SUSTech | School of Environment
南科大环境学院

基于西涌站点的含氟温室气体浓度监测与排放反演

2025年长三角空气质量管理技术研讨会

朱雷、陈雨阳、李娟、李亚莉、
叶建淮、杨新、傅宗玫、杨红龙（深圳市国家气候观象台）
姚波（复旦大学）、于海波（华纳创新）、吴婧（北京交通大学）

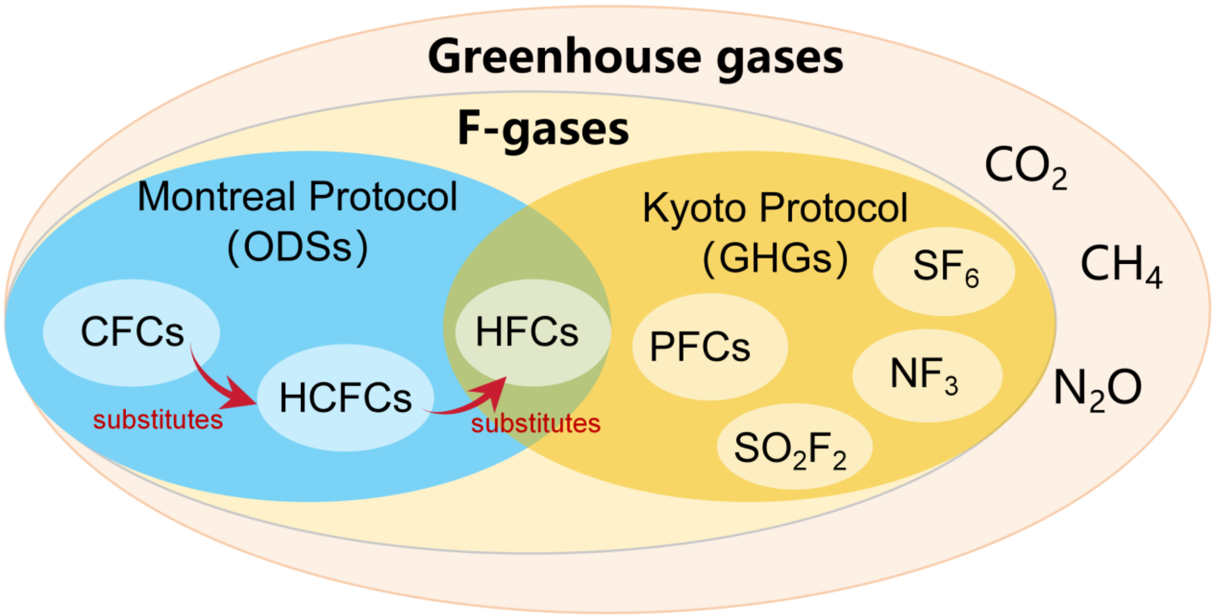
上海 2025年8月28日

南方科技大学
SOUTHERN UNIVERSITY OF SCIENCE AND TECHNOLOGY

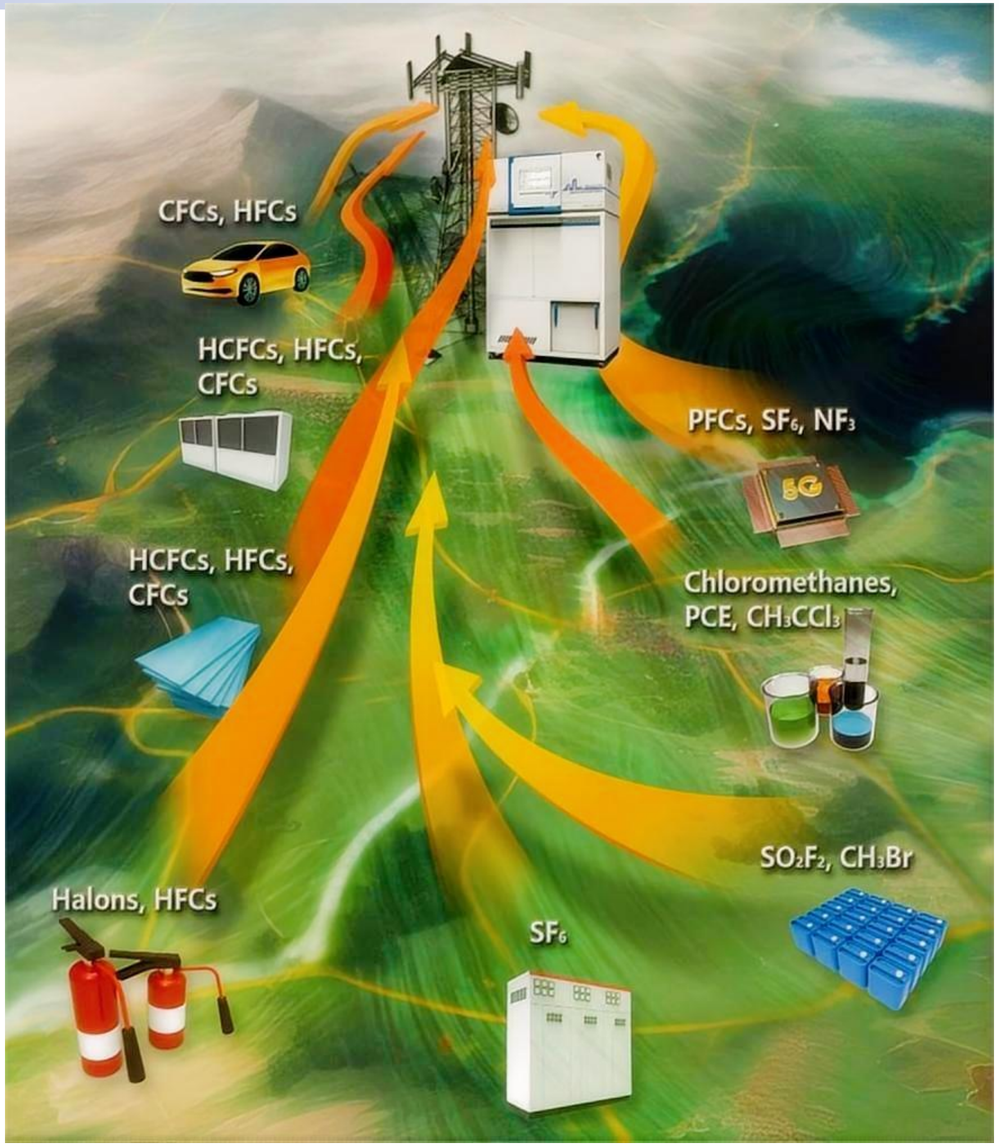
南科大环境学院
SUSTech | School of Environment

GORSCAC
广东省野外科学观测研究站
大湾区滨海大气环境与气候背景站
Guangdong Provincial Observation and Research Station for Coastal Atmosphere and Climate of the Greater Bay Area

