

大气化学资料同化研究进展与展望

胡译文, 臧增亮*, 戴维, 李毅, 尤伟, 刘浪, 刘宁, 龙群

(国防科技大学气象海洋学院, 湖南长沙 410073)

摘要:资料同化通过融合大气化学模式和多源观测数据,减小模式输入数据的不确定性,是提高大气化学模式预报准确率的重要技术方法。针对大气化学资料同化技术,系统梳理了污染气体和气溶胶初始场同化从单一状态变量向多元状态变量的转变过程,同时总结了采用集合方法与四维变分方法的污染物排放源同化反演,在排放源精度提升、时空分辨率优化及对污染物浓度预报改进方面的重要进展。随着观测数据的爆炸式增长,如何将高分辨率地理遥感数据充分用于大气化学资料同化是当前领域面临的核心挑战,而资料同化与人工智能算法的深度融合,是突破这一技术瓶颈、显著提升大气成分分析与预报精准度的关键研究方向。

关键词:资料同化;大气化学模式;初始场同化;排放源同化

中图分类号:X513 **文献标志码:**A **文章编号:**1001-2486(2026)02-214-14

Advances and prospects of atmospheric chemistry data assimilation

HU Yiwen, ZANG Zengliang*, DAI Wei, LI Yi, YOU Wei, LIU Lang, LIU Ning, LONG Qun

(College of Meteorology and Oceanography, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

Abstract: DA (data assimilation) is a crucial technical method for improving the accuracy of atmospheric chemical forecasts by integrating the results of atmospheric chemistry models with multi-source observational data, reducing uncertainties in model input data. Centering on DA techniques for atmospheric chemistry models, the transformation process of initial field assimilation for pollutant gases and aerosols from single state variables to multi-state variables was systematically reviewed. Meanwhile, the important progress of pollutant emission source assimilation inversion using ensemble methods and four-dimensional variational methods was focused on the improvement of emission source accuracy, optimization of spatiotemporal resolution, and enhancement of pollutant concentration prediction performance. With the explosive growth of observational data, a core challenge in the current field lies in fully leveraging high-resolution geospatial and remote sensing data for atmospheric chemical DA. The deep integration of DA with artificial intelligence algorithms represents a key research direction to break through this bottleneck and significantly enhance the accuracy of atmospheric composition analysis and forecasting.

Keywords: data assimilation; atmospheric chemistry model; initial condition assimilation; emission source assimilation

大气化学模式可以对大气污染物进行精细化模拟和预报,为气象和环境部门预警决策提供科学依据,在揭示大气污染机制、支撑污染溯源和大气防控等方面具有重要价值^[1-3]。同时,大气化学模式预报的气溶胶、云、降水、辐射、能见度等,能够为导弹制导、航空飞行、浮空器驻空等军事活动的大气环境保障提供重要支撑。然而,由于大气化学模式排放源、初始条件、边界条件、物理化

学过程等方面的不确定性,当前模式模拟预报的结果仍然存在较大误差^[4-5]。因此,减小大气化学模式预报不确定性对大气污染防控、军事活动保障具有非常重要的现实意义和科学价值。

资料同化(data assimilation, DA)通过构建代价函数并求解极小值得到最优分析场,广泛应用于数值模式的初始场同化研究,是提高数值预报的有效方法,在天气预报领域已有了广泛应

收稿日期:2025-11-05

基金项目:国家自然科学基金项目资助项目(42430612,42505155);湖南省重点研发计划资助项目(2024AQ2004);湖南省自然科学基金青年科学基金资助项目(2025JJ60259);国防科技大学自主创新科学基金资助项目(22-ZZCX-081)

第一作者:胡译文(1995—),女,辽宁铁岭人,讲师,博士,E-mail:hywdqwl@163.com

*通信作者:臧增亮(1977—),男,江苏徐州人,教授,博士,博士生导师,E-mail:zzlqxy@163.com

引用格式:胡译文,臧增亮,戴维,等.大气化学资料同化研究进展与展望[J].国防科技大学学报,2026,48(2):214-227.

Citation:HU Y W, ZANG Z L, DAI W, et al. Advances and prospects of atmospheric chemistry data assimilation[J]. Journal of National University of Defense Technology, 2026, 48(2): 214-227.

用^[6-7]。美国国家环境预报中心(National Centers for Environmental Prediction, NCEP)、欧洲中期天气预报中心(European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF)等机构将资料同化技术用于提高业务化的天气预报水平,对于提升战场环境预报精度也有着重要作用^[8-10]。随着大气化学模式的进步和观测数据的增加,大气化学资料同化也迅速发展^[11-12]。类似于气象模式资料同化,大气化学模式资料同化通过融合模式背景场与污染物浓度观测数据,能够有效提高污染物浓度初始场的准确度,进而有效提高污染物浓度预报水平。美国、欧洲及日本等地的研究机构已经构建了大气化学资料同化系统,并持续更新大气化学再分析数据集,如美国宇航局发布的现代研究与应用回溯分析(第2版)(modern-era retrospective analysis for research and applications, version 2, MERRA-2)、欧洲中期天气预报中心发布的哥白尼大气监测局再分析(Copernicus atmosphere monitoring service reanalysis, CAMS Reanalysis)、日本气象厅构建的日本气溶胶再分析(Japanese reanalysis for aerosols, JRAero)等,旨在提升空气质量预报的准确性^[13-18]。

大气化学模式不同于普通的气象模式,除了输入初始场,还需要输入排放清单,排放清单同样存在很大的不确定性。资料同化可以采用多源污染物浓度观测数据对传统方法编制的排放清单进行同化优化,其结果的准确性更高,且更新速度快,可以有效提高大气化学模式的预报效果^[19]。集合卡尔曼滤波(ensemble Kalman filter, EnKF)和变分资料同化(variational data assimilation, Var)方法是最常用的大气排放源同化方法,众多学者基于这两种方法开展了排放源同化系统研究,并通过模式模拟预报等方法,检验了大气排放源同化能提高排放源准确性以及空气质量预报效果^[20-24]。

鉴于资料同化在大气化学模式研究中日趋重要,针对大气化学资料同化方向的研究进展,现简要介绍常用的大气化学资料同化算法,综述大气化学资料同化在提高模式初始场和排放源精度方面的研究进展,最后对大气化学资料同化的现状和发展趋势进行总结展望。

1 大气化学资料同化算法

1.1 大气化学资料同化算法发展介绍

资料同化的发展始于20世纪50年代,早期

的主要方法包括:函数拟合、逐步订正法、最优插值(optimal interpolation, OI)法、变分法和卡尔曼滤波(Kalman filter, KF)法等。这些方法的求解公式可以归纳为:

$$x^a = x^b + W(y^o - y) \quad (1)$$

其中, x^a 表示分析场, x^b 表示背景场, y^o 表示观测资料, y 表示模式状态变量转化到可以与观测资料相比的结果, W 表示先验权重函数。不同方法的区别只是在于 W 的计算方法和该方程运行的时间间隔不同。经过多年的发展,资料同化已经从简单的函数插值发展到复杂的非常规观测资料同化方法,比如在20世纪90年代,ECMWF的业务同化系统从连续同化方案转向了OI,为其当时预报水平的提升做出了巨大贡献。随着数值模式和观测资料的飞速发展,自20世纪90年代末期,ECMWF率先将三维变分(3-dimensional variational, 3D-Var)和四维变分(4-dimensional variational, 4D-Var)引入业务系统,并用其逐渐取代了OI方法^[25];美国国家海洋和大气管理局在未来规划中明确将集合-变分同化技术作为核心战略^[26]。根据目前大气化学资料同化研究进展情况,表1总结了现有的大气化学资料同化和技术细节,对比了几种方法的原理、优点和局限性,并在之后简要介绍三维变分同化、四维变分同化、集合卡尔曼滤波法等目前主流的资料同化方法。

1.2 变分法

1.2.1 三维变分同化

3D-Var同化通过定义一个目标泛函,将同化问题转化为泛函的极值问题,并利用变分方法迭代求解目标泛函。该方法的计算量相对较小,具有同化大量不同类型观测资料的能力,是目前大气、海洋等资料同化业务系统的主流方法之一。三维变分同化的目标泛函可以写为如下形式:

$$J^{3D}(x) = \frac{1}{2}(x - x^b)^T \mathbf{B}^{-1}(x - x^b) + \frac{1}{2}(y^o - Hx)^T \mathbf{R}^{-1}(y^o - Hx) \quad (2)$$

其中: x^b 为背景场; x 为最终求解得到的最优估计场,也称为同化分析场; \mathbf{B} 为对应于 x^b 的误差协方差,称为背景误差协方差; y^o 为观测资料,可以为站点观测或遥感观测资料; \mathbf{R} 为观测误差; H 为观测算子,代表将状态变量单位转化为与观测数据单位一致的算子。3D-Var中所有的观测资料都可以用来约束背景场,所得到的分析场是全局最优解或近似最优解,可以考虑较为复杂的非线性

