaoyan³, WU Huangjian^{1,4},
LU Miaomiao^{1,4}, LI Jianjun³, and ZHU Jiang^{2,4}

1 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

2 International Center for Climate and Environment Sciences, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

3 China National Environmental Monitoring Center, Beijing 100012

收稿日期 2017-11-06; **网络预出版日期** 2018-05-07

作者简介 李飞, 男, 1991 年出生, 硕士研究生, 主要从事空气质量数值模拟研究。E-mail: benjamin1224@126.com

通讯作者 唐晓, tangxiao@mail.iap.ac.cn

资助项目 国家自然科学基金项目 41575128、91644216, 中国科学院信息化专项课题 XXH13506-302

Funded by National Natural Science Foundation of China (Grants 41575128, 91644216), the Chinese Academy of Science Information Technology Program (Grant XXH13506-302)

4 University of Chinese Academy of Science, Beijing 100049

Abstract Ground stations provide raw monitored point data of air pollutant concentration, and three-dimensional chemical models can simulate the concentration distribution on grids. When ground stations observations are used for verification of model performance or assimilated into model simulations, representative errors may occur due to the mismatch between the spatial scales of discrete monitored point data and model simulations. This study produces a high-resolution observational dataset for Beijing–Tianjin–Hebei region by combining the information obtained from China National Monitoring Center and from local monitoring centers. The combined dataset allows the computation of representative errors of ground observations of six typical air pollutants ($\text{PM}_{2.5}$, PM_{10} , SO_2 , NO_2 , CO and O_3) in Beijing–Tianjin–Hebei region. Results from the aforementioned method are compared with those obtained from the theory of Elbern et al. (2007). It is found that the results from the two methods agree well in terms of the representative errors of ground observations of NO_2 . However, representative errors of SO_2 , CO and O_3 are significantly underestimated by using the Elbern’s approach. Therefore, characteristic parameters associated with the four air pollutants used in the Elbern’s method are modified and new characteristic parameters relevant to $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} are introduced in the present study, which makes the method to be more applicable and can yield more accurate results when processing ground observations in Beijing–Tianjin–Hebei region.

Keywords Surface observation, Representative error, Data assimilation, Air pollutants

1 引言

污染物地面观测数据能提供连续、具备较高精度的大气环境变化信息,在评估灰霾污染变化特征和形成机理上发挥了关键作用(王喜全等, 2011; 王跃思等, 2013; 张小曳等, 2013)。地面观测数据能被用来与模式数据进行对比验证,从而评估和优化模式性能(王自发等, 2014; Zheng et al., 2015)。此外,地面观测还能用来与模式数据进行同化融合,构建再分析数据、优化模式初始浓度或排放源(白晓平等, 2008; 黄思等, 2016; Jiang et al., 2013; Tang et al., 2013)。在对比验证或同化融合过程中,一个关键问题是化学传输模式提供网格化面上的浓度信息,而地面观测一般提供空间点的浓度信息,两者在空间尺度上的不匹配会引入误差。在同化领域,将这种误差称为观测代表性误差,是总观测误差(包含仪器误差和观测代表性误差)的重要组成部分。其估计精确程度会直接影响总观测误差估计的精度,进而影响同化结果的精度。

在大气和海洋领域的专家学者专门研究过观测误差估计和背景场误差估计,在理论方法层面上 Dee et al. (1999) 用极大似然估计方法去估计预测误差协方差和观测误差协方差参数, Desroziers and Lönnberg (2005) 采用基于观测空间用统计的方法修正观测误差背景场误差和分析误差等, Hollingsworth and Lönnberg (1986) 基于 Daley (1985) 提出的各向同性和空间不相关的假设对观测误差协方差矩阵

进行优化,其中观测误差包括仪器误差和代表性误差两方面,后来的研究学者在对大气和海洋数据进行资料同化的时候多数基于以上三人的研究工作,如 Carton and Giese (2008) 对海洋资料同化中就采用了观测误差不相关的假设,但是只是人为设定了一个 10% 的数值。在大气和海洋领域对于资料同化中观测误差的估计研究中,人们更多的是关注在风场、辐射等气象要素的观测误差估计,而且也并没有更多的关注到代表性误差的估计中。