含氟温室气体

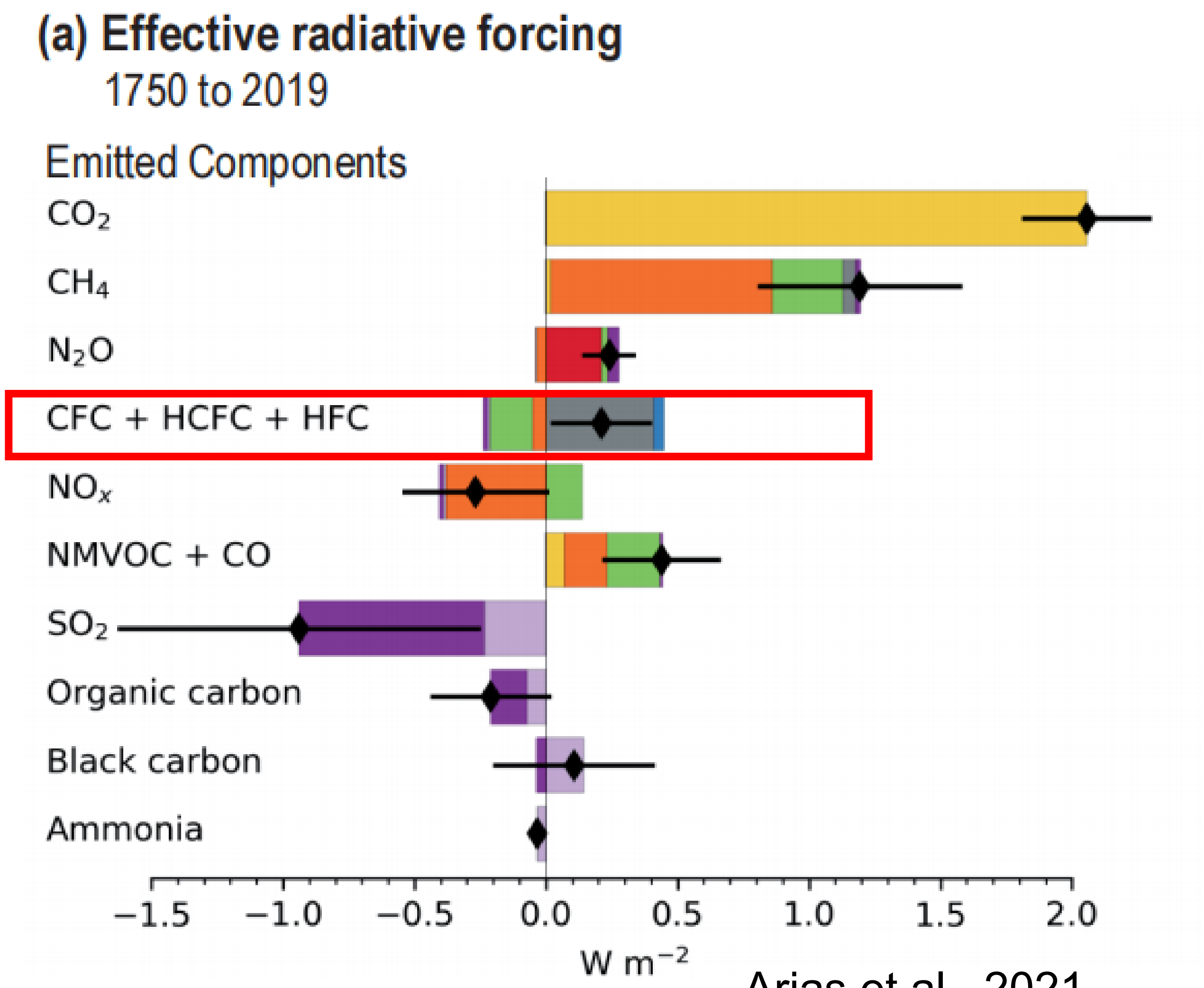


- Potent greenhouse gases
- From anthropogenic emissions
- Wide range of industrial applications



Yi et al., 2023, *ES&T*

含氟温室气体对辐射强迫的贡献

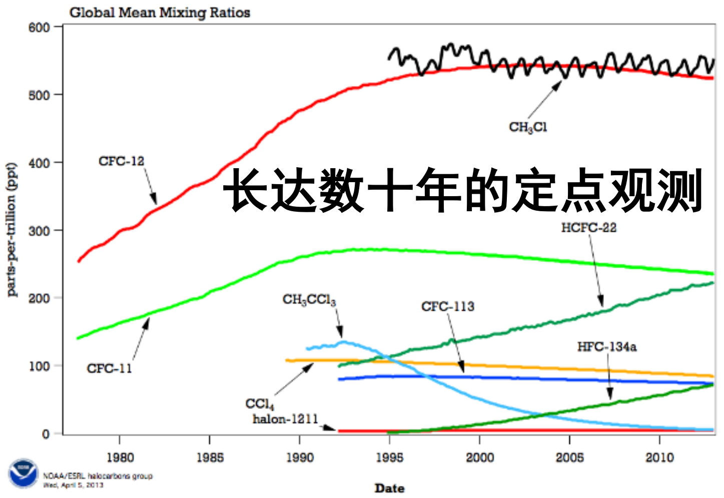


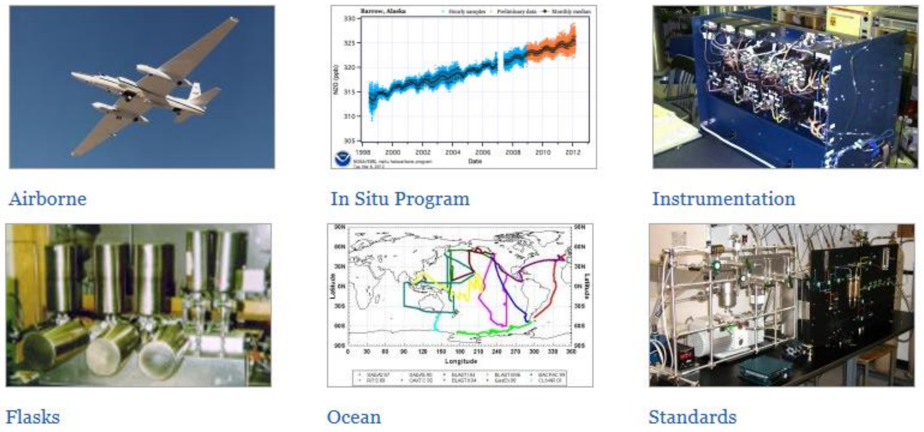
Arias et al., 2021

- The ERF due to direct emissions of F-gases is about 0.41 W m^{-2} from 1750–2019, equivalent to 19% of CO_2 and 76% of CH_4.

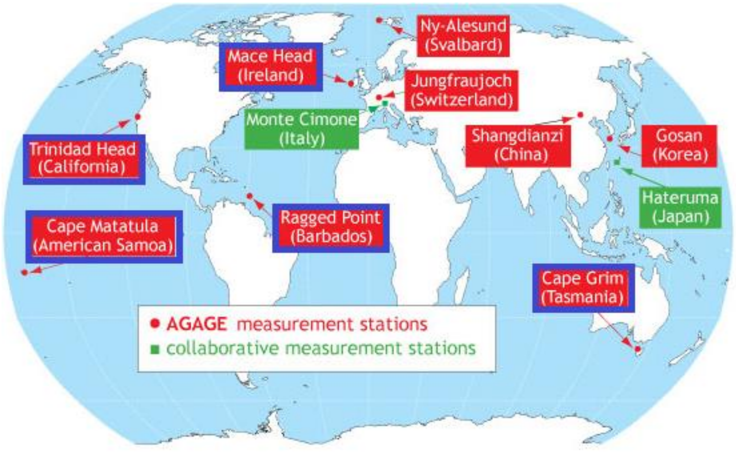
- Considering additional chemical adjustments to the atmosphere through changes in ozone, methane, and aerosols, F-gases are comparable to N_2O.

含氟温室气体全球监测平台与网络

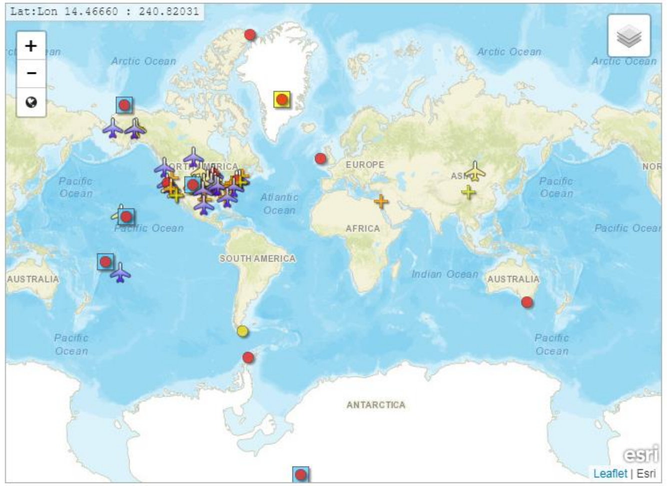




NOAA/HAST, 2014



AGAGE观测站点



NOAA/ESRL观测站点

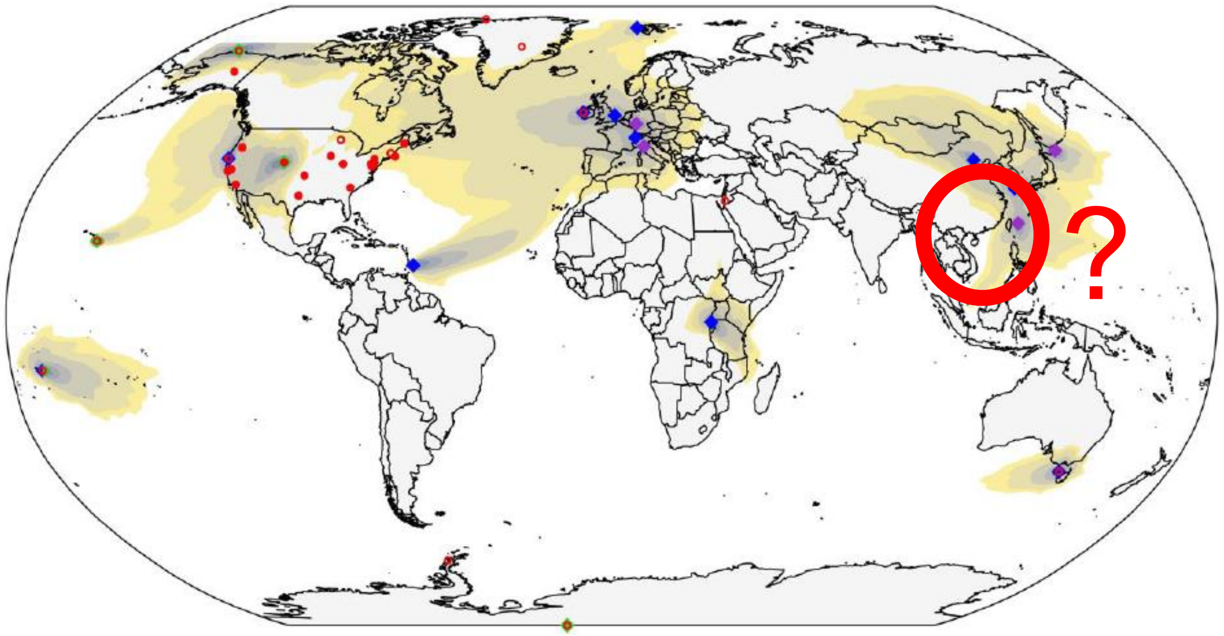
1970年代末以来，发达国家开展了含氟温室气体**长期-定点-网络化**观测研究