表 1 常用的大气化学资料同化方法

Tab. 1 Commonly used atmospheric chemical data assimilation methods

比较对象	最优插值法	变分法		集合卡尔曼滤波法
		三维变分同化	四维变分同化	
同化原理	基于统计平均的线性加权插值,通过预先给定的观测与背景场误差权重,求解分析场最优解	利用模式/观测误差协方差、观测算子等物理先验构建代价函数,极小化代价函数,获取大气状态最优估计	拓展 3D-Var 至时间维度,构建同化窗口内的代价函数,同步优化窗口内大气状态,考虑观测时序特征	依托蒙特卡罗方法生成模式集合样本,通过集合样本估计背景误差协方差,并用其顺序更新每个集成员
污染物初始场同化	快速但简化:适用于对计算时效性要求高、污染物空间分布平滑的简单分析	业务主流方法之一:能有效融合多种直接/间接观测,在单一分析时刻全局优化三维浓度场,稳定性和适用性好,物理先验约束强,分析场稳定性高	业务主流方法之一:能在同化窗口内最优地拟合观测序列,分析场在时间维度上满足模式动力/化学约束	业务主流方法之一:可量化初始场的概率性误差,对强非线性初始场偏差的自适应修正能力突出
污染物排放源同化	不适用:其线性、局部的统计框架难以描述排放源与下游浓度场之间复杂的、非局部的物理化学传输关系	间接与弱约束:结合质量平衡方程,可通过同化浓度观测间接调整源强,但静态误差协方差难以准确描述污染物排放源和浓度关系的时空变化	主流反演方法之一:通过构建伴随模式实现时间窗口内排放源的动态同化反演,提升排放源时空分配精度	主流反演方法之一:通过扰动排放源生成浓度集合,直接统计排放集合与浓度集合的相关关系,对非线性问题适应性强
优点	①算法原理简单,计算成本极低,易于业务化部署;②对观测数据的预处理要求低,适配稀疏观测场景;③计算成本极低(仅需简单线性加权运算,无复杂迭代)	①物理概念清晰,代价函数全局求解稳定性好;②可直接利用观测算子同化非模式变量;③对不同观测和模式的适用性强;④计算成本较低(单次代价函数极小化迭代)	①兼顾时间维度信息,能修正模式时序演变偏差;②同化窗口内信息利用率高,对时序密集观测适配性好	①可动态估计背景误差协方差,适配复杂变分系统;②支持不确定性量化,输出分析场概率分布;③无须线性化,适配强非线性过程
局限性	①误差协方差固定,无法适配时空变化;②线性同化;③仅为局部分析	①背景误差协方差多为静态,难以表征误差时空演变;②无法直接利用未来观测信息	①计算成本随同化窗口延长显著增加;②需开发与维护复杂的伴随模式;③仍需线性化假设;④计算成本较高(同化窗口越长成本越高)	①计算成本随集合样本量增加而剧增;②易出现集合离散度过小或过大问题,致使同化失效;③对集合样本初值敏感;④计算成本高(需运行数十至数百个集合样本,且需同步更新协方差矩阵)

性观测算子。由于 3D-Var 计算方便,计算代价小,成为很多业务资料同化的首选^[27-28]。但 3D-Var 同化的观测资料仅为单个时刻,对一段时间而言,多个不相关的瞬间最优解,并不能构成整体上与模式一致的最优解,分析结果过多依赖预先设定的背景场误差统计模型,而未能考虑实际背景误差随环境流的变化^[29-31]。

1.2.2 四维变分同化

4D-Var 是 3D-Var 在时间维上的拓展,考虑

在一个时间间隔内观测资料的分布,即考虑某一时段内观测资料的总体逼近效果。在大气科学领域,其主要是用于改进模式的初始场,通过伴随模式将一个时间窗口内的多次观测与模式融合,进而改进模式初始场。近年来也有部分学者将污染物排放源作为状态变量,可以利用时间窗口内的污染物浓度观测改进前期排放源。4D-Var 的代价函数为:

$$J^{4D}(x) = \frac{1}{2}(x - x_0^b)^T \mathbf{B}^{-1}(x - x_0^b) + \frac{1}{2} \sum_{i=0}^N (y_i^o - Hx_i)^T \mathbf{R}^{-1}(y_i^o - Hx_i) \quad (3)$$

式中:变量的下角标 i 代表不同的时刻,0 代表初始时刻; N 为时间窗口。4D-Var 利用模式动力特征来约束一段时间内的所有观测资料,其背景误差协方差矩阵是随模式动力隐式发展的。

4D-Var 是现代数值天气预报和大气再分析领域最先进的资料同化方法之一,被欧洲中期天气预报中心、英国气象局等全球多个业务预报中心采用,通过动力模型约束,在一个时间窗内实现了物理上的协调,且能充分利用异步观测信息的最优状态估计^[32-34]。然而,4D-Var 在实现的过程中需要编写伴随模式,对复杂系统来说工作量很大,且维护和修改需要大量的人力资源。因此,虽然 4D-Var 在原理上最先进,但由于实施过程中难点较多,一般研究中多采用其他方法实现间接四维变分同化来提高初始场的准确度。

1.3 集合卡尔曼滤波法

1960 年,数学家 Kalman 提出了卡尔曼滤波方法,是一种适用于线性状态下的顺序同化方法。该方法利用模式背景值和观测值的误差统计特征信息来逐步修正模式预报,其状态变量的后验估计值可以写作:

$$x^a = x^b + \mathbf{K}(y^o - Hx^b) \quad (4)$$

$$\mathbf{K} = \mathbf{B}\mathbf{H}^T(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T - \mathbf{R})^{-1} \quad (5)$$

其中, \mathbf{K} 表示卡尔曼滤波增益矩阵,根据后验估计的最小均方根误差 (root mean square, RMSE) 推导得到。KF 方法虽能在线性高斯系统中实现最优状态估计,但在强非线性、非高斯分布或系统误差复杂的情况下有很大局限性。

Evensen^[35] 在 1994 年提出以集合预报的方式来近似计算背景误差协方差,即集合卡尔曼滤波方法。集合卡尔曼滤波方法作为 KF 法的蒙特卡罗近似,通过对模式状态变量添加扰动,预报生成多个集合成员,其中所有集合成员的均值作为集合平均,不同成员和均值之间的差异作为集合平均的偏差,突破了 KF 的线性高斯假设限制,在非线性的情况下有很好的适用性。与变分法相比,该方法无须建立复杂的非线性观测算子和伴随模式,且与 3D-Var 方法中使用统计背景误差相比,可以使得预报误差协方差随模式动力显式发展,具有流依赖的特点。但在实际计算中,集合预报需要多次进行大气化学模式预报,消耗大量的计算和存储资源;此外,该方法对集合成员的初始

化敏感,若初始集合离散度不足或存在系统性偏差,易导致滤波结果发散,难以准确表征状态不确定性。

2 大气化学初始场资料同化研究进展

2.1 污染气体初始场同化

大气化学模式初始场的资料同化始于 20 世纪 90 年代,主要针对大气化学传输模式中的气态污染物或气溶胶总量,通过将观测资料同化到大气化学模式中,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。EnKF 方法通过污染物浓度场的集合预报,利用集合离散度直接估算浓度场的背景误差协方差,进而通过观测增量与卡尔曼增益,对每个集合成员的浓度初始场进行分析更新。变分方法 (3D-Var 和 4D-Var) 通过构建一个以初始浓度场为控制变量的代价函数,其核心是设计从模式污染物变量浓度到观测资料的观测算子及其伴随,最小化代价函数以直接求解最优的浓度初始场。相对天气预报模式而言,大气化学资料同化发展较慢,Austin^[36] 首次将资料同化应用到二维全球化学传输模式,通过同化卫星观测的臭氧 (O_3)、二氧化氮 (NO_2)、硝酸 (HNO_3) 提高了模式分析场的质量。但直到目前,仍有许多模拟研究和业务预报直接采用前期的预报场作为初始场,而不是用同化观测资料后的分析场进行预报^[6]。

由于大气化学观测主要集中在对流层,所以资料同化也主要面向以对流层为主的大气化学模式,众多资料同化的方法在痕量气体同化上有了较好的应用。Fisher 等^[37] 采用四维变分同化方法对化学模型的 O_3 、一氧化氮 (NO)、 NO_2 、三氧化氮 (NO_3) 等气体同化试验表明,与观测资料相比,同化后分析场的误差有明显降低。崔应杰等^[38] 利用最优插值法对嵌套空气质量预报模式 (nested air quality prediction modeling, NAQPM) 初始场的 NO_2 、二氧化硫 (SO_2) 和粗颗粒物 (PM_{10}) 进行同化,初始场的偏差平均值降低 50% 以上,对预报场也有明显的改进。Frydendall 等^[39] 采用统计插值对地面 O_3 进行同化预报,与控制试验相比,8 种同化试验预报的 O_3 与观测值的相关系数均提高了 0.1~0.21。Kumar 等^[40] 基于最优分辨率方法的城市区域空气质量模拟 (air quality modelling in urban regions using an optimal resolution approach, AURORA) 系统对比比利时的 O_3 和 NO_2 地面观测进行同化,同化后两者的均方根

误差分别降低了 $15.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $6.4 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。陈懿昂等^[41]基于天气研究与预报模式耦合社区多尺度空气质量模式 (weather research and forecasting model coupled community multiscale air quality model, WRF-CMAQ), 分别采用最优插值法和集合卡尔曼滤波法对珠江三角洲的 SO_2 浓度初始场进行同化, 提出最优插值的最优水平影响尺度是 20 km。Emili 等^[42]基于低阶化学 - 气象耦合模型和四维集合变分 (4-dimensional ensemble-variational, 4DEnVar) 方法, 对 O_3 、 NO_x 、 CO 和 CO_2 进行同化和预报分析, 结果表明, 与 3D-Var 方法的同化结果相比, 采用 4DEnVar 方法的次日预报误差更小。Ma 等^[43]基于网格点统计插值 (gridpoint statistical interpolation, GSI) 同化系统和天气研究与预报模型耦合化学 (weather research and forecasting model coupled with chemistry, WRF-Chem) 模式, 对比了同化前后 O_3 的 12 h 预报结果, 其平均 RMSE 降低了 43.85%。