在大气污染同化上, Yumimoto et al. (2008) 在同化雷达观测数据改进沙尘暴模拟时,将观测总误差设定为观测值的 10%,没有对观测代表性误差进行单独估计。 von Loon et al. (2000) 和 Tang et al. (2011) 在同化地面臭氧观测改进臭氧预报时,采用了类似的方式,也将总观测误差设定为观测值的 10%。 Elbern et al. (2007) 通过考虑观测站点的类别、观测物种和模式网格分辨率,建立了欧洲 5 个污染物地面观测的代表性误差估计方法。该方法应用于欧洲中心支持的 GEMS Project (Global Earth-system Modelling using Satellite and in-situ data Project, 利用卫星和地面数据进行全球建模计划) 中 (Hollingsworth et al. 2008), 并为后续很多研究所采用。 Pagowski et al. (2010) 对臭氧 (O_3) 和细颗粒物 ($\text{PM}_{2.5}$) 观测数据进行同化时,根据多次测试结果对该误差特征参数进行了调整。 Schwartz et al. (2012) 对地面颗粒物观测数据进行同化模拟时,也对该估计方法加入了经验修正参数。虽然 Elbern

et al. (2007) 建立了观测代表性误差的客观估计方法, 但其误差特征参数是基于欧洲地区观测信息估计得到的, 后续研究对其进行了调整和修正, 但还是基于个人经验的修正。

中国已建成覆盖全国 369 个城市的大气环境监测网络, 包含 1436 个观测站点, 每个站点负责提供近地面 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 SO_2 、 NO_2 、 O_3 和 CO 的小时监测。中国地面观测站点的设置和污染物浓度水平与欧洲差异较大, Elbern et al. (2007) 方法及其特征参数是否适用于中国地区还不清楚。因此, 本研究将利用京津冀地区高密度地面观测数据对 6 项常规大气污染物 ($\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 SO_2 、 NO_2 、 CO 和 O_3) 地面观测的代表性误差进行客观估计, 并对 Elbern et al. (2007) 方法及其误差特征参数进行本

地化, 建立适用于京津冀地区地面观测的代表性误差客观估计方法, 为大气污染模式验证和资料同化提供研究基础。

2 观测数据介绍

为了获得高密度观测数据来有效估计地面站点观测的代表性误差, 本文同时融合采用了两类观测数据。一类是中国环境监测总站建立的国家环境空气质量监测网在京津冀城市国控点观测数据 (79 个站点), 另外一类是京津冀各城市环保局建立的城市区县站观测数据 (167 个站点), 都包含各站点 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 SO_2 、 NO_2 、 CO 和 O_3 六种常规污染物的小时监测数据, 分析数据时段为 2016 年 4 月 1 日至 5 月 30 日。为了评估和验证两类数据是否具