观测网之间**强化比对标校+构建同化数据库**

姚波教授（复旦大学）

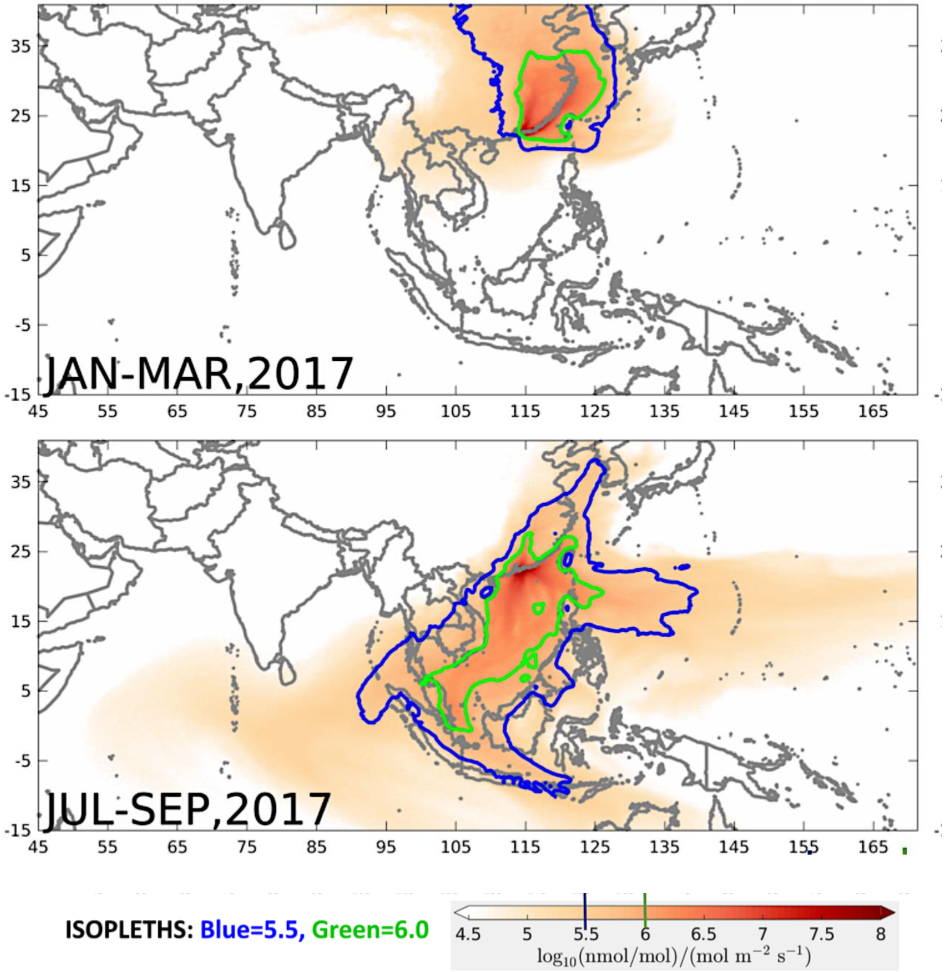
大湾区滨海大气环境与气候背景站：地理位置

含氟温室气体观测网络（AGAGE）
在东亚尚缺乏代表性站点



- 24个国家气候观象台之一
- 超大城市群背景站点
- 典型海陆交换滨海站点
- 对东亚季风区代表性高
- 具有长期观测的超级气象站

西涌站点对东亚大气的代表性研究



Jianxiong SHENG, MIT

绿色范围内具有非常好的代表性
蓝色范围内具有较好的代表性

大湾区滨海大气环境与气候背景站

GORSCAC
广东省野外科学观测研究站
大湾区滨海大气环境与气候背景站
Guangdong Provincial Observation and
Research Station for Coastal Atmosphere and
Climate of the Greater Bay Area