部分学者针对涵盖平流层化学过程的大气化学模式发展了对应的同化系统, 重点关注 O_3 、甲烷 (CH_4) 等在全大气层输送的痕量气体, 有效提升了对此类气体垂直与水平分布和输送的模拟预报精度。例如陶正达等^[44]基于社区地球系统模式 (community earth system model, CESM) 和集合平方根滤波 (ensemble square root filter, EnSRF) 方法, 将大气红外探测器 (atmospheric infrared sounder, AIRS) 的 O_3 与 CH_4 观测资料同化到气候模式中, 结果表明, 与控制试验相比, 同化后再预报的 O_3 与 CH_4 的均方根误差分别降低了 $0.4 \mu\text{mol}/\text{mol}$ 和 $0.1 \mu\text{mol}/\text{mol}$ 。谢飞等^[45]基于全大气层气候模式 (whole atmosphere community climate model, WACCM) 和数据同化研究试验平台 (data assimilation research testbed, DART) 同化模式, 实现了中高层大气温度、 O_3 和水汽的卫星资料同化, 结果表明, 采用分析场作为初值的同化试验预报的 2020 年 5 月北极平流层 O_3 浓度与微波大气层测温仪 (microwave limb sounder, MLS) 观测的偏差小于 $0.5 \mu\text{mol}/\text{mol}$, 与未进行同化试验的结果相比, 偏差降低了 50% 以上。美国国家航空航天局 (National Aeronautics and Space Administration, NASA) 在戈达德地球观测系统成分预报模式 (Goddard earth observing system composition forecast modeling, GEOS-CF) 中加入了 3D-Var 同化功能, 同化卫星观测到的 O_3 数据, 包括 MLS 垂直剖面数据、臭氧检测仪 (ozone

monitoring instrument, OMI) 总柱浓度数据等, 以改善对流层 - 平流层的 O_3 浓度分布, 结果表明, GEOS-CF 模式结果中的对流层化学部分显著改善了模拟的 O_3 浓度背景场^[46]。

可以看出, 对于污染气体的初始场同化目前已经较为完善, 观测技术手段的发展, 卫星、雷达等观测数据的不断增加, 为气体污染物初始场同化提供了丰富的数据, 很多学者在多源资料同化方面也开展了相关试验。例如 Pan 等^[47]基于 3D-Var 方法同化了激光雷达观测网络监测的 O_3 浓度数据, 提高了珠江三角洲的 O_3 浓度模拟效果, 并分析了夜间 O_3 浓度异常高的原因。Han 等^[48]通过同化地面和卫星多平台观测的 O_3 浓度数据, 改进模式浓度初始场和边界条件, 提高了长江三角洲污染期间 O_3 浓度的模拟效果, 并分析了 O_3 敏感区。上述研究表明, 尽管采用的方法 (4D-Var、OI、EnKF 等) 和研究对象 (O_3 、 NO_2 、 SO_2 等) 不同, 但资料同化普遍能降低污染气体初始场的误差, 并显著改善短期预报效果。

2.2 气溶胶初始场同化

大气气溶胶是悬浮于大气中的多相微粒体系, 其复杂组分对生态环境和人体健康构成严重威胁。气溶胶作为地 - 气系统辐射平衡的关键调节因子, 通过散射和吸收太阳辐射以及作为云凝结核影响云微物理过程和寿命, 从而显著影响区域与全球气候。在大气化学模式中, 气溶胶变量通常设计为多种化学成分和粒径段, 变量比较复杂, 不同的同化方案研究对气溶胶的分类也有所区别。

早期的研究通常将所有气溶胶变量合并成一个状态变量进行同化, 然后将增量场按模式中变量的比例进行分配^[49-50]。如 Denby 等^[51]采用统计插值和 EnKF 方法对粗颗粒物 (PM_{10}) 进行同化, 其同化的控制变量是模式中 PM_{10} 对应的化学成分之和。Pagowski 等^[52]利用三维变分方法同化美国空气质量监测网 AIRNow 监测的细颗粒物 ($\text{PM}_{2.5}$) 资料, 其状态变量为 $\text{PM}_{2.5}$ 总量, 同化后再按其模式背景场中的方差比分配到模式变量。ECMWF 四维变分同化业务系统中, 也是以气溶胶的整体混合比作为同化的状态变量, 观测资料为中分辨率成像光谱仪 (moderate-resolution imaging spectroradiometer, MODIS) 提供的气溶胶光学厚度 (aerosol optical depth, AOD) 产品, 同化后的整体混合比再按比例分配到模式变量^[53-54]。

单一状态变量资料同化的优点是计算量小,

不用考虑复杂的变量背景误差协方差,而且观测算子比较简单;其缺点是不能考虑到各个化学成分增量场的结构差异,对各成分的观测资料也无法进行同化,针对多物种、多粒径段以及气态污染物的多变量综合同化是当前的发展趋势。然而,由于气溶胶组分常来源于共同的排放源或通过大气化学反应相互影响,不同气溶胶组分间的浓度与误差往往高度相关。因此,构建合理且能精准表征多粒径段气溶胶组分间相关关系的背景误差协方差矩阵,是实现有效多变量气溶胶同化的核心挑战^[55]。Li等^[28]针对WRF-Chem的模拟气溶胶相互作用和化学模型(model for simulating aerosol interactions and chemistry, MOSAIC),建立了黑碳(BC)、有机碳(OC)、硫酸盐(SO_4^{2-})、硝酸盐(NO_3^-)等5个气溶胶变量的3D-Var同化方案,结果表明,PM_{2.5}的24 h平均预报水平提高了18%。Feng等^[56]针对WRF-CMAQ的气溶胶变量,发展了基于GSI模式的3D-Var同化方案,在中国地区的试验表明,同化PM_{2.5}资料对预报效果有明显的提高且持续时间超过48 h。Cheng等^[57]设计了BC、OC、铵盐(NH_4^+)等6个状态变量的3D-Var同化模型,对2018年3月13日北京地区的4部激光雷达观测进行同化,发现采用同化分析场预报试验比无同化试验的平均RMSE降低了 $25 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。Schwartz等^[58]对比了3D-Var、EnSRF和混合集合变分(hybrid EnVar)方法对地面PM_{2.5}浓度的同化预报效果,结果表明三种同化方法的预报结果均好于不同化的预报效果,hybrid EnVar同化结果在大部分日期表现最好。

部分学者利用气溶胶组分观测资料开展同化预报研究,例如Zang等^[59]采用加州空气质量与气候变化交叉研究(California research at the nexus of air quality and climate change, CalNex)的飞机观测数据,将OC、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 这些气溶胶组分资料进行同化,使PM_{2.5}总量和这些气溶胶组分预报的均方根误差降低5%~30%。Escribano等^[60]利用可见红外成像辐射计(visible infrared imaging radiometer suite, VIIRS)的沙尘光学厚度(dust optical depth, DOD)和云-气溶胶激光雷达与红外探测者卫星观测(cloud-aerosol lidar with orthogonal polarization, CALIPSO)的沙尘消光系数廓线,在北非、中东和欧洲地区开展了2个月的沙尘资料同化试验,结果表明,同化后研究区域内DOD的均方根误差降低39%,沙尘消光系数的模拟偏差降低65%。准确的气溶胶组分观测数据对于提升气溶胶组分模拟精度、修正气溶胶

组分空间分布偏差具有重要作用,可有效弥补混合态气溶胶同化中组分信息缺失的不足,为复合型污染管控提供精准组分溯源依据。但这最大的挑战在于直接、连续的气溶胶组分观测资料稀缺,因此相关研究较少。

探测技术的发展使得资料同化可利用的数据呈爆炸式增长,尤其是卫星观测的AOD、气溶胶消光系数等非常规观测资料,极大地弥补了地面观测稀疏、垂直分布信息缺少等问题,同时也对资料同化技术提出新的挑战。资料同化需建立起观测变量与数值模式预报变量之间的映射关系,即观测算子。Liu等^[61]针对WRF-Chem模式中的戈达德化学气溶胶辐射与传输(Goddard chemistry aerosol radiation and transport, GOCART)方案,发展了基于卫星AOD资料的3D-Var系统,采用国家气象中心(national meteorological center, NMC)方法统计了14个气溶胶组分模式变量的背景误差协方差,实现了多变量气溶胶组分的直接同化。Liang等^[62]基于跨部门受保护视觉环境监测(interagency monitoring of protected visual environments, IMPROVE)方程设计了气溶胶消光系数资料的观测算子,实现了地面和雷达数据的多源资料同化,结果表明,同化激光雷达资料能有效提高PM_{2.5}的24 h预报准确率。Ye等^[63]面向MOSAIC气溶胶方案,发展了基于米散射的消光系数观测算子,并同化了CALIPSO观测的气溶胶消光系数,结果表明同化对地面PM_{2.5}的预报和其垂直结构有明显的改进。Wang等^[64]基于米散射理论构建了非线性观测算子,对一次重污染事件的同化预报表明,同化葵花8号(Himawari-8)卫星的AOD资料使PM_{2.5}预报的准确率提高了39.6%。但也有不少研究指出卫星AOD同化效果不明显甚至会出现降低模式性能的现象^[4,65-66]。造成这种现象的部分原因可能是AOD质量控制不够细致、背景误差设置偏大,导致同化对背景场的修正量过大,卫星AOD资料的高分辨率特征以及气溶胶的多尺度特征对资料同化方法提出了新的要求^[55,67]。针对传统的变分同化方法难以有效利用高分辨气溶胶观测信息的问题,Zang等^[68]提出了一种多尺度同化方法,采用不同尺度的背景误差协方差进行同化,通过不同尺度同化场的叠加,生成包含多尺度信息的分析场,多尺度同化试验表明,其同化分析场中PM_{2.5}的平均相关系数比传统的3D-Var提高了6.12%,平均均方根误差降低了16.4%,并能有效提高PM_{2.5}的短期预报水平。