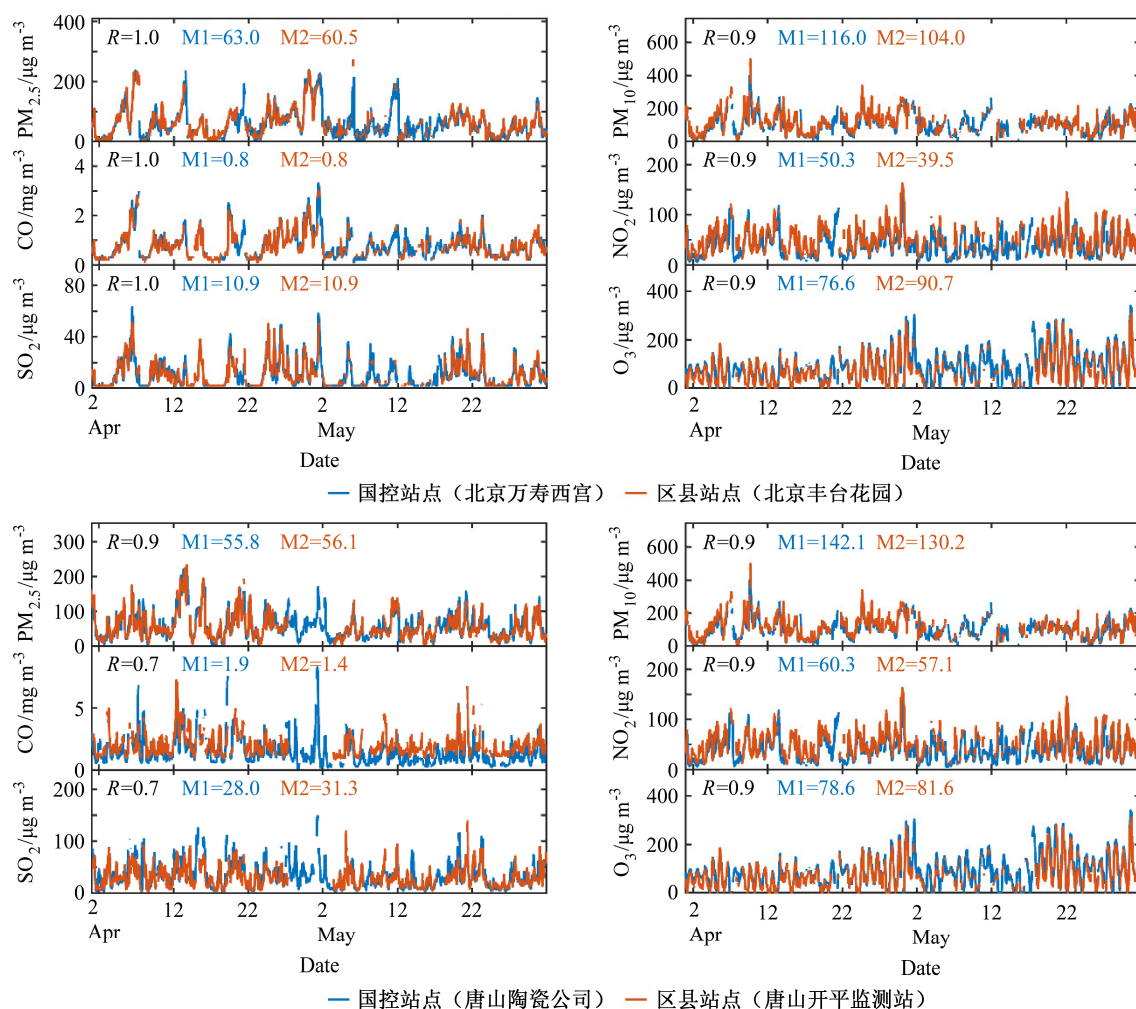


图1 2016年4月1日至5月31日京津冀地区两组国控站和区县站监测的6项污染物浓度序列的对比。蓝线为国控站, 红线为区县站, M1为国控站点观测浓度均值, M2为区县站点观测浓度均值, R 为皮尔逊积矩相关系数

Fig. 1 Comparisons of hourly observations of six pollutants concentrations by the National Monitoring Center (blue line) and the local monitoring centers (red lines) over Beijing-Tianjin-Hebei Region during April 1-May 31, 2016. M1 is the mean value of the observed concentration at the national control station, M2 is the mean value of the observed concentration at the local monitoring center stations, and R is the correlation coefficient of the Pearson product moment

备一致性, 我们首先对两类数据进行了比对分析, 选取距离最小的两对国控站点和区县站点, 对其观测的六项污染物观测浓度值进行比对。图 1 给出了两对站点六种常规污染物监测数据的时间序列对比。可以看出, 国控点和区县站观测数据总体上具有很好一致性, 其监测数据的相关性都在 0.7 以上, 平均值差异较小, 这为两类数据融合应用评估站点代表性误差提供了良好基础。

3 观测代表性误差的估计方法

观测代表性误差是由于模式数据的分辨率尺度(网格)与实际观测(点)尺度不匹配造成的, 一般来说地面观测数据的代表范围小于模式数据的分辨率尺度, 通过资料同化方法将观测点数据与模式网格数据融合时, 会因为两种尺度不匹配而引入误差。针对这一问题, 我们建立了一种基于高密度观测网络数据来直接估计地面站点代表性误差的方法, 并与 Elbern et al. (2007) 方法估计的代表性误差进行对比。该方法主要思路是根据一定空间范围(如模式网格)内多个观测站点监测的污染物

浓度值差异来估计代表性误差, 单位区域或网格内多个站点观测值离散度越大, 其站点的代表性误差也会越大。具体计算步骤如下:

(1) 京津冀区域的空间网格化划分

目前观测站点的密度虽然有了大幅度的调高, 但是依旧没法满足较高分辨率的要求。因此, 为了评估单位网格内污染物观测值差异, 我们将京津冀地区按 30 公里水平分辨率进行空间网格化划分。图 2 给出了划分后的网格以及京津冀地区国控站和区县站的位置。可以看出, 国控站点数相对较少, 主要分布在城市的中心区域, 而区县站点较多, 空间覆盖面更广, 两类数据可以相互补充, 构成一个高密度、空间覆盖度较高的地面观测网络。需要指出的是, 这些站点基本都是城区站点, 背景站点较少, 在京津冀地区只有 5 个, 因此, 本文在分析时首先将背景站点剔除, 只对城区站点这一类站点代表性误差进行估计。