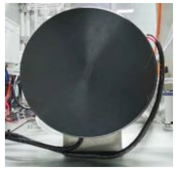
含氟温室气体及消耗臭氧层物质全要素在线观测系统

天霁 ODS5-PRO **国产仪器**

长期在线连续观测公约受控**50余种**含卤气体

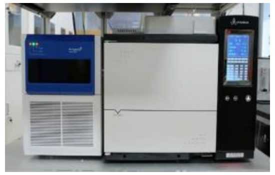
主机

捕集阱及温度控制系统

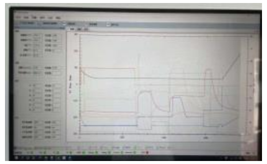


超低温制冷系统

色谱-质谱系统



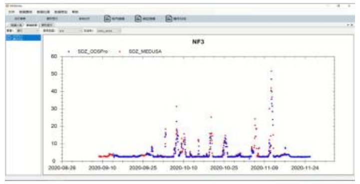
环境标气



系统控制软件

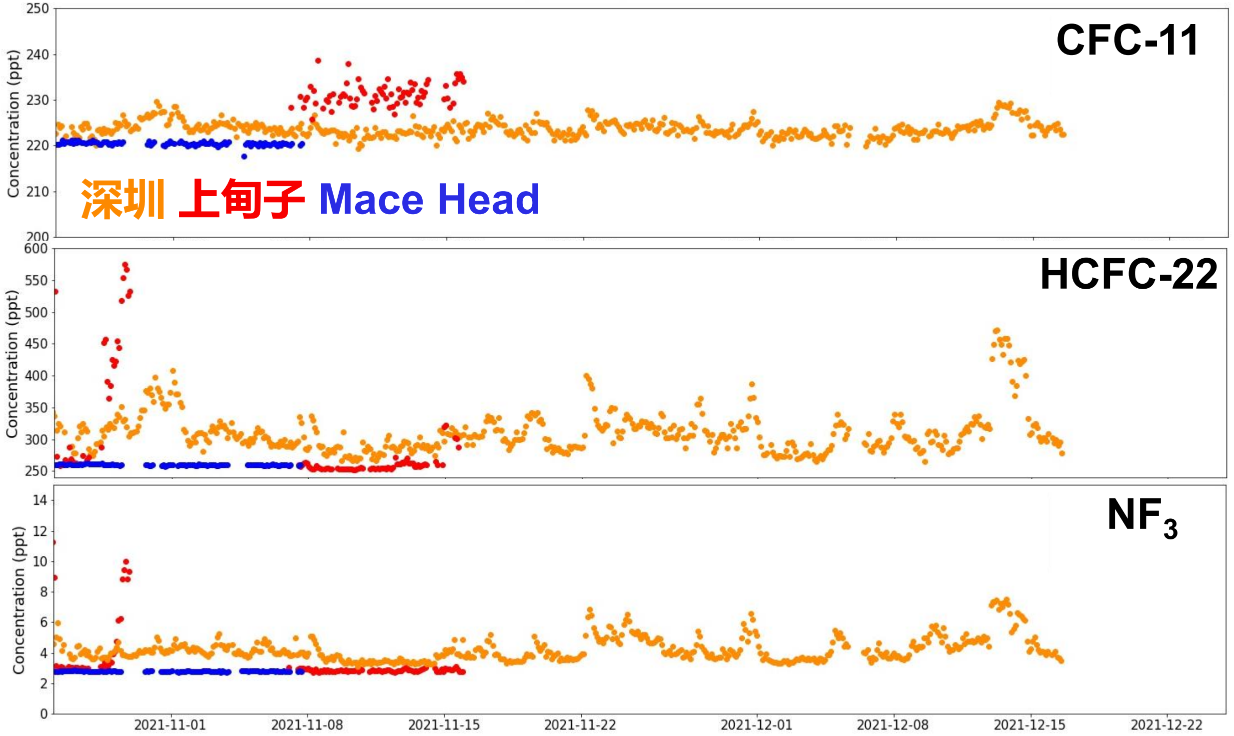
在线观测进样模块

真空系统

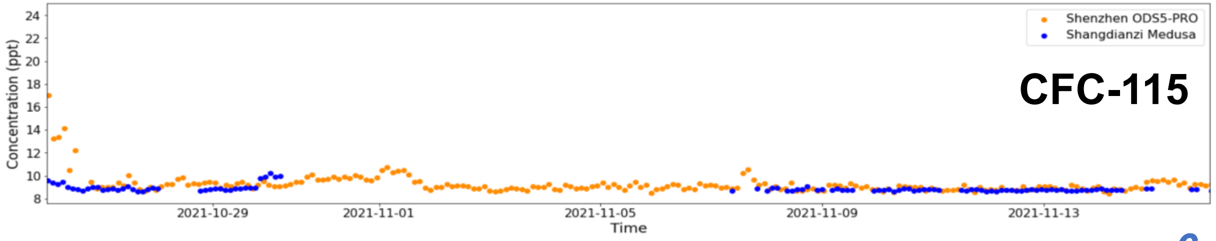


数据处理软件

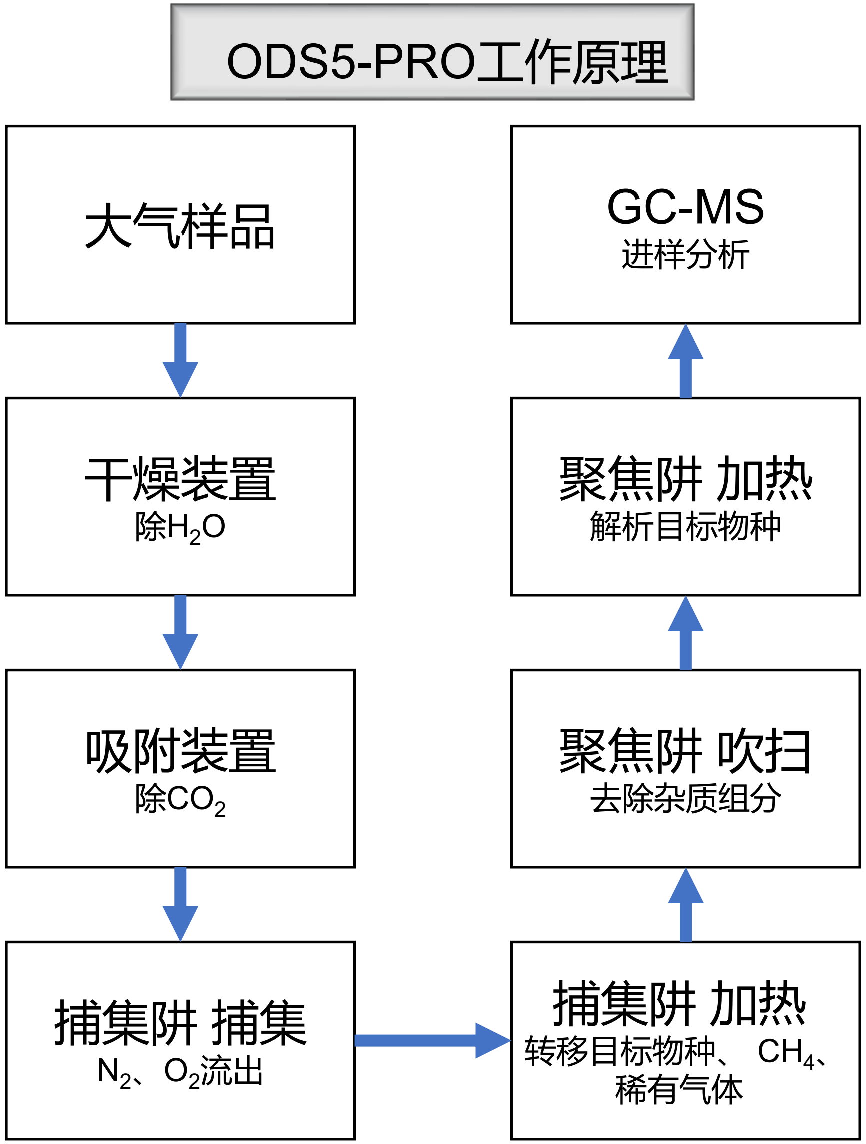
ODS物种监测结果示例

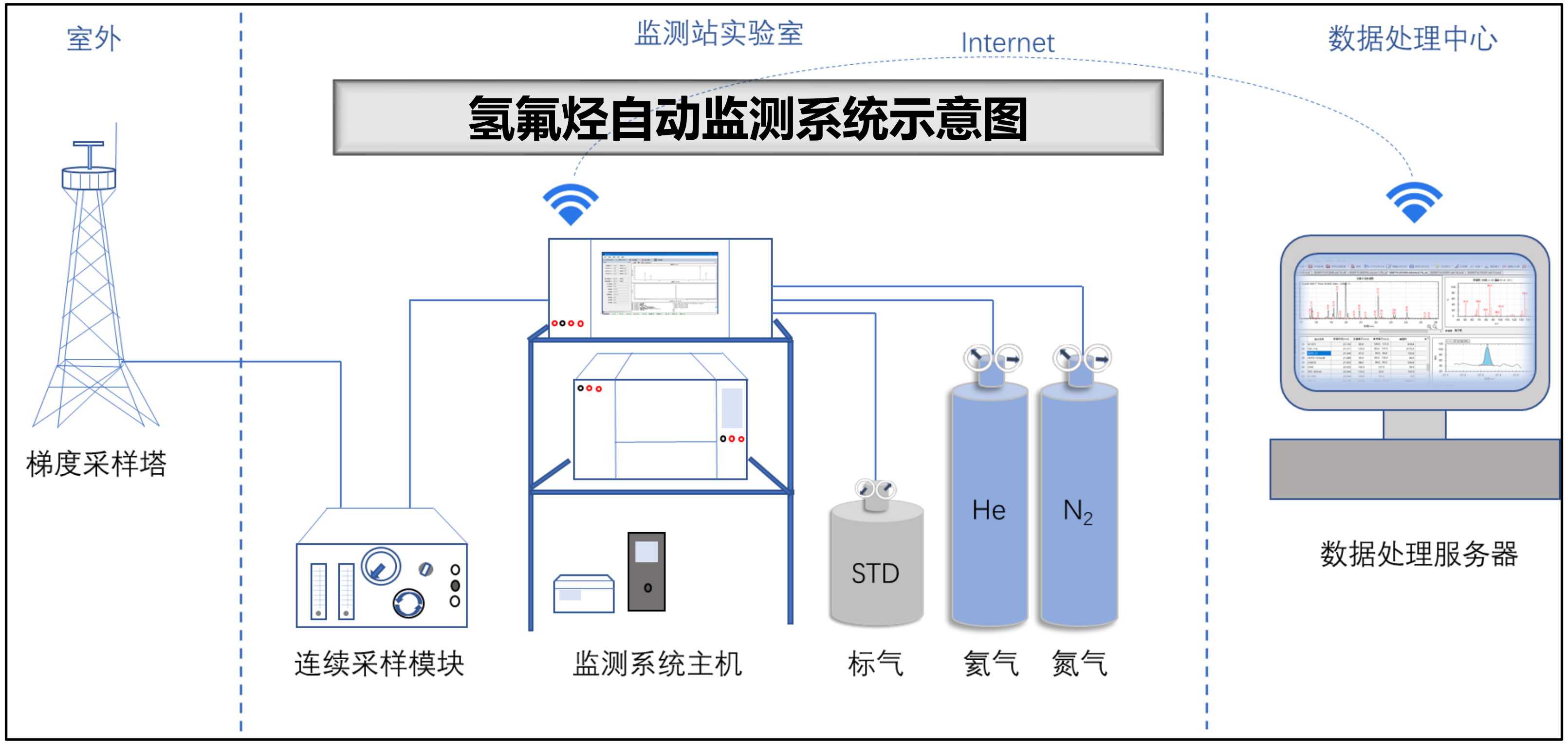


Measurement of CFC-115



含氟温室气体及消耗臭氧层物质全要素在线观测系统





- 进样;
- 样气经过干燥装置半透膜除水;
- 样气经过吸附装置除CO_2;
- 经MFC控制流量进样，捕集阱1升温，将高挥发性组分转移到捕集阱2中;
- 捕集阱2加热，转移目标物种;
- 聚焦进样，高挥发性组分解吸附进入GC-MS进行分析;