综上,大气化学浓度初始场同化在大气成分研究中发挥重要作用,在改进空气质量预报、解析污染事件发生的关键物理与化学过程等方面具有不可忽视的作用,欧美国家气象预报机构已率先开展大气化学资料同化的业务化应用,同时将其列为大气污染领域的核心前沿研究方向,并已构建形成各自的全球大气化学再分析数据集。ECMWF 在综合预报系统(integrated forecasting system, IFS)中引入了温室气体、气溶胶和化学物质的预报^[69-70],建立了 O₃、CO、AOD、NO₂ 柱浓度的再分析数据产品,并将其应用于模式边界条件^[71-72]、气溶胶辐射强迫估计^[73-74]。美国国家航空航天局基于戈达德地球观测系统版本 5(Goddard earth observing system version 5, GEOS-5)模式与 GOCART 气溶胶方案,通过同化臭氧剖面观测数据、气溶胶地基观测数据、MODIS 观测的 AOD,发布了大气化学成分再分析数据集 MERRA-2^[75]。该数据集涵盖从对流层至平流层的 O₃、硫酸盐、海盐、沙尘、黑炭及有机碳等多类型气溶胶浓度变量,为对流层-平流层空气质量评估及跨圈层 O₃ 交换过程研究提供了重要的数据支撑^[76-77]。Ou 等^[78]、Randles 等^[79]和 Buchard 等^[80]基于独立的飞机、卫星、地面观测等数据集进行了评估, MERRA-2 在大部分情况下与观测数据有较好的一致性,但由于模式同化的是 AOD 总量,并未考虑不同气溶胶组分的特性、表面浓度和垂直分布等信息,在特殊事件的预报(如撒哈拉沙尘输送事件、中国上空重污染事件、皮纳图博火山喷发事件等)中,不能完全纠正大气化学模式中气溶胶初始场不确定性导致的预报误差。

3 大气污染物排放源同化研究进展

3.1 基于集合方法的排放源同化

排放源是大气污染预报和模拟中最重要的不确定性来源之一,污染物的排放水平直接决定了当地污染浓度水平,因此排放源的精确度直接决定了大气污染预报的精确度^[81]。目前模式使用的污染排放清单通常通过“自下而上”的清单编制法统计得到,该方法通过统计排放因子和人类活动水平数据估计污染物的排放,但是受限于人力物力资源,不可避免地存在分辨率低、精度不高且时间滞后等问题。资料同化方法可以通过大气化学模式构建排放源和污染物浓度的相关关系,进而采用污染物浓度“自上而下”地约束传统排

放清单,已经成为校验污染源清单和减小其不确定性、提高模式污染物预报水平的重要方法^[82]。其主要思想是通过大气化学模式的物理化学约束条件,将排放源误差与模式的预报误差建立联系,并利用实际的观测资料实现对已有排放源清单的反向优化和更新。

EnKF 方法通过统计排放源集合和化学传输模拟预报的浓度集合间的相关关系来确定排放与浓度间的关系,可以解决复杂的非线性问题,但需要大量的计算资源来统计集合样本^[83]。Lin 等^[84]最早采用 EnKF 方法,将沙尘排放系数作为状态变量,通过同化 PM₁₀ 浓度来调整沙尘排放系数,进而得到更好的沙尘预报。Barbu 等^[85]基于 EnKF 方法和区域化学传输模式 LOTOS-EUROS,将 SO₂ 向 SO₄²⁻ 转化的转化率和 SO₂ 的排放强度作为状态变量,在一定程度上提高了模式对 PM_{2.5} 的预报水平,但结果非常依赖于大气化学模式本身的误差以及同化的观测资料质量。Sekiyama 等^[86]利用局地集合变换卡尔曼滤波(local ensemble transform Kalman filter, LETKF)算法同化了星载激光雷达 CALIPSO 的 level1B 资料,改进了 2007 年 5 月沙尘的排放量。Miyazaki 等^[87]基于全球化学传输模式构建了一套 EnKF 排放源同化系统,通过同化 OMI 卫星观测的 NO₂ 柱浓度来改进每日的地面 NO_x 排放,并采用大气制图扫描成像吸收光谱仪(scanning imaging absorption spectrometer for atmospheric cartography, SCIAMACHY)观测的对流层 NO₂ 柱浓度和跨洲际化学传输实验 B 阶段(intercontinental chemical transport experiment phase B, INTEX-B)观测期间获取的 NO₂ 浓度廓线作为独立观测对预报结果进行检验;随后还通过同时同化 NO₂、O₃、HNO₃ 和 CO 的卫星观测反演全球的闪电 NO_x 排放,结果表明全球每年的闪电 NO_x 排放量约为 6.3 Tg N a⁻¹(误差 ±1.4 Tg N a⁻¹),但由于雷电中的化学反应过程不明确,排放源的估算仍然有很大的不确定性^[88];Miyazaki 等^[89]通过同化多源卫星观测的 NO₂ 柱浓度成功构建了 10 年(2005—2014 年)的全球 NO_x 排放量数据,结果表明中国、印度、中东地区的 NO_x 排放量呈增加趋势。Tang 等^[90]设计了通过同化 O₃ 观测,单独同化或同时同化 O₃ 初始场浓度、NO_x 初始场和排放、挥发性有机物(volatile organic compounds, VOCs)初始场和排放的试验,并初步考虑了模式误差对同化结果的影响,但该研究主要目的是提高 O₃ 预报准确性,没有评估排放源调整后的合理

性;在进一步的研究中,Tang 等^[91]发现 O_3 浓度和 NO_x 之间的强非线性关系,可能导致资料同化优化后的 NO_x 排放源在 NO_2 浓度预报中效果变差,这主要是因为基于线性假设的 EnKF 方法在统计相关关系时,会错误判别 O_3 生成的主导控制区,无法准确区分 NO_x 控制区与 VOCs 控制区,进而错误地调整了 NO_x 排放源。这些研究极大地推进了基于 EnKF 方法的排放源同化研究,后续的研究也多参考前人在 EnKF 同化系统方面的设置,尤其是水平影响尺度、截断误差、协方差膨胀、模式误差等影响 EnKF 同化效果的设置。但上述的研究也存在一些缺陷,例如大部分研究是通过同化卫星观测资料降低排放源的准确性,卫星观测虽然具有较高的空间分辨率,但其时间分辨率较低,得到的优化排放源多为月/日排放源,缺少小时排放信息,且大部分研究将排放系数作为状态变量,而非排放源本身,这样的间接同化增加了模式误差。

随着计算资源的丰富和数值模式的发展,利用 EnKF 方法同化地面观测小时级污染物浓度数据、构建优化逐小时排放清单的技术与相关研究应用日趋广泛。Tang 等^[92]基于嵌套式空气质量预测建模系统(nested air quality prediction modeling system, NAQPMS)构建了 CO 排放的 EnKF 同化系统,对 2010 年夏季北京及周边地区的 CO 排放进行了评估,结果表明,北京、天津、唐山和保定的 CO 排放量分别为 $4.11 \text{ Tg CO a}^{-1}$ 、 $3.75 \text{ Tg CO a}^{-1}$ 、 $3.17 \text{ Tg CO a}^{-1}$ 和 $4.08 \text{ Tg CO a}^{-1}$ 。Feng 等^[93]基于 EnKF 方法和 WRF-CMAQ 模式,对 2013 年和 2017 年 12 月中国地区的 CO 排放进行了同化,结果表明,与 2013 年 12 月优化排放相比,2017 年 12 月的 CO 排放量降低了 17%。Peng 等^[94]基于 GOCART 气溶胶方案和 EnSRF 方法,同化了 2014 年 10 月中国地面站点观测的 $PM_{2.5}$ 逐小时数据,进行初始场和排放源的改进,结果表明资料同化有助于减小排放源的不确定性,提高气溶胶的预报水平;随后 Peng 等^[65]对国控站观测的六要素资料进行同化,同时优化了 SO_2 、 NO_x 、CO、 NH_3 、VOCs 和气溶胶的排放源,基于优化的排放源,珠江三角洲地区 SO_2 的 48 h 浓度预报水平提高了 37.9%,但 $PM_{2.5}$ 的预报水平并没有显著提高。Chen 等^[23]在 Peng 等的工作基础上对集合卡尔曼滤波方法加以改进,实现了 SO_2 排放源的反演,得到了 2015 年和 2016 年 1 月的 SO_2 排放数据,并与“自下而上”方法统计的排放源进行了对比,同时采用模式模拟的方法进行验证。Feng 等^[95]基于 WRF-CMAQ 模式构建了针对 NO_x