(2) 观测代表性误差的估计

根据图 2 中观测站点落在不同网格内的情况, 查找网格内包含 2 个以上观测站点的网格, 计算这

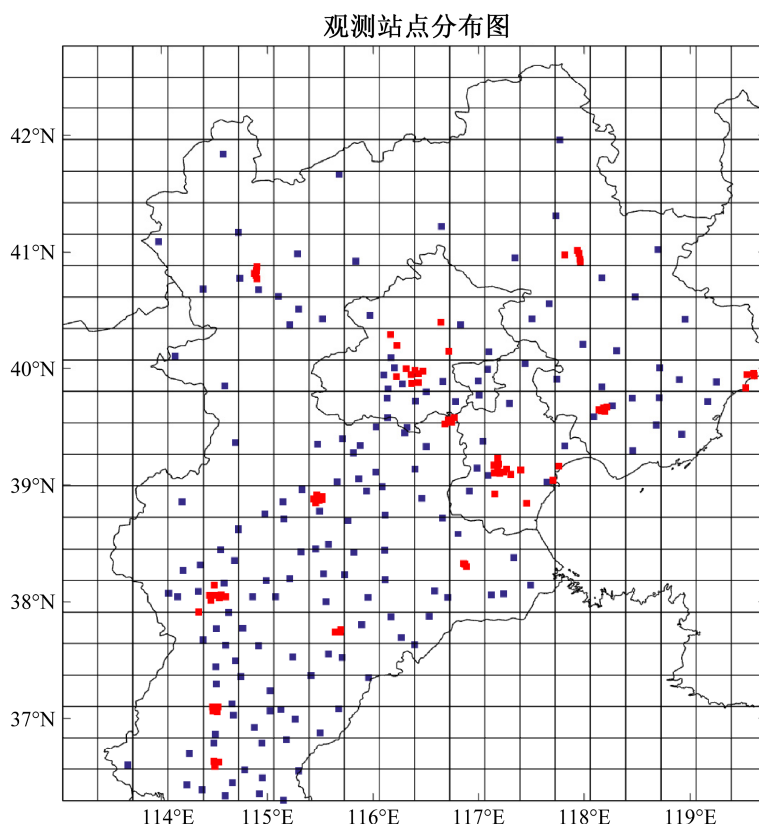


图 2 京津冀地区的空间网格化以及国控站和区县站的空间分布。红色方块代表国控站的位置, 蓝色方块代表区县站的位置

Fig. 2 Gridded geographic location of Beijing-Tianjin-Hebei region and the distribution of monitoring stations of both China National Monitoring Center (red squares) and local monitoring centers (black squares)

些网格内不同站点污染物小时观测浓度的离散度：

$$S_{it} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{k=1}^N (A_{itk} - \mu_{it})^2}, \quad (1)$$

其中, N 为网格内观测站点的个数, A 为网格内某一个观测站点的污染物浓度监测值, i 代表区域内的网格标号, t 代表时刻, k 代表其在这个网格内站点标号, μ 为该网格内所有站点污染物浓度监测值的平均。将一段时间内统计得到的 S_{it} 在时空上求平均, 即为基于观测估计得到的京津冀地区地面观测代表性误差：