含氟温室气体及消耗臭氧层物质全要素在线观测系统

《蒙特利尔议定书》管控的 ODS

- 氟氯碳化物（CFCs）：CFC-11、CFC-12、CFC-13、CFC-112、CFC-113、CFC114、CFC-115
- 氢氟氯碳化物（HCFCs）： HCFC-22、HCFC-141b、HCFC-142b、HCFC-124、 HCFC-133a、HCFC-132b
- 哈龙（Halons）：H-1301、H-1211、H-2402
- 四氯化碳、甲基氯仿（三氯乙烷）、甲基溴

《京都议定书》管控的含氟温室气体

- 氢氟烃（HFCs）： HFC-32、HFC-23、HFC-125、HFC-134a、HFC-152a、 HFC-227ea、HFC-143a、HFC-236fa、HFC-365mfc、HFC-245fa、HFC-4310mee
- 全氟化碳（PFCs）：CF4、PFC-116、PFC-218、PFC-318、C_4F_{10}、C_6F_{14}
- SF_6、NF_3

其他

- 甲烷卤化物：CH_3Cl、CH_2Cl_2、$CHCl_3$、CH_2Br_2、$CHBr_3$
- 三氯乙烯（PCE）、四氯乙烯（TCE）、硫酰氟 SO_2F_2、羰基硫（COS）
- 不饱和氟化物：HFO-1234yf、HFO-1234zeE、HCFO-1233zdE

监测精度

- 20 ppt 以上物种：优于 1%
- 1~20 ppt 物种：1%~3%
- 0.1~1 ppt 物种：3%~10%

检出限

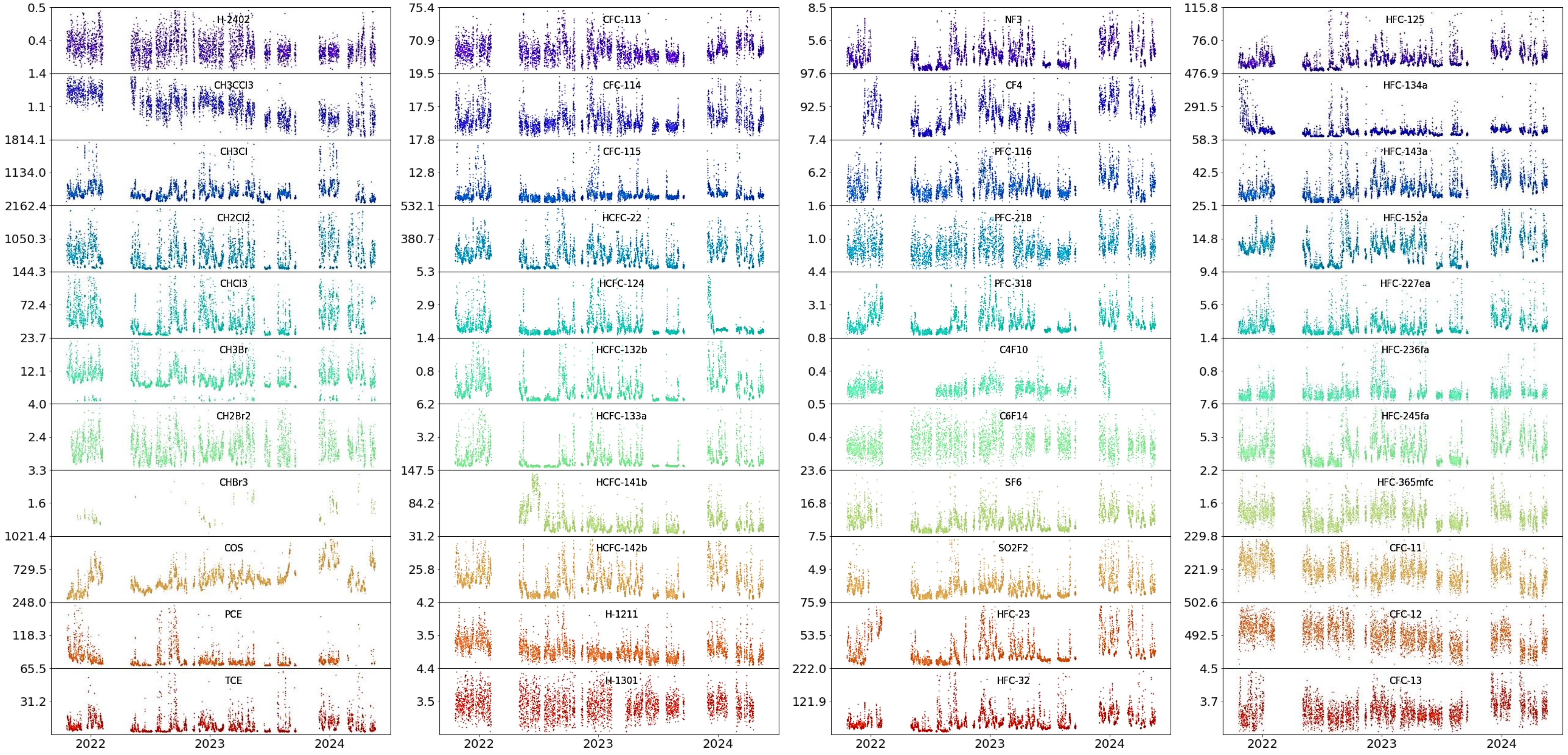
- 优于 0.1 ppt

浓度范围

- 0.1 ppt ~ 1 ppm

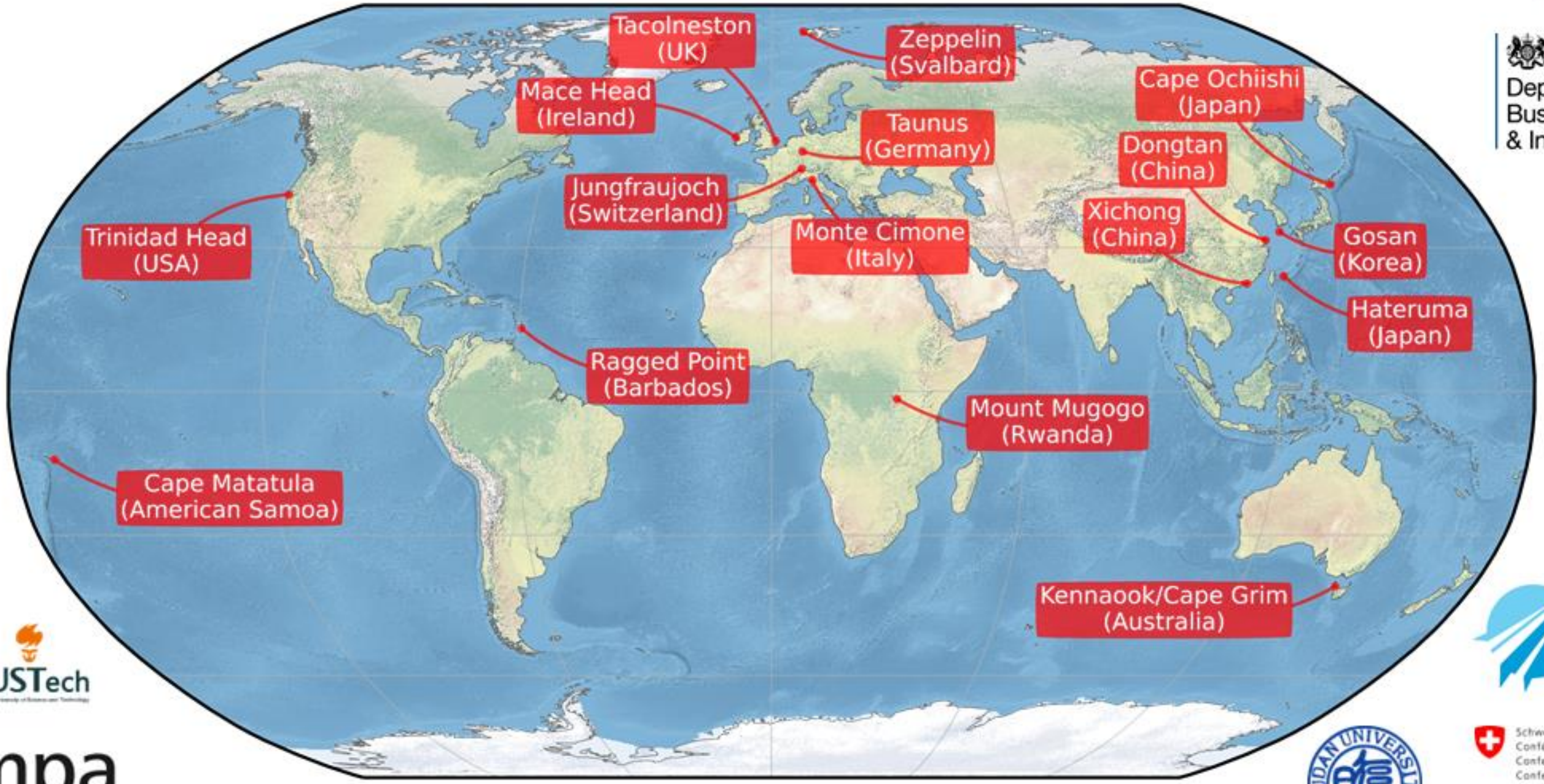
2021-2024 深圳西涌观测汇总

[单位 ppt]