排放源的 EnSRF 同化系统,并利用该系统同化地面 NO_2 观测,研究了在新冠疫情期间全国 NO_x 排放量的变化,结果表明,在疫情期间中国许多大城市和中小城市的 NO_x 排放量分别下降了 60% 以上和 30% 左右,这主要是疫情期间交通排放源的减少导致的。Ma 等^[96]基于 WRF-Chem/DART 的集合调整卡尔曼滤波(ensemble adjustment Kalman filter, EAKF)方法同化平台,同化了地面观测的六要素和 MODIS 的 AOD 资料,实现了初始场和排放源强度的联合同化,改进了大气污染物浓度预报水平。Luo 等^[97]基于 EnKF 方法和 NAQPMS 模式,通过同化国家地面观测站的污染物资料,对 2014 年至 2019 年京津冀地区的 SO_2 、 NO_x 、CO 和 $PM_{2.5}$ 的排放速率进行了优化,与先验排放清单相比,采用同化后的排放清单模拟的京津冀区域 SO_2 、 NO_x 、 $PM_{2.5}$ 和 CO 浓度的 RMSE 分别降低了 41%、30%、31% 和 22%。

上述研究表明,采用 EnKF 方法显著降低了大气污染排放源的不确定性并提高了污染物浓度预报水平,研究范围也从对 CO、沙尘等化学反应少的污染物的研究,逐步拓展至对包含复杂非线性化学反应的 NO_x 、VOCs 及 $PM_{2.5}$ 等关键大气污染物排放源的同化研究,并且提高了大气污染物的预报水平。然而,EnKF 方法在同化排放源的过程中需要多次计算大气化学传输模式并进行污染预报,从而统计污染物浓度集合与排放源集合之间的相关关系,同化反演所得的排放源数据时空分辨率普遍受限,现有多数研究的空间分辨率仍低于 $25 \text{ km} \times 25 \text{ km}$,难以满足精准减排和精细化污染预报的需求。另外,EnKF 方法还会引入误差发散的问题,模式误差的贡献会在迭代过程中累积,导致排放同化误差随着迭代次数的增加而发散,需要人为调整从而保证收敛性。

3.2 基于四维变分方法的排放源同化

4D-Var 方法将排放源作为同化状态变量,通过构建前向模式及其伴随算子表征污染物浓度与排放源之间的相关关系,从而利用时间窗口内的污染物浓度观测改进前期排放源。前向模式是基于大气化学模式简化得到,在前向模式及其伴随算子准确的情况下同化结果相对稳定。因此,4D-Var 系统的发展与数值模式的发展息息相关,早期的 4D-Var 系统也多是基于拉格朗日扩散模型的二维化学传输模型构建的。例如,Elbern 等^[98]基于欧洲空气污染扩散模型(European air pollution dispersion model, EURAD)构建了 4D-Var

排放源同化系统并设计理想试验,通过同化 O_3 浓度观测改进 SO_2 、 NO_x 和 VOCs 的排放速率,发现 SO_2 的后验排放源强与真实排放更为接近,但当背景排放源强与真实排放差距较大时,如果不给后验排放源加入额外的先验约束, $O_3 - NO_x - VOCs$ 反应体系的非线性会导致 NO_x 和 VOCs 的排放源向错误的方向调整;随后 Elbern 等^[99]在此基础上设计了 SO_2 、 NO_x 和 CO 浓度的观测算子,将 19 种污染物排放速率和化学初始场浓度同时作为状态变量进行同化,结果表明,同化的 SO_2 排放速率提高了 SO_2 浓度的预报水平,而 O_3 浓度预报水平的提高主要是因为降低了初始场的不确定性,较粗的网格分辨率、观测数据的低时间分辨率,以及过于简化的伴随模式影响了最终的排放源同化效果。

随着数值模式的逐步发展,4D-Var 同化系统也逐渐应用于三维数值模式,Hakami 等^[100]构建了具有二阶动力学与一阶水相化学的硫传输欧拉模式(sulfur transport and Eulerian model with 2nd-order kinetics and 1st-order aqueous chemistry, STEM-2kl)的伴随模型,用于估算黑炭气溶胶质量,并评估了 ACE-Asia 试验中黑炭的日质量浓度观测结果。Müller 等^[101]基于大气气相物种与排放模拟综合模型(integrated model for atmospheric gas-phase species and emission simulations, IMAGES)编写了相应的伴随模式,并通过同化地面观测的 CO 浓度和全球臭氧检测试验(global ozone monitoring experiment, GOME)数据集的 NO_x 柱浓度改进 CO 和 NO_x 通量,结果表明,1997 年优化的全球 CO 排放和 NO_x 排放分别为 2 760.0 Tg CO 和 42.1 Tg N,与先验排放源相比分别增加了 28% 和降低了 14%。Henze 等^[102]基于全球大气化学三维模式(global 3-D model of atmospheric chemistry, GEOS-Chem)和 GOCART 气溶胶方案构建了伴随模式(GEOS-Chem-adjoint),考虑了对流层化学和硫酸盐-硝酸盐-铵盐-水的气溶胶反应理论,实现了对 SO_2 、 NO_x 、 NH_3 排放源的优化,并采用虚假观测进行了切线性检验、收敛效率检验等,验证了伴随模式的可靠性;之后 Henze 等^[103]基于该伴随模式同化了 IMPROVE 观测系统观测的硫酸盐和硝酸盐,改进了美国 NH_3 排放源。GEOS-Chem-adjoint 是目前国际上应用最为广泛的全球尺度排放源同化 4D-Var 系统,众多学者在 Henze 的研究基础上对 GEOS-Chem-adjoint 模式同化的状态变量、观测数据等进行了拓展和优化。例如,Wang 等^[104]发展

了针对 MODIS 和多角度成像光谱仪(multi-angle imaging spectroradiometer, MISR)观测的 AOD 的观测算子,将沙尘排放系数作为状态变量,估计了 2008 年 5 月塔克拉玛干沙漠的沙尘排放,同化后的沙尘排放源与先验排放源相比降低了 51%。Qu 等^[105]基于 GEOS-Chem-adjoint 模式,通过同化 OMI 观测的 SO_2 柱浓度数据,估算了 SO_2 排放量,发现 2008—2016 年中国 SO_2 排放量下降了 48%。

在区域尺度的排放源同化方面,Lu 等^[106]利用基于正交分解的四维变分同化方法和 WRF-CMAQ 模式,构建了用于同化地表 CO 排放通量的区域 4D-Var 系统,并应用该系统估算了 2016 年 1 月和 7 月中国徐州市的 CO 排放量,结果表明,同化的 CO 排放主要分布在城市和工业区,其中 1 月(冬季)比先验的 CO 排放高 104%,7 月(夏季)比先验的 CO 排放高 44%。Wang 等^[107]基于全球/区域同化预报系统耦合中国气象局统一大气化学环境预报系统(global/regional assimilation and prediction system coupled with CMA unified atmospheric chemistry environmental forecasting system, GRAPES-CUACE)模式构建了用于同化 BC 排放的 4D-Var 系统,结果表明,与采用先验排放源的预报相比,采用同化的排放源预报的 BC 浓度偏差降低了 1% ~ 30%。Hu 等^[21]基于 WRF-Chem 模式构建了针对 SO_2 浓度初始场和排放源同步同化的 4D-Var 系统,对中国地区新冠疫情封锁期间和 2019 年同期的 SO_2 排放源进行同化,结果表明,与 2019 年同期相比,2020 年研究期间内的 SO_2 排放量平均降低了 9.2%,华中、华北大部分地区降低幅度超过 40.0%。随后 Hu 等^[20]针对 EnKF 与 4D-Var 两种同化算法在排放源同化中的应用效能开展了系统性评估,研究结果显示,4D-Var 方法在突发性或局地性污染事件的排放源同化中表现出更高的同化可靠性与时空匹配度,而 EnKF 方法则在排放源系统性偏差的动态校正方面具备显著优势;He 等^[108]利用 4D-Var 方法同化中国 2023 年春节期间的 SO_2 排放,同化得到的 SO_2 排放源精准捕捉到除夕凌晨前后燃放烟花爆竹导致的排放量大幅升高,显著改善了春节期间 SO_2 污染浓度的模式预报能力,验证了 4D-Var 方法在局地突发污染事件排放反演中的可靠性。

从上述研究成果可以看出,利用 4D-Var 方法的大气污染排放源同化具有明确的物理意义,通过将大气化学模式中表征污染物在大气中的物理化学参数化过程简化为前向模式并编写对应的伴

随算子,可实现对污染物排放源的同化。该方法在前向模式准确的时候可以得到更加准确、及时的污染源排放,在CO、沙尘和SO₂排放源同化反演方面取得了显著的成功。但对于一些生命周期较短、化学反应复杂的污染物,如NO_x、VOCs、气溶胶等,难以编写非线性的观测算子、前向模式进而求解伴随,也缺少多种污染排放源的协同同化。此外,大气污染物之间往往存在着复杂的非线性相关关系,单一污染物排放源的不确定性通常会通过大气化学转化与传输过程,对其他污染物的排放源同化反演结果产生不同程度的影响,但现有研究大多聚焦于单一物种的排放源同化,对多污染物排放源的协同同化仍缺乏系统性探索。

值得注意的是,尽管EnKF与4D-Var方法在排放源同化领域的核心技术存在较大差异,但两类方法均未解决如何充分利用海量观测数据的难题。伴随大气观测技术的快速迭代,各类观测数据呈爆发式增长,可用于大气化学资料同化的数据源规模亦实现指数级扩充。然而,现有基于EnKF或4D-Var方法的排放源同化研究,大多只采用污染物浓度观测数据对排放源进行反演,得到的同化后排放源数据难以区分来源部门,对高分辨率地理遥感数据的应用程度还存在着严重不足。如何借助多类型大气成分观测数据及地理、人口等地球大数据的综合优势,实现污染排放源清单的高精度协同反演,是当前大气排放源同化领域亟待突破的瓶颈难题与核心技术挑战。