$$\bar{S} = \frac{1}{MT} \sum_{i=1}^M \sum_{t=1}^T S_{it}, \quad (2)$$

其中, T 为时段内观测时次, M 为有效的多站点网格数。

4 主要结果

4.1 网格内多站点观测的差异性分析

为了了解网格内多观测站点污染物观测值的差异程度, 图 3 给出了京津冀地区不同网格内多观

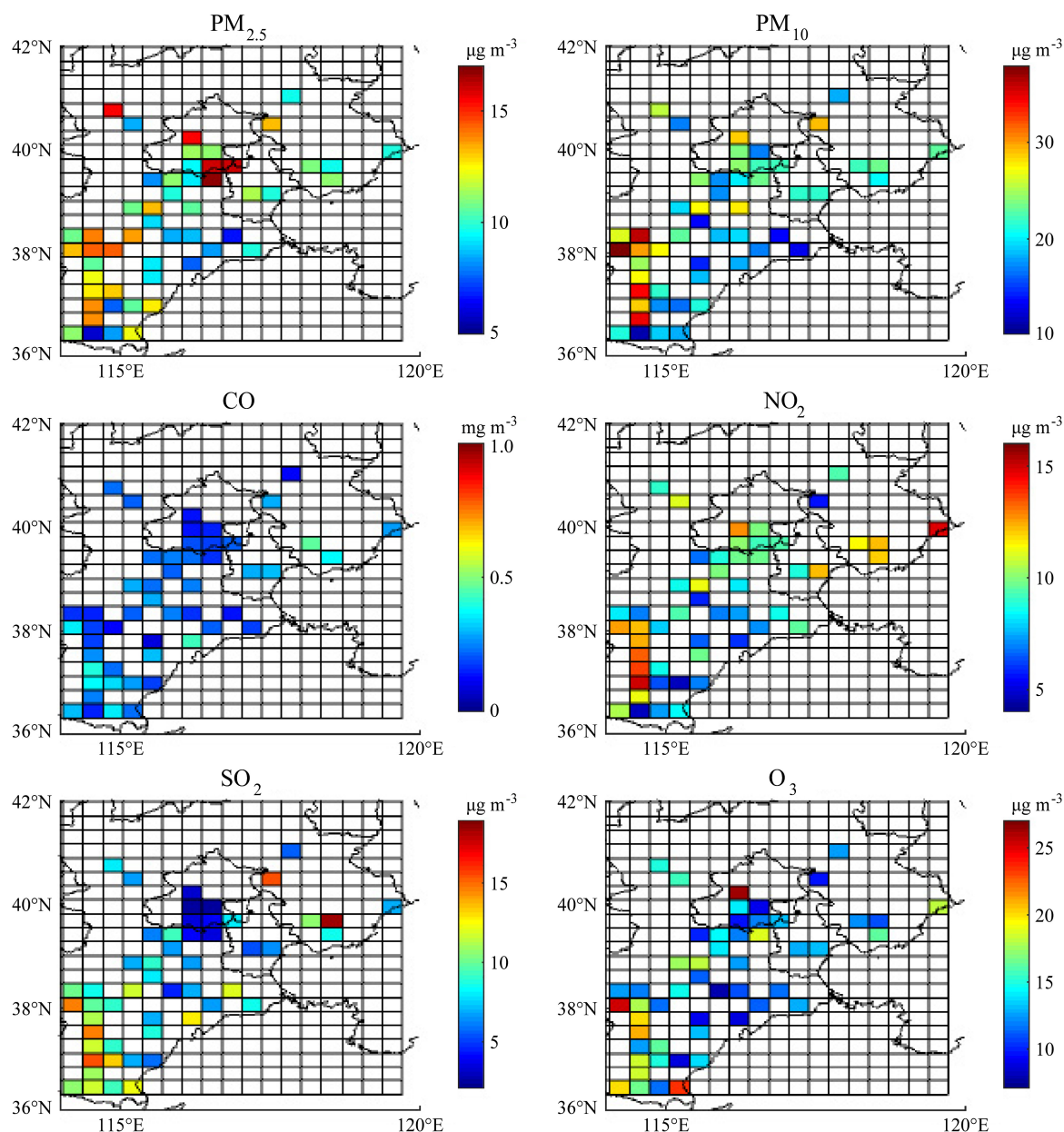


图 3 京津冀地区 30 公里分辨率网格内 6 种污染物浓度 (CO、NO₂、SO₂、O₃、PM_{2.5} 和 PM₁₀) 多站点观测值的离散度 (CO 单位: mg m⁻³, 其它单位: μg m⁻³) 空间分布

Fig. 3 Spatial distributions of multi-station observations of six pollutants concentrations (CO, NO₂, SO₂, O₃, PM_{2.5} and PM₁₀) (units are mg m⁻³ for CO and μg m⁻³ for other pollutants) within grids at 30 km resolution over Beijing-Tianjin-Hebei region

测点监测的 CO、NO₂、SO₂、O₃、PM_{2.5} 和 PM₁₀ 浓度值的离散度（标准差）。从图中可以看出，对所有污染物来说，同一个网格内不同点位污染物观测值都可能具有较大差异。对 CO 来说，不同网格的平均离散度为 0.24 mg m⁻³，最大离散度超过 0.45 mg m⁻³；NO₂ 的平均离散度为 9.4 μg m⁻³，最大离散度超过 15 μg m⁻³；SO₂ 的平均离散度为 8.6 μg m⁻³，最大离散度超过 16 μg m⁻³；O₃ 的平均离散度为 14.3 μg m⁻³，最大离散度超过 26.0 μg m⁻³；PM₁₀ 的平均离散度为 22.2 μg m⁻³，最大离散度超过 38.0 μg m⁻³；PM_{2.5} 的平均离散度为 11.1 μg m⁻³，最大离散度超过 17.0 μg m⁻³。

从上面结果可以看出，在 30 公里分辨率网格内，不同站点监测的污染物浓度值可以有很大差异。这说明当利用单个观测站点与模式网格化数据进行对比验证或同化融合时，观测点与模式网格面不匹配引入的代表性误差是一个重要误差因素，在模式验证和数据同化应用中必须对其考虑，这个误差有可能超过模式自身产生的误差。