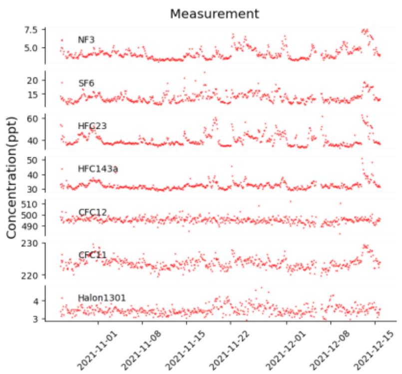


西涌站点（XCG）加入AGAGE全球监测网络

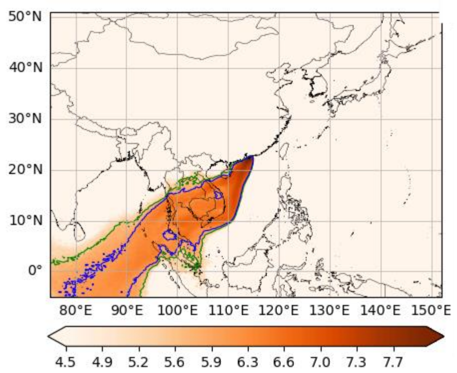
The Advanced Global Atmospheric Gases Experiment



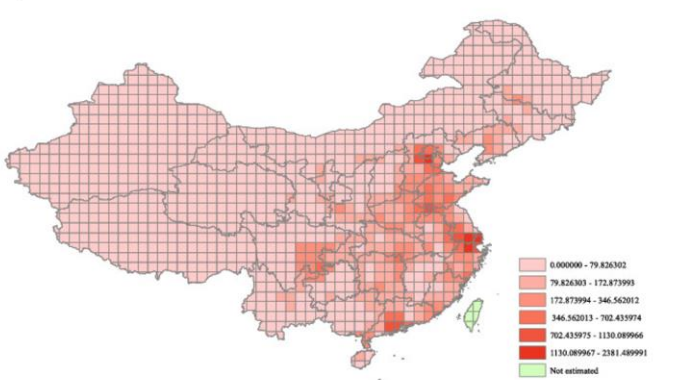
“自上而下”的排放源反演框架



加强观测浓度

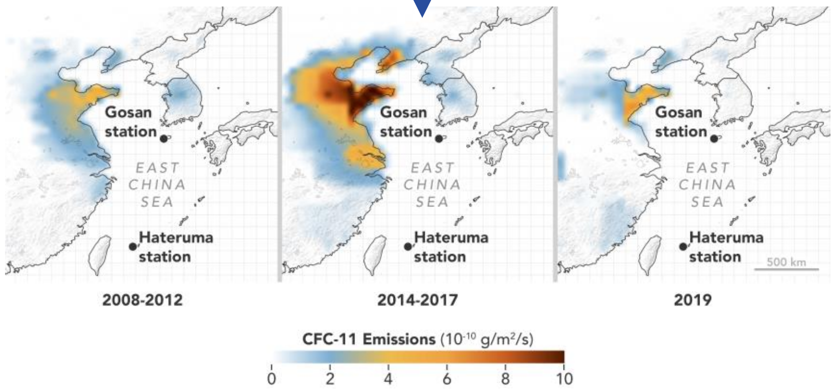


敏感性矩阵分布



先验排放源

贝叶斯反演 （若干参数）



优化后的排放分布 (Park *et al.*, *Nature*,2021)

线性关系公式: $y = Mx + \varepsilon$

y ：观测值向量
M：敏感性矩阵
x ：区域排放量
ε ：残差

建立代价函数:

$$J(x_{post}) = \frac{1}{2}(x_{post} - x_{prior})^T B^{-1}(x_{post} - x_{prior}) + \frac{1}{2}(Mx_{post} - y_o)R^{-1}(Mx_{post} - y_o)$$

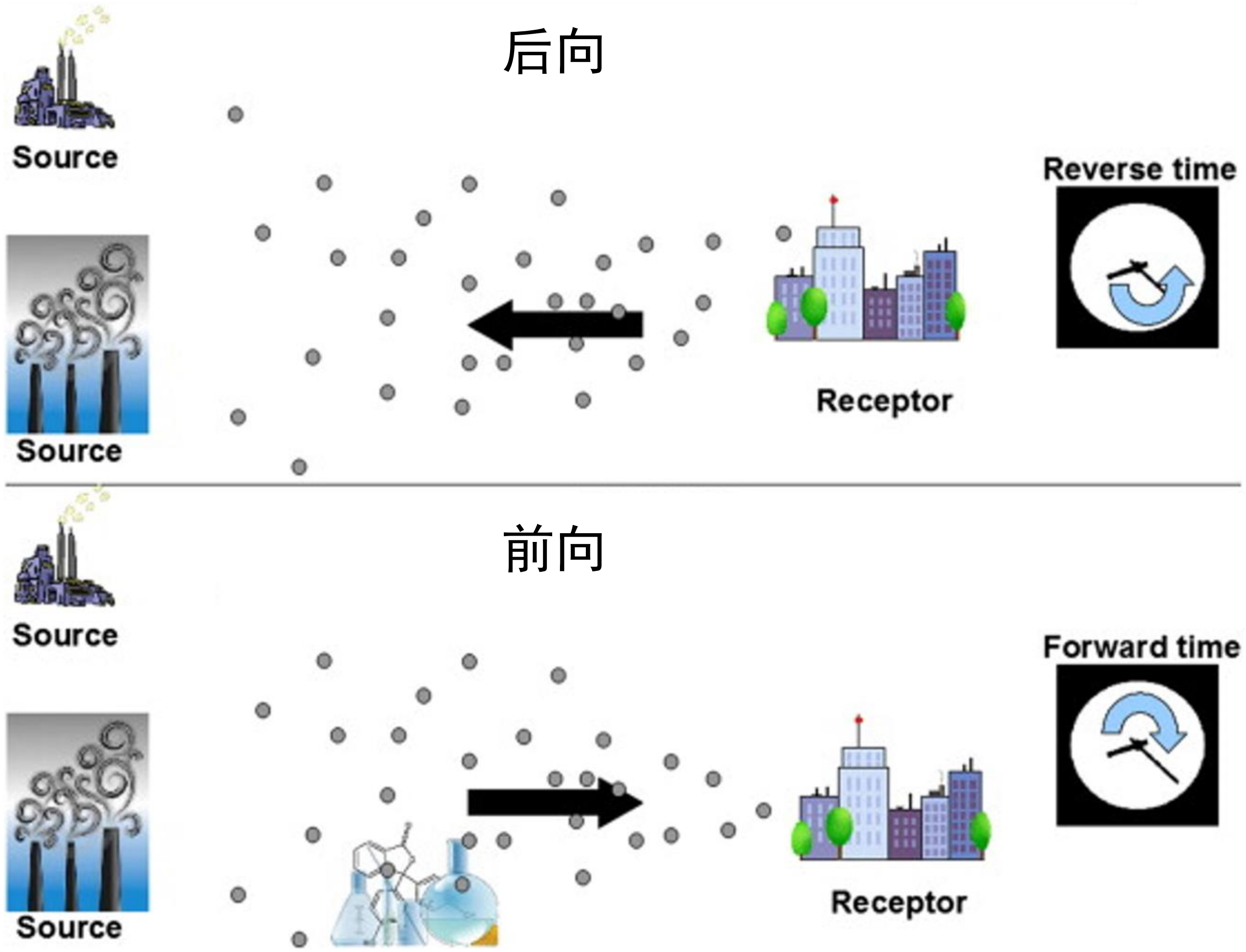
代价函数最小化

$$\nabla_x J(x_{post}) = 0$$

求解获得后验排放量:

$$x_{post} = x_{prior} + BM^T(MBM^T + R)^{-1}(y_o - Mx_{prior})$$

拉格朗日粒子模式

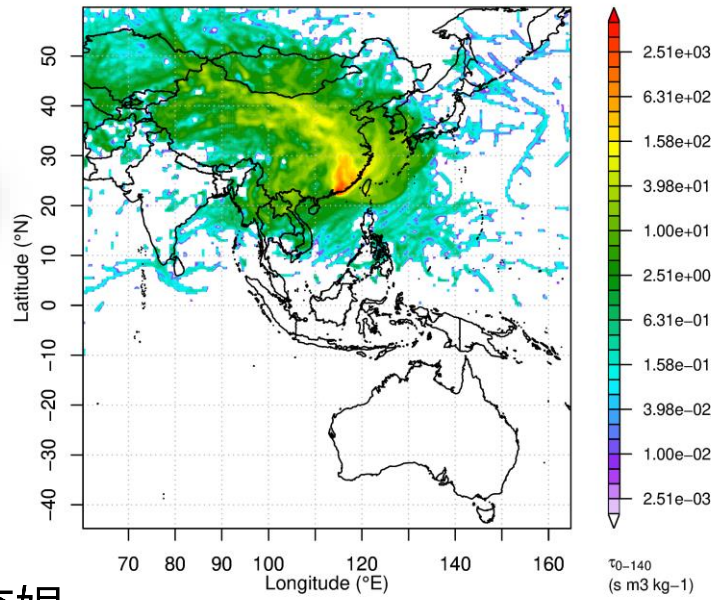


到达受体点的粒子可通过
后向模拟追溯其轨迹来源

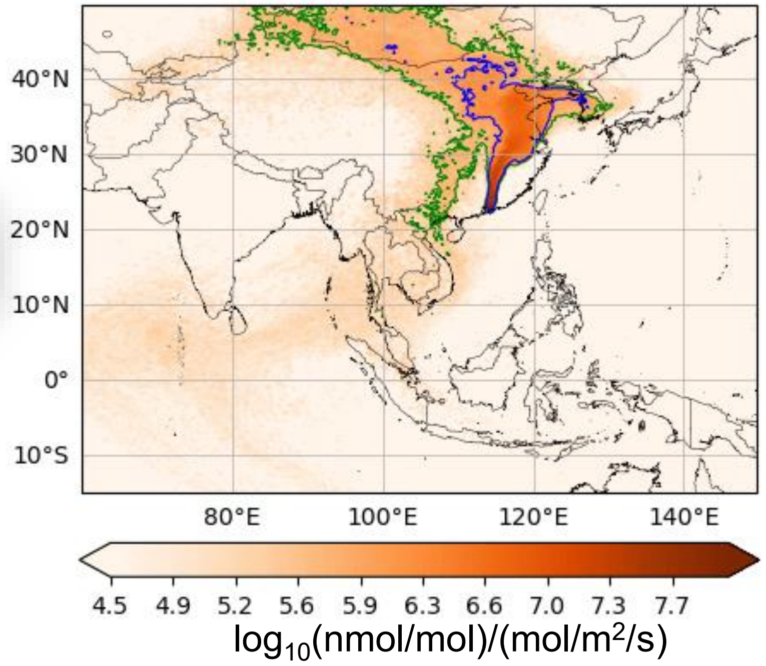
化学反应过程以及污染物浓度
可以通过前向模拟进行计算

拉格朗日粒子模式搭建

- 模式: **FLEXPART**
- 粒子释放量: 每3小时释放50000个粒子，后向运行30天
- 气象数据: FNL
- 气象数据分辨率: 6-hourly, 1° × 1°
- 模拟区域设置:
  - 主网格: -44.75S~59.75N, 60.25E~165.75E, 0.5°×0.5°, 210×210
  - 嵌套网格:15.05N~39.95N, 100.05E~124.95E, 0.1°×0.1°, 250×250
- 释放点坐标: 22.4831N,114.5572E,140m.

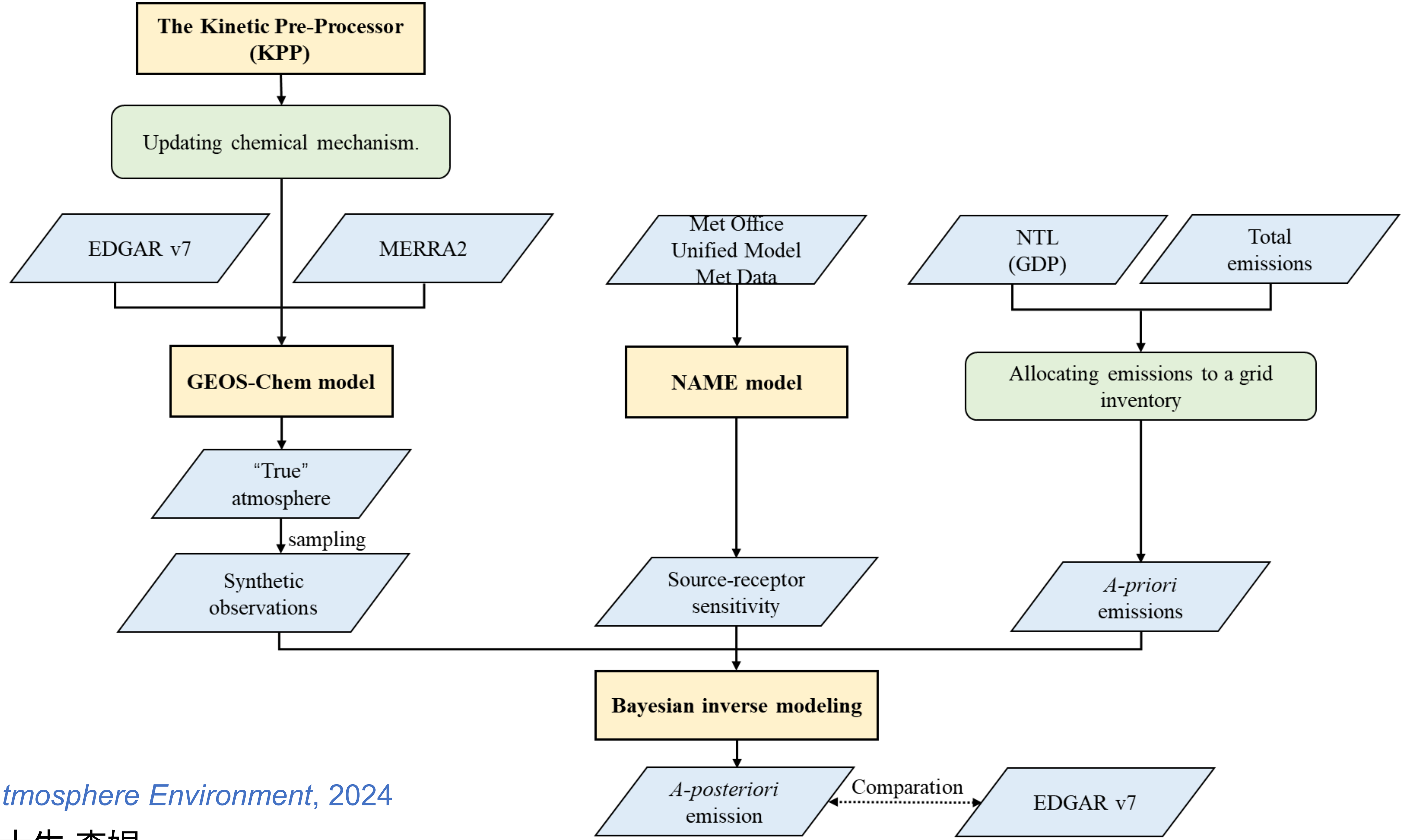


- 模式: **NAME**
- 粒子释放量: 每3小时释放10000个粒子，后向运行30天
- 气象数据: NWP_Global
- 气象数据分辨率: 3-hourly, 0.352° × 0.234°
- 模拟区域设置:
  - 网格: -15S~50N, 60E~150E
- 释放点坐标: 22.4831N,114.5572E,140m