4 总结与展望

资料同化是提升数值模式预报的重要方法,针对大气化学资料同化的研究进展进行了综述,介绍了目前主流的几种大气化学资料同化方法,讨论了大气化学资料同化在污染物浓度初始场同化和大气污染物排放源同化方面的研究进展。然而,尽管大气化学资料同化已经取得了很多重要成果,但在提高空气污染预报方面仍然面临以下几个方面的挑战。

1)近年来,大气环境卫星探测器所能达到的水平分辨率不断提升,多仪器多平台协同探测的一体化观测数据网逐步构建,对初始场同化提出了更高的要求和挑战。特别是随着新一代静止卫星FY-4的发射,以及未来激光雷达探测网络部署,与地面站点观测形成互补,进一步充分利用卫星和雷达观测的高时空分辨率、非

常规观测数据,实现精细化、多尺度的气溶胶直接同化,是提升区域乃至全球空气污染预报精度的关键。

2)资料同化方法能够利用模式和观测资料对传统排放清单进行同化,其结果更具客观性,且更新速度快。但当前的排放源同化研究大多只针对某一物种,并未考虑大气污染物之间存在着复杂的非线性相关,因而缺乏多污染物排放源的协同同化。且只采用大气污染物浓度观测数据对总污染物排放进行约束,而没有结合地球大数据开展分部门的排放同化研究。如何利用丰富的大气成分观测数据,并结合地理数据、人口数据、夜间灯光数据等地球大数据实现多源、多部门污染排放清单协同同化,是提升大气污染排放源时空分辨率和准确性的瓶颈问题与关键挑战。

3)随着观测能力的提高、模式产品的丰富,资料同化可利用的数据呈爆炸式增长,远远超过了资料同化对数据的处理分析能力。机器学习具有从海量数据中提取复杂时空特征的能力,且模型训练完成后的计算效率远快于传统数值模式和资料同化模型,但物理意义不明确,结果受到训练样本精度的制约,对于缺少观测样本(标签)的区域难以应用。机器学习与资料同化方法存在数学相似,两者在贝叶斯框架下具有理论统一性,均可通过结合先验知识(如模式背景场或模型初始参数)与观测资料,求解待求变量的后验概率分布^[109-110]。资料同化为机器学习引入物理约束与不确定性量化机制,而机器学习为资料同化提供强大的非线性建模与降维能力。两者的融合有望突破传统资料同化方法在处理多源异构数据困难、计算速度慢等方面的瓶颈问题,将推动资料同化系统向更高效、更智能的方向发展,实现更精准的大气成分分析与预报^[111]。

参考文献(References)

- [1] GUO S C, YANG Y, LIU P. Assimilation of the deep learning-corrected global forecast system fields into the regional model for improving medium-range persistent precipitation forecasts [J]. *Atmospheric Research*, 2024, 303: 107318.
- [2] MA X X, LIU H N, PENG Z. Improving WRF-Chem PM_{2.5} predictions by combining data assimilation and deep-learning-based bias correction [J]. *Environment International*, 2025, 195: 109199.
- [3] YOON J W, LEE E, PARK S K. Improving the Asian dust storm prediction using WRF-Chem through combinational optimization of physical parameterization schemes [J]. *Atmospheric Environment*, 2024, 326: 120461.

- [4] TANG Y H, PAGOWSKI M, CHAI T F, et al. A case study of aerosol data assimilation with the community multi-scale air quality model over the contiguous United States using 3D-Var and optimal interpolation methods [J]. *Geoscientific Model Development*, 2017, 10(12): 4743–4758.
- [5] WANG Y, WANG J, XU X G, et al. A new approach for monthly updates of anthropogenic sulfur dioxide emissions from space: application to China and implications for air quality forecasts [J]. *Geophysical Research Letters*, 2016, 43(18): 9931–9938.
- [6] 雷荔傑, 翁富忠, 段晚晓, 等. 数值天气预报资料同化的发展与展望[J]. *气象学报*, 2025, 83(3): 503–535.
LEI L L, WENG F Z, DUAN W S, et al. Overview and prospect of data assimilation in numerical weather prediction[J]. *Acta Meteorologica Sinica*, 2025, 83(3): 503–535. (in Chinese)
- [7] XU Z F, ZHANG L, WANG R C, et al. Effect of 2-m temperature data assimilation in the CMA-MESO 3DVAR system [J]. *Journal of Meteorological Research*, 2023, 37(2): 218–233.
- [8] DEE D P, UPPALA S M, SIMMONS A J, et al. The ERA-Interim reanalysis: configuration and performance of the data assimilation system [J]. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 2011, 137(656): 553–597.
- [9] HONG J, MAO F Y, GONG W, et al. Assimilating Fengyun-4A observations to improve WRF-Chem PM_{2.5} predictions in China [J]. *Atmospheric Research*, 2022, 265: 105878.
- [10] KALNAY E, KANAMITSU M, KISTLER R, et al. The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project [J]. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 1996, 77(3): 437–471.
- [11] 臧增亮, 梁延飞, 尤伟, 等. 基于高分辨率气溶胶观测资料的多尺度三维变分同化及预报[J]. *中国科学:地球科学*, 2022, 52(11): 2181–2192.
ZANG Z L, LIANG Y F, YOU W, et al. Multi-scale three-dimensional variational data assimilation for high-resolution aerosol observations: methodology and application [J]. *Science China Earth Sciences*, 2022, 52(11): 2181–2192. (in Chinese)
- [12] LEE S, SONG C H, HAN K M, et al. Impacts of uncertainties in emissions on aerosol data assimilation and short-term PM_{2.5} predictions over Northeast Asia [J]. *Atmospheric Environment*, 2022, 271: 118921.
- [13] KAFFASHZADEH N, ALIAKBARI BIDOKHTI A A. Assessment of surface ozone products from downscaled CAMS reanalysis and CAMS daily forecast using urban air quality monitoring stations in Iran [J]. *Geoscientific Model Development*, 2024, 17(10): 4155–4179.
- [14] SINGH S, SINGH A, SRIVASTAVA A K, et al. Assessment of surface PM_{2.5} concentrations over India using modern-era retrospective analysis for research and applications, version 2 (MERRA-2) reanalysis data [J]. *Pure and Applied Geophysics*, 2025, 182(4): 1713–1735.
- [15] XIAN P, REID J S, ADES M, et al. Intercomparison of aerosol optical depths from four reanalyses and their multi-reanalysis consensus [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2024, 24(10): 6385–6411.
- [16] GELARO R, MCCARTY W, SUÁREZ M J, et al. The modern-era retrospective analysis for research and applications, version 2 (MERRA-2) [J]. *Journal of Climate*, 2017, 30(13): 5419–5454.
- [17] INNESS A, ADES M, AGUSTÍ-PANAREDA A, et al. The CAMS reanalysis of atmospheric composition [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(6): 3515–3556.
- [18] YUMIMOTO K, TANAKA T Y, OSHIMA N, et al. JRAero: the Japanese reanalysis for aerosol v1.0 [J]. *Geoscientific Model Development*, 2017, 10(9): 3225–3253.
- [19] YUMIMOTO K, UNO I. Adjoint inverse modeling of CO emissions over Eastern Asia using four-dimensional variational data assimilation [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, 40(35): 6836–6845.
- [20] HU Y W, LI Y, MA X Y, et al. The optimization of SO₂ emissions by the 4DVAR and EnKF methods and its application in WRF-Chem [J]. *Science of the Total Environment*, 2023, 888: 163796.
- [21] HU Y W, ZANG Z L, MA X Y, et al. Four-dimensional variational assimilation for SO₂ emission and its application around the COVID-19 lockdown in the spring 2020 over China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2022, 22(19): 13183–13200.
- [22] WENG Z F, ZHU L, LI J, et al. Using EnKF data assimilation to improve predictions of volcanic ash dispersion [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2025, 130(8): e2024JD042215.
- [23] CHEN D, LIU Z Q, BAN J M, et al. The 2015 and 2016 wintertime air pollution in China: SO₂ emission changes derived from a WRF-Chem/EnKF coupled data assimilation system [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(13): 8619–8650.
- [24] FENG S Z, JIANG F, WU Z, et al. A regional multi-air pollutant assimilation system (RAPAS v1.0) for emission estimates: system development and application [J]. *Geoscientific Model Development*, 2023, 16(20): 5949–5977.
- [25] RABIER F, MCNALLY A, ANDERSSON E, et al. The ECMWF implementation of three-dimensional variational assimilation (3D-Var). II: structure functions [J]. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 1998, 124(550): 1809–1829.
- [26] WHITAKER J S, HAMILL T M, WEI X, et al. Ensemble data assimilation with the NCEP global forecast system [J]. *Monthly Weather Review*, 2008, 136(2): 463–482.
- [27] 李泽楷, 吕志可, 解潜, 等. FY-4B 云导风资料观测误差分析及其同化应用 [J]. *热带气象学报*, 2025, 41(4): 575–586.
LI Z K, LYU Z K, XIE Q, et al. Observational error analysis and assimilation applications of FY-4B atmospheric motion vectors [J]. *Journal of Tropical Meteorology*, 2025, 41(4): 575–586. (in Chinese)
- [28] LI Z, ZANG Z, LI Q B, et al. A three-dimensional variational data assimilation system for multiple aerosol species with WRF/Chem and an application to PM_{2.5} prediction [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(8): 4265–4278.
- [29] BUEHNER M. Ensemble-derived stationary and flow-dependent background-error covariances: evaluation in a quasi-operational NWP setting [J]. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 2005, 131(607): 1013–1043.
- [30] LEE J W, MIN K H, CHUNG K S, et al. Intercomparison of radar data assimilation systems for snowfall cases during the ICE-POP 2018 [J]. *Atmospheric Research*, 2025, 314: 107804.
- [31] RABIER F, JÄRVINEN H, KLINKER E, et al. The