4.2 基于高密度观测网的观测代表性误差估计

根据第 4.1 节计算得到的不同网格内的污染物观测离散度，采用公式（2）计算统计平均的观测代表性误差，作为京津冀地区各污染物代表性误差的估计值。表 1 给出了基于高密度观测网络计算得到的京津冀地区 CO、NO₂、SO₂、O₃、PM_{2.5} 和 PM₁₀ 城区站点观测的代表性误差估计值。其中 CO 观测的代表性误差为 0.24 mg m⁻³，NO₂ 观测的代表性误差为 9.4 μg m⁻³，SO₂ 观测的代表性误差为 8.6 μg m⁻³，O₃ 观测的代表性误差为 14.3 μg m⁻³，PM_{2.5} 观测的代表性误差为 11.1 μg m⁻³，PM₁₀ 观测的代表性误差为 22.2 μg m⁻³。

理论上，通过上述方法计算代表性误差需要对网格内采集足够多的空间点位，但实际在同一网格

内只有有限的观测点位。为了了解网格内观测点位采样数对代表性误差估算的影响，我们根据单个网格内观测点位数，对京津冀地区的网格进行了分类。表 1 也给出了网格内站点数分别为 2~10 个情况下计算得到的观测代表性误差。可以看出，网格内观测点位数对代表性误差估计确实有一定影响，是这种方法估算的一个关键不确定性来源。根据不同分类网格下计算的观测代表性误差的差异，我们也给出了这种方法代表性误差估计的不确定性（见表 1）。

4.3 代表性误差客观估计方法的参数本地化

虽然表 1 给出了京津冀地区 6 项污染物地面观测的代表性误差估计值与不确定性，但这是在目前设定的 30 公里分辨率网格下估计值，无法直接应用于其它分辨率的网格。因此，为了建立更具普适性的代表性误差估计方法，我们采用了 Elbern et al.（2007）建立的三因子代表性误差估计方法，即考虑观测站点的类别、观测物种和模式网格分辨率，其具体计算公式如下：

$$r_{repr} = \sqrt{\frac{\Delta x}{L_{repr}}} \cdot \epsilon^{abs}, \tag{3}$$

r_{repr} 为观测数据代表性误差， Δx 为模式分辨率， L_{repr} 为观测站点空间代表性尺度， ϵ^{abs} 为引入的参数，此参数与气体的寿命有关。

根据站点所处环境分为背景站点、郊区站点、城郊站点、城区站点、交通站点以及未知站点，其空间代表性尺度分别设定为 20、10、4、2、1 和 3 公里。在本研究中，京津冀地区国控站和区县站几乎都是城郊站点和城区站点，但目前很难对二者进行严格区分，因此在计算代表性误差时将其归为一类，站点空间代表性尺度取二者平均值，即 3 公里。Elbern et al.（2007）根据欧洲地区观测给出了 SO₂、

表 1 网格内不同观测点数下污染物浓度的观测代表性误差估计及其平均值（CO 单位为 mg m⁻³，其它为 μg m⁻³）与不确定性
Table 1 Estimation of the representative errors in grids with different numbers of observation stations, their mean values (units are mg m⁻³ for CO and μg m⁻³ for other pollutants), and uncertainties of the estimates

	不同类别网格下污染物浓度的代表性误差估计值									不确定性
	2 个站点的 网格	3 个站点的 网格	4 个站点的 网格	5 个站点的 网格	6 个站点的 网格	7 个站点的 网格	8 个站点的 网格	10 个站点的 网格	所有网格 平均值	
PM _{2.5}	10.5	10.8	12.9	11.5	13.8	14.3	12.2	11.5	11.1	11%
PM ₁₀	21.6	19.2	22.5	23.2	28.6	26.4	25.3	21.4	22.2	11%
CO	0.24	0.24	0.24	0.17	0.36	0.23	0.16	0.29	0.24	22%
NO ₂	8.5	9.8	12.1	10.2	15.0	10.1	12.1	8.8	9.4	20%
SO ₂	8.3	9.6	7.5	6.3	15.5	8.5	7.6	5.2	8.6	36%
O ₃	13.5	14.7	15.7	13.2	18.4	16.4	14.6	12.8	14.3	12%

NO₂、NO、O₃ 和 CO 的体积浓度代表性误差特征参数，分别为 0.4, 1.4, 3.0, 1.2 和 15.0 ppb [文中 1 ppb=10⁻⁹，后期计算中利用《大气环境化学》(唐孝炎等, 2006) 中附录 2 微量气体 mg m⁻³ 和 ppm 表示的相互换算因子，将 ppb 单位换算成目前通用的 μg m⁻³]。本研究将结合第 4.3 节得到的京津冀地区各污染物代表性误差估计值，对这个特征参数进行本地化修正，从而使该公式更适用于我国地面观测的代表性误差估计和计算。