南科大博士生 李娟

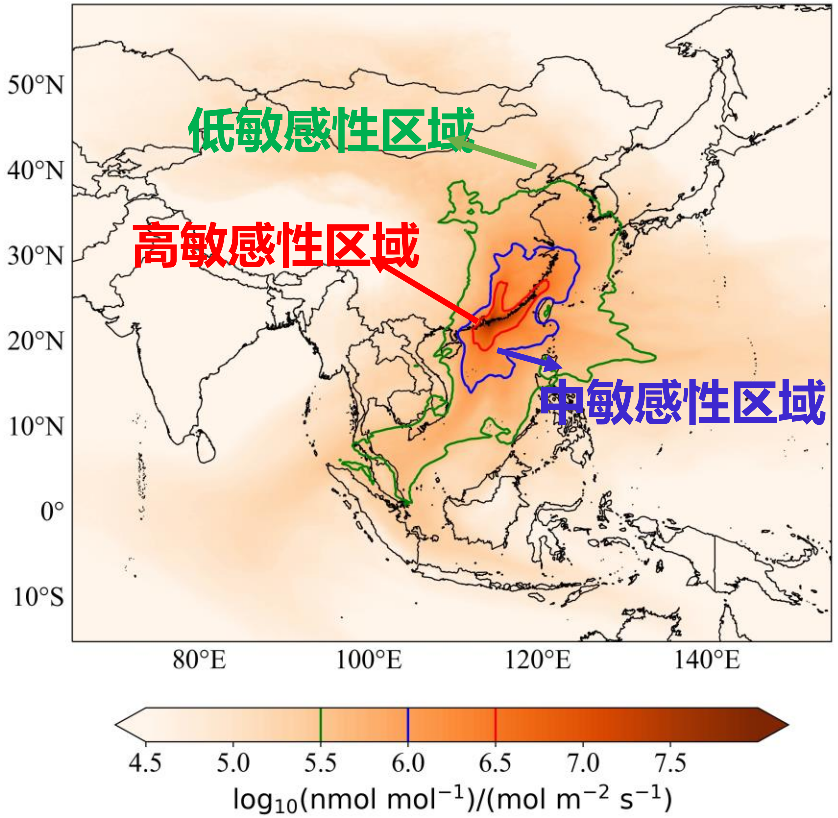
观测系统模拟实验（OSSE）

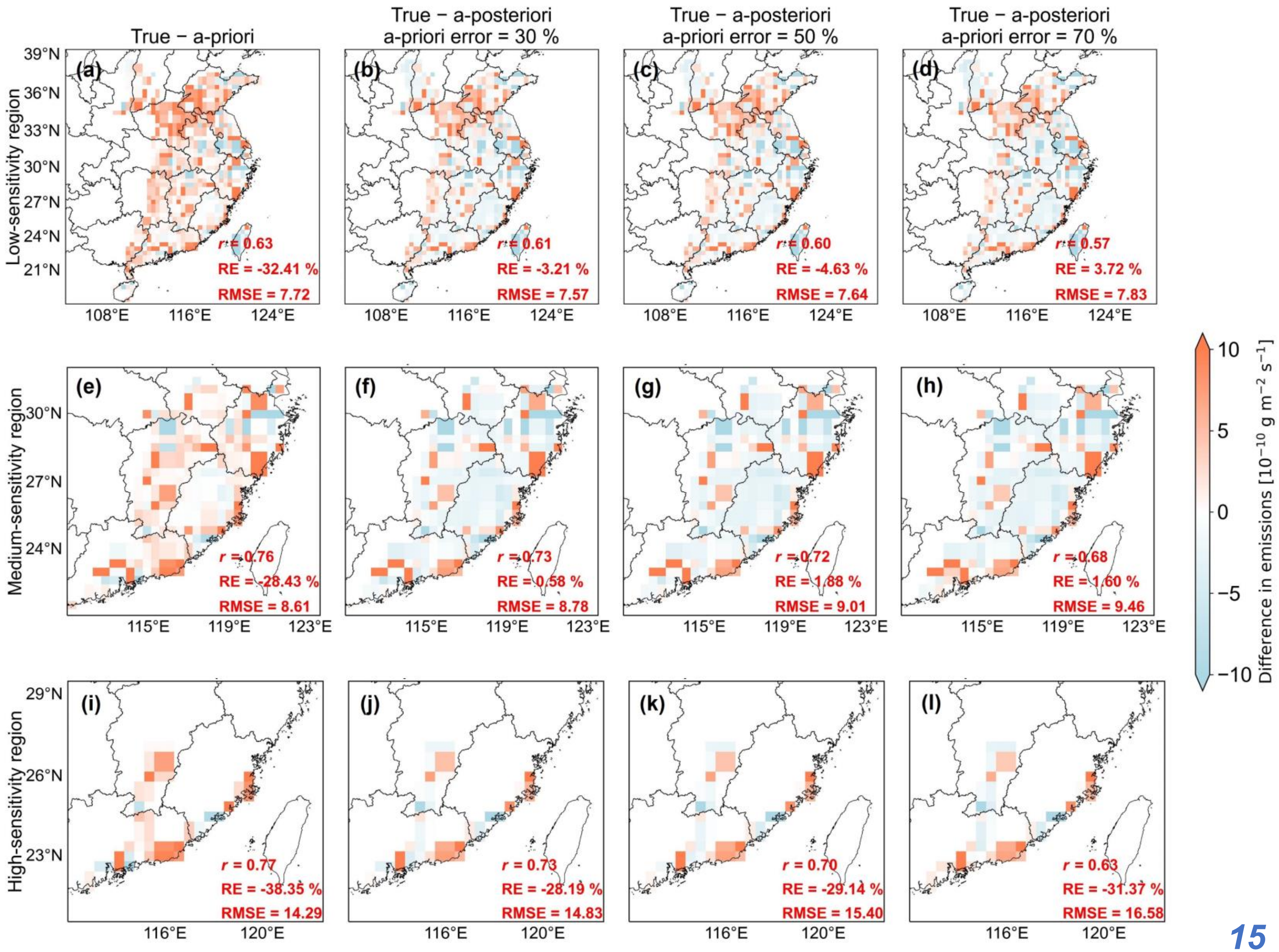


Li et al., *Atmosphere Environment*, 2024

南科大博士生 李娟

评估关键反演参数对后验排放的影响





- 平衡空间覆盖范围和反演误差，选择适当的敏感性区域进行排放反演
- 准确的先验空间分布信息，有助于提高后验排放的空间分布准确性
- 高分辨率的反演网格，减少后验排放的偏差
- 平衡仪器误差和先验误差，有助于降低后验排放估计的误差

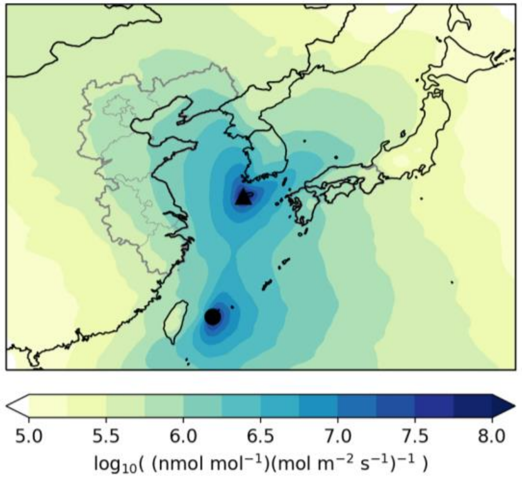
南科大博士生 李娟

Li et al., *Atmosphere Environment*, 2024

欧拉框架下的含氟温室气体模拟

Lagrangian model | **Eulerian model**

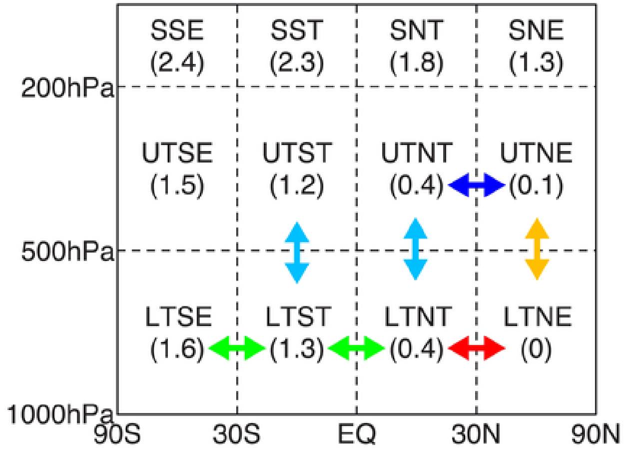
NAME & FLEXPART



Rigby et al., 2019, Nature

- Local scale
- Shorter chemical characterization

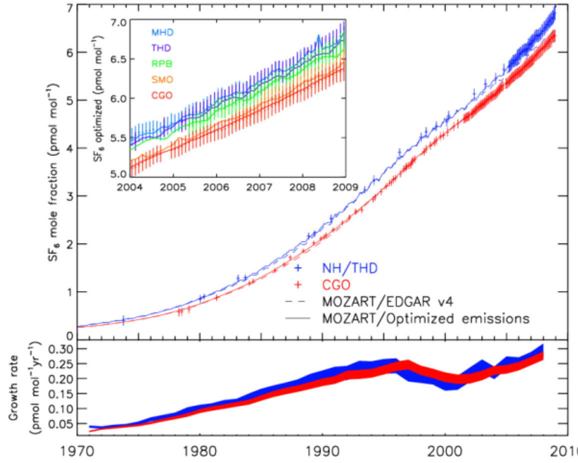
12-box model



Yang et al., 2019, GRL

- Global/Hemispheric scale
- Prescribed atmospheric lifetimes
- Non-real-time dynamics

TOMCAT &MOZART



Rigby et al., 2010, ACP

- Considering some CFCs and HCFCs, but not all F-gases

Long-term simulations
- Emission policy response
- Climate response

Short-lived F-gas modeling

3D CTM advantages
- Exploring the chemical effects
- Spatial representation
- Representation of large-scale dynamics