- ECMWF operational implementation of four-dimensional variational assimilation. I: experimental results with simplified physics [J]. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 2000, 126(564): 1143–1170.
- [32] COURTIER P, TALAGRAND O. Variational assimilation of meteorological observations with the direct and adjoint shallow-water equations [J]. Tellus A: Dynamic Meteorology and Oceanography, 1990, 42(5): 531–549.
- [33] LEWIS J M, DERBER J C. The use of adjoint equations to solve a variational adjustment problem with advective constraints [J]. Tellus A: Dynamic Meteorology and Oceanography, 1985, 37(4): 309–322.
- [34] XU D M, SONG T, LI H, et al. Four-dimensional variational assimilation of precipitation data with the large-scale analysis constraint in the 21.7 extreme rainfall event in China [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2025, 130(7): e2024JD042522.
- [35] EVENSEN G. Sequential data assimilation with a nonlinear quasi-geostrophic model using Monte Carlo methods to forecast error statistics [J]. Journal of Geophysical Research: Oceans, 1994, 99(C5): 10143–10162.
- [36] AUSTIN J. Toward the four dimensional assimilation of stratospheric chemical constituents [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1992, 97(D2): 2569–2588.
- [37] FISHER M, LARY D J. Lagrangian four-dimensional variational data assimilation of chemical species [J]. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 1995, 121(527): 1681–1704.
- [38] 崔应杰, 王自发, 朱江, 等. 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, 2006, 11(5): 616–626.
- CUI Y J, WANG Z F, ZHU J, et al. A preliminary study on data assimilation for numerical air quality model prediction [J]. Climatic and Environmental Research, 2006, 11(5): 616–626. (in Chinese)
- [39] FRYDENDALL J, BRANDT J, CHRISTENSEN J H. Implementation and testing of a simple data assimilation algorithm in the regional air pollution forecast model, DEOM [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2009, 9(15): 5475–5488.
- [40] KUMAR U, DE RIDDER K, LEFEBVRE W, et al. Data assimilation of surface air pollutants (O_3 and NO_2) in the regional-scale air quality model AURORA [J]. Atmospheric Environment, 2012, 60: 99–108.
- [41] 陈懿昂, 邓雪娇, 朱彬, 等. 珠江三角洲 SO_2 初始场同化试验研究 [J]. 中国环境科学, 2017, 37(5): 1610–1619.
- CHEN Y A, DENG X J, ZHU B, et al. Data assimilation experiment on SO_2 initial conditions in the Pearl River Delta [J]. China Environmental Science, 2017, 37(5): 1610–1619. (in Chinese)
- [42] EMILI E, CÜROL S, CARIOLLE D. Accounting for model error in air quality forecasts: an application of 4DVar to the assimilation of atmospheric composition using QG-Chem 1.0 [J]. Geoscientific Model Development, 2016, 9(11): 3933–3959.
- [43] MA C Q, WANG T J, ZANG Z L, et al. Comparisons of three-dimensional variational data assimilation and model output statistics in improving atmospheric chemistry forecasts [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 2018, 35(7): 813–825.
- [44] 陶正达, 鲍艳松, 陆其峰, 等. 基于 CESM-EnSRF 系统全球甲烷及臭氧卫星资料同化试验研究 [J]. 环境科学学报, 2018, 38(9): 3383–3393.
- TAO Z D, BAO Y S, LU Q F, et al. Study on the experiment of CESM-EnSRF assimilation system for global methane and ozone satellite data [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, 38(9): 3383–3393. (in Chinese)
- [45] 谢飞, 田文寿, 郑飞, 等. 基于 DART + WACCM 模式搭建的平流层同化、天气预报和气候预测模型研究 [J]. 大气科学, 2022, 46(6): 1300–1318.
- XIE F, TIAN W S, ZHENG F, et al. Stratospheric assimilation, weather forecast, and climate prediction model based on data assimilation research testbed and whole atmosphere community climate model [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 2022, 46(6): 1300–1318. (in Chinese)
- [46] KELP M M, KELLER C A, WARGAN K, et al. Tropospheric ozone data assimilation in the NASA GEOS composition forecast modeling system (GEOS-CF v2.0) using satellite data for ozone vertical profiles (MLS), total ozone columns (OMI), and thermal infrared radiances (AIRS, IASI) [J]. Environmental Research Letters, 2023, 18(9): 094036.
- [47] PAN Y, XIANG Y, PEI C L, et al. Vertical distribution and transport characteristics of ozone pollution based on lidar observation network and data assimilation over the Pearl River Delta, China [J]. Atmospheric Research, 2024, 310: 107643.
- [48] HAN T, ZHANG J, CHE Y F, et al. Ozone sensitivity in the Yangtze River Delta Region: a reanalysis with enhanced ozone forecasts via multi-source data assimilation [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2025, 130(12): e2024JD042958.
- [49] 朱江, 唐晓, 王自发, 等. 大气污染资料同化与应用综述 [J]. 大气科学, 2018, 42(3): 607–620.
- ZHU J, TANG X, WANG Z F, et al. A review of air quality data assimilation methods and their application [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 2018, 42(3): 607–620. (in Chinese)
- [50] PAGOWSKI M, LIU Z, GRELL G A, et al. Implementation of aerosol assimilation in gridpoint statistical interpolation (v.3.2) and WRF-Chem (v.3.4.1) [J]. Geoscientific Model Development, 2014, 7(4): 1621–1627.
- [51] DENBY B, SCHAAP M, SEGERS A, et al. Comparison of two data assimilation methods for assessing PM_{10} exceedances on the European scale [J]. Atmospheric Environment, 2008, 42(30): 7122–7134.
- [52] PAGOWSKI M, GRELL G A, MCKEEN S A, et al. 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]. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 2010, 136(653): 2013–2024.
- [53] BENEDETTI A, MORCRETTE J J, BOUCHER O, et al. Aerosol analysis and forecast in the European centre for medium-range weather forecasts integrated forecast system: 2. data assimilation [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2009, 114(D13): 2008JD011115.
- [54] MANGOLD A, DE BACKER H, DE PAEPE B, et al. Aerosol analysis and forecast in the European centre for medium-range weather forecasts integrated forecast system: 3. evaluation by means of case studies [J]. Journal of