表 2 给出了第 4.3 节估计的各污染物代表性误差值以及采用 Elbern et al. (2007) 方法及其特征参数计算得到的京津冀地区 30 公里分辨率网格下的 SO₂、NO₂、O₃ 和 CO 观测代表性误差值。可以看出，两者对 NO₂ 观测代表性误差估计非常接近，差异只有 5.6%。但 Elbern et al. (2007) 方法对 SO₂、O₃ 和 CO 观测代表性误差估计都显著低于本文基于高密度观测网数据得到的估计值，其中对 CO 估计差异最大，达到 70.8%，SO₂ 差异次之，为 52.8%，O₃ 差异为 36.2%。这可能与京津冀地区污染物排放强度显著高于欧洲地区，污染物浓度空间差异大有关，也可能与两个地区间气象、地理条件以及站点设置方式有关。这种大的差异也说明直接采用 Elbern et al. (2007) 方法及其参数来估计京津冀地区地面观测代表性误差会存在很大不确定性，对其进行本地化修正非常必要。

表 2 基于高密度观测数据对 30 公里分辨率下的污染物浓度代表性误差估计与 Elbern et al. (2007) 方法估计结果的对比，以及对 Elbern et al. (2007) 方法误差特征参数的本地化修正值 (CO 单位为 mg m⁻³，其它为 μg m⁻³)

Table 2 Estimates of representative errors of surface observations of six pollutants concentrations (PM_{2.5}, PM₁₀, SO₂, NO₂, CO and O₃) in grids at 30km resolution using the high-density observation network data and the method of Elbern et al. (2007). The modified error characteristic parameters for the method of Elbern et al. (2007) are also shown (units are mg m⁻³ for CO and μg m⁻³ for other pollutants)

	污染物浓度误差估计值及订正					
	CO	NO ₂	SO ₂	O ₃	PM _{2.5}	PM ₁₀
Elbern et al. (2007) 方法估计值	0.07	10.3	4.1	9.1	无	无
本研究估计值	0.24	9.4	8.6	14.3	11.1	22.2
订正的误差特征参数 e_L^{abs}	0.08	3.1	2.7	4.5	3.5	7.0

将公式 (3) 中 r_{repr} 用京津冀地区高密度观测网估计的各污染物代表性误差代替，即可反向计

算得到各污染物代表性误差估计的本地化特征参数：

$$e_L^{\text{abs}} = r_{\text{repr}} / \sqrt{\frac{\Delta x}{L_{\text{repr}}}}, \quad (4)$$

其中， Δx 为 30 公里， L_{repr} 为 3 公里。表 2 给出了京津冀地区各污染物代表性误差估计的本地化特征参数。相对于 Elbern et al. (2007) 研究，这个表也提供了 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 观测代表性误差的特征参数。

5 结论与讨论

本研究结合京津冀地区大气污染国控监测站与区县监测站的地面观测数据，首次对京津冀地区 PM_{2.5}、PM₁₀、SO₂、NO₂、CO 和 O₃ 的地面观测代表性误差进行了客观估计，发现直接采用 Elbern et al. (2007) 方法及其参数会显著低估京津冀地区 SO₂、CO 和 O₃ 地面观测的代表性误差。在此基础上，对 Elbern et al. (2007) 方法的误差特征参数进行了本地化修正，建立了京津冀地区多污染物地面观测代表性误差的客观估计方法，可为大气污染模式验证和资料同化提供研究基础。

本研究结果表明，在较粗网格模式分辨率下（如 30 公里），网格内不同站点监测的污染物浓度值差异可能很大，当利用单个观测站点与模式网格化数据进行对比验证或同化融合时，观测点与模式网格面不匹配引入的代表性误差是一个重要误差因素，在模式验证和数据同化应用中必须对其考虑，这个误差有可能超过模式自身产生的误差。

此外，本研究仍存在一些局限性。首先，虽然将国控监测站和区县监测站结合起来获得了空间覆盖度较高的观测网络来估计代表性误差，但单个网格内的监测点位数还是有限（不超过 10 个），而敏感性试验结果表明观测点位数是观测代表性误差估计的一个重要不确定性因子。此外，实际观测代表性误差可能与污染物浓度和大气扩散有关，如大气扩散条件好时，污染物混合更加均匀，观测站点代表性误差可能会小于大气扩散条件差时。但目前基于 Elbern et al. (2007) 的估计方法只考虑模式网格分辨率、观测站点类别和物种的影响，没有考虑污染物浓度和大气扩散条件的影响。最后，本研究中只研究了两个月的数据，考虑到京津冀地区污染物浓度秋冬高，春夏低（刘海猛等，2018），本研究难免有不足之处。

参考文献 (References)