- Geophysical Research: Atmospheres, 2011, 116 (D3): D03302.
- [55] ZANG Z L, HAO Z L, LI Y, et al. Background error covariance with balance constraints for aerosol species and applications in variational data assimilation[J]. Geoscientific Model Development, 2016, 9(8): 2623–2638.
- [56] FENG S Z, JIANG F, JIANG Z Q, et al. Impact of 3DVAR assimilation of surface PM_{2.5} observations on PM_{2.5} forecasts over China during wintertime[J]. Atmospheric Environment, 2018, 187: 34–49.
- [57] CHENG X H, LIU Y L, XU X D, et al. Lidar data assimilation method based on CRTM and WRF-Chem models and its application in PM_{2.5} forecasts in Beijing[J]. Science of the Total Environment, 2019, 682: 541–552.
- [58] SCHWARTZ C S, LIU Z Q, LIN H C, et al. Assimilating aerosol observations with a “hybrid” variational-ensemble data assimilation system [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2014, 119(7): 4043–4069.
- [59] ZANG Z L, LI Z J, PAN X B, et al. Aerosol data assimilation and forecasting experiments using aircraft and surface observations during CalNex[J]. Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, 2016, 68(1): 29812.
- [60] ESCRIBANO J, DI TOMASO E, JORBA O, et al. Assimilating spaceborne lidar dust extinction can improve dust forecasts[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022, 22(1): 535–560.
- [61] LIU Z Q, LIU Q H, LIN H C, et al. Three-dimensional variational assimilation of MODIS aerosol optical depth: implementation and application to a dust storm over East Asia[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2011, 116(D23): D23206.
- [62] LIANG Y F, ZANG Z L, LIU D, et al. Development of a three-dimensional variational assimilation system for lidar profile data based on a size-resolved aerosol model in WRF-Chem model v3.9.1 and its application in PM_{2.5} forecasts across China[J]. Geoscientific Model Development, 2020, 13(12): 6285–6301.
- [63] YE H C, PAN X B, YOU W, et al. Impact of CALIPSO profile data assimilation on 3-D aerosol improvement in a size-resolved aerosol model [J]. Atmospheric Research, 2021, 264: 105877.
- [64] WANG D C, YOU W, ZANG Z L, et al. A three-dimensional variational data assimilation system for aerosol optical properties based on WRF-Chem v4.0: design, development, and application of assimilating Himawari-8 aerosol observations [J]. Geoscientific Model Development, 2022, 15(4): 1821–1840.
- [65] PENG Z, LEI L L, LIU Z Q, et al. The impact of multi-species surface chemical observation assimilation on air quality forecasts in China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, 18(23): 17387–17404.
- [66] YUMIMOTO K, UNO I, SUGIMOTO N, et al. Size-resolved adjoint inversion of Asian dust [J]. Geophysical Research Letters, 2012, 39(24): L24808.
- [67] JIN J B, HENZING B, SEGERS A. How aerosol size matters in aerosol optical depth (AOD) assimilation and the optimization using the Ångström exponent [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2023, 23(2): 1641–1660.
- [68] ZANG Z L, LIANG Y F, YOU W, et al. Multi-scale three-dimensional variational data assimilation for high-resolution aerosol observations: methodology and application [J]. Science China Earth Sciences, 2022, 65(10): 1961–1971.
- [69] HUIJNEN V, LE SAGER P, KÖHLER M O, et al. OpenIFS/AC: atmospheric chemistry and aerosol in OpenIFS 43r3[J]. Geoscientific Model Development, 2022, 15(15): 6221–6241.
- [70] INNESS A, BAIER F, BENEDETTI A, et al. The MACC reanalysis: an 8 yr data set of atmospheric composition [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, 13(8): 4073–4109.
- [71] YAMAGAMI A, KAJINO M, MAKI T. Statistical evaluation of the temperature forecast error in the lower-level troposphere on short-range timescales induced by aerosol variability [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2022, 127(13): e2022JD036595.
- [72] ZYRYANOV D, FORET G, EREMENKO M, et al. 3-D evaluation of tropospheric ozone simulations by an ensemble of regional chemistry transport model [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(7): 3219–3240.
- [73] BELLOUIN N, QUAAS J, MORCRETTE J J, et al. Estimates of aerosol radiative forcing from the MACC reanalysis [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, 13(4): 2045–2062.
- [74] FLENTJE H, MATTIS I, KIPLING Z, et al. Evaluation of ECMWF IFS-AER (CAMS) operational forecasts during cycle 41r1-46r1 with calibrated ceilometer profiles over Germany [J]. Geoscientific Model Development, 2021, 14(3): 1721–1751.
- [75] MOLOD A, TAKACS L, SUAREZ M, et al. Development of the GEOS-5 atmospheric general circulation model: evolution from MERRA to MERRA2 [J]. Geoscientific Model Development, 2015, 8(5): 1339–1356.
- [76] PARK J H, LEE S J, LEE T, et al. Variability of upper troposphere-lower stratosphere ozone over East Asia from a perspective of atmospheric stationary waves [J]. Environmental Research Letters, 2025, 20(4): 044051.
- [77] WANG M C, FU Q, HALL A, et al. Stratosphere-troposphere exchanges of air mass and ozone concentrations from ERA5 and MERRA2: annual-mean climatology, seasonal cycle, and interannual variability [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2023, 128 (24): e2023JD039270.
- [78] OU Y, LI Z Q, CHEN C, et al. Evaluation of MERRA-2 aerosol optical and component properties over China using SONET and PARASOL/GRASP data [J]. Remote Sensing, 2022, 14(4): 821.
- [79] RANGLES C A, DA SILVA A M, BUCHARD V, et al. The MERRA-2 aerosol reanalysis, 1980 onward. part I: system description and data assimilation evaluation [J]. Journal of Climate, 2017, 30(17): 6823–6850.
- [80] BUCHARD V, RANGLES C A, DA SILVA A M, et al. The MERRA-2 aerosol reanalysis, 1980 onward. part II: evaluation and case studies [J]. Journal of Climate, 2017, 30(17): 6851–6872.
- [81] BEEKMANN M, DEROGNAT C. 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]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2003, 108 (D17): ESQ 2.
- [82] 官元红, 周广庆, 陆维松, 等. 资料同化方法的理论发展及应用综述 [J]. 气象与减灾研究, 2007, 30(4): 1–8.
- GUAN Y H, ZHOU G Q, LU W S, et al. Theory development and application of data assimilation methods [J].

- Meteorology and Disaster Reduction Research, 2007, 30(4): 1–8. (in Chinese)
- [83] HOUTEKAMER P L, LEFAIVRE L, DEROME J, et al. A system simulation approach to ensemble prediction [J]. Monthly Weather Review, 1996, 124(6): 1225–1242.
- [84] LIN C Y, ZHU J, WANG Z F. Model bias correction for dust storm forecast using ensemble Kalman filter [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2008, 113(D14): D14306.
- [85] BARBU A L, SEGERS A J, SCHAAP M, et al. A multi-component data assimilation experiment directed to sulphur dioxide and sulphate over Europe [J]. Atmospheric Environment, 2009, 43(9): 1622–1631.
- [86] SEKIYAMA T T, TANAKA T Y, SHIMIZU A, et al. Data assimilation of CALIPSO aerosol observations [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, 10(1): 39–49.
- [87] MIYAZAKI K, ESKES H J, SUDO K. Global NO_x emission estimates derived from an assimilation of OMI tropospheric NO₂ columns [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(5): 2263–2288.
- [88] MIYAZAKI K, ESKES H J, SUDO K, et al. Global lightning NO_x production estimated by an assimilation of multiple satellite data sets [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, 14(7): 3277–3305.
- [89] MIYAZAKI K, ESKES H, 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): 807–837.
- [90] TANG X, ZHU J, WANG Z F, et al. Improvement of ozone forecast over Beijing based on ensemble Kalman filter with simultaneous adjustment of initial conditions and emissions [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011, 11(24): 12901–12916.
- [91] TANG X, ZHU J, WANG Z F, et al. Limitations of ozone data assimilation with adjustment of NO_x emissions: mixed effects on NO₂ forecasts over Beijing and surrounding areas [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, 16(10): 6395–6405.
- [92] TANG X, ZHU J, WANG Z F, et al. Inversion of CO emissions over Beijing and its surrounding areas with ensemble Kalman filter [J]. Atmospheric Environment, 2013, 81: 676–686.
- [93] FENG S Z, JIANG F, WU Z, et al. CO emissions inferred from surface CO observations over China in December 2013 and 2017 [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2020, 125(7): e2019JD031808.
- [94] PENG Z, LIU Z Q, CHEN D, et al. Improving PM_{2.5} forecast over China by the joint adjustment of initial conditions and source emissions with an ensemble Kalman filter [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(7): 4837–4855.
- [95] FENG S Z, JIANG F, WANG H M, et al. NO_x emission changes over China during the COVID-19 epidemic inferred from surface NO₂ observations [J]. Geophysical Research Letters, 2020, 47(19): e2020GL090080.
- [96] MA C Q, WANG T J, JIANG Z Q, et al. Importance of bias correction in data assimilation of multiple observations over Eastern China using WRF-Chem/DART [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2020, 125(1): e2019JD031465.
- [97] LUO X C, TANG X, WANG H Y, et al. Investigating the changes in air pollutant emissions over the Beijing-Tianjin-Hebei region in February from 2014 to 2019 through an inverse emission method [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 2023, 40(4): 601–618.
- [98] ELBERN H, SCHMIDT H, TALAGRAND O, et al. 4D-variational data assimilation with an adjoint air quality model for emission analysis [J]. Environmental Modelling & Software, 2000, 15(6/7): 539–548.
- [99] ELBERN H, STRUNK A, SCHMIDT H, et al. Emission rate and chemical state estimation by 4-dimensional variational inversion [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2007, 7(14): 3749–3769.
- [100] HAKAMI A, HENZE D K, SEINFELD J H, et al. Adjoint inverse modeling of black carbon during the Asian Pacific regional aerosol characterization experiment [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2005, 110(D14): D14301.
- [101] MÜLLER J F, STAVRAKOU T. Inversion of CO and NO_x emissions using the adjoint of the IMAGES model [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2005, 5(5): 1157–1186.
- [102] HENZE D K, HAKAMI A, SEINFELD J H. Development of the adjoint of GEOS-Chem [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2007, 7(9): 2413–2433.
- [103] HENZE D K, SEINFELD J H, SHINDELL D T. Inverse modeling and mapping US air quality influences of inorganic PM_{2.5} precursor emissions using the adjoint of GEOS-Chem [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2009, 9(16): 5877–5903.
- [104] WANG J, XU X G, HENZE D K, et al. Top-down estimate of dust emissions through integration of MODIS and MISR aerosol retrievals with the GEOS-Chem adjoint model [J]. Geophysical Research Letters, 2012, 39(8): L08802.
- [105] QU Z, HENZE D K, LI C, et al. SO₂ emission estimates using OMI SO₂ retrievals for 2005–2017 [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2019, 124(14): 8336–8359.
- [106] LU L J, CHEN B Z, GUO L F, et al. A regional data assimilation system for estimating CO surface flux from atmospheric mixing ratio observations: a case study of Xuzhou, China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2019, 26(9): 8748–8757.
- [107] WANG C, AN X Q, HOU Q, et al. Development of four-dimensional variational assimilation system based on the GRAPES-CUACE adjoint model (GRAPES-CUACE-4D-Var V1.0) and its application in emission inversion [J]. Geoscientific Model Development, 2021, 14(1): 337–350.
- [108] HE X Y, HU Y W, LI Y, et al. The impact of firework ban relaxation on variations in SO₂ emissions in China during the 2023 Chinese new year [J]. Remote Sensing, 2024, 16(22): 4191.
- [109] ABARBANEL H D I, ROZDEBA P J, SHIRMAN S. Machine learning: deepest learning as statistical data assimilation problems [J]. Neural Computation, 2018, 30(8): 2025–2055.
- [110] GEER A J. Learning earth system models from observations: machine learning or data assimilation? [J]. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 2021, 379(2194): 20200089.
- [111] HE X Y, ZANG Z L, LI Y, et al. Inversion of a near-real-time China gridded hourly SO₂ emission inventory using deep learning combined with 3D-variational assimilation [J]. Geophysical Research Letters, 2025, 52(12): e2024GL114375.