- 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. 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.
- Carton J A, Giese B S. 2008. A reanalysis of ocean climate using Simple Ocean Data Assimilation (SODA) [J]. Mon. Wea. Rev., 136 (8): 2999–3017, doi:10.1175/2007MWR1978.1.
- Daley R. 1985. The analysis of synoptic scale divergence by a statistical interpolation procedure [J]. Mon. Wea. Rev., 113 (6): 1066–1079, doi:10.1175/1520-0493(1985)113<1066:TAOSSD>2.0.CO;2.
- Dee D P, Da Silva A M. 1999. Maximum-likelihood estimation of forecast and observation error covariance parameters. Part I: Methodology [J]. Mon. Wea. Rev., 127 (8): 1822–1834, doi:10.1175/1520-0493(1999)127<1822:MLEOFA>2.0.CO;2.
- Desroziers G, Berre L, Chapnik B, et al. 2005. Diagnosis of observation, background and analysis-error statistics in observation space [J]. Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 131 (613): 3385–3396, doi:10.1256/qj.05.108.
- 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 (1): 3749–3769.
- Hollingsworth A, Lönnberg P. 1986. The statistical structure of short-range forecast errors as determined from radiosonde data. Part I. The wind-field [J]. Tellus A: Dynamic Meteorology and Oceanography, 38 (2): 111–136, doi:10.3402/tellusa.v38i2.11707.
- Hollingsworth A, Engelen R J, Textor C, et al. 2008. Toward a monitoring and forecasting system for atmospheric composition: The GEMS project [J]. Bull. Amer. Meteor. Soc., 89 (8): 1147–1164, doi:10.1175/2008BAMS2355.1.
- 黄思, 唐晓, 王自发, 等. 2016. 基于观测、模拟和同化数据的 PM_{2.5} 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_{2.5} 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.
- Jiang Z Q, Liu Z Q, Wang T J, et al. 2013. Probing into the impact of 3DVAR assimilation of surface PM₁₀ observations over China using process analysis [J]. J. Geophys. Res., 118 (12): 6738–6749, doi:10.1002/jgrd.50495.
- 刘海猛, 方创琳, 黄解军, 等. 2018. 京津冀城市群大气污染的时空特征与影响因素解析 [J]. 地理学报, 73 (1): 177–191. Liu Haimeng, Fang Chuanglin, Huang Jiejun, et al. 2018. The spatial-temporal characteristics and influencing factors of air pollution in Beijing–Tianjin–Hebei urban agglomeration [J]. Acta Geographica Sinica (in Chinese), 73 (1): 177–191, doi:10.11821/dlxb201801015.
- Pagowski M, Grell G A, McKeen S A, et al. 2010. Three-dimensional variational data assimilation of ozone and fine particulate matter observations: Some results using the Weather Research and Forecasting—Chemistry model and Grid-Point Statistical Interpolation [J]. Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 136 (653): 2013–2024, doi:10.1002/qj.700.
- Schwartz C S, Liu Z Q, Lin H C, et al. 2012. Simultaneous three-dimensional variational assimilation of surface fine particulate matter and MODIS aerosol optical depth [J]. J. Geophys. Res., 117 (D13): 13202, doi:10.1029/2011JD017383.
- 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 Discussions, 11 (3): 7811–7849, 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.
- 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 2006. 大气环境化学 (第 2 版) [M]. 北京: 高等教育出版社. Tang Xiaoyan, Zhang Yuanhang, Shao Min. 2006. Atmospheric Environmental Chemistry (in Chinese) [M]. Beijing: Higher Education Press.
- 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.
- 王喜全, 杨婷, 王自发. 2011. 灰霾污染的跨控制区影响——一次京津冀与东北地区灰霾污染个案分析 [J]. 气候与环境研究, 16 (6): 690–696. Wang Xiquan, Yang Ting, Wang Zifa. 2011. Impact of dust-haze episode from one air pollution control region to the other—One Case Study [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 16 (6): 690–696.
- 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, (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), (3): 353–363, doi:10.3969/j.issn.1000-3045.2013.03.009.
- 王自发, 李杰, 王哲, 等. 2014. 2013 年 1 月我国中东部强霾污染的数值模拟和防控对策 [J]. 中国科学: 地球科学, 44 (1): 3–14. Wang Zifa, Li Jie, Wang Zhe, et al. 2014. Modeling study of regional severe hazes over mid-eastern China in January 2013 and its implications on pollution prevention and control [J]. Science China Earth Sciences, 57 (1): 3–13, doi: 10.1007/s11430-013-4793-0.
- 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.
- 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.
- 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, 14 (11): 16731–16776, doi:10.5194/acpd-14-16731-2014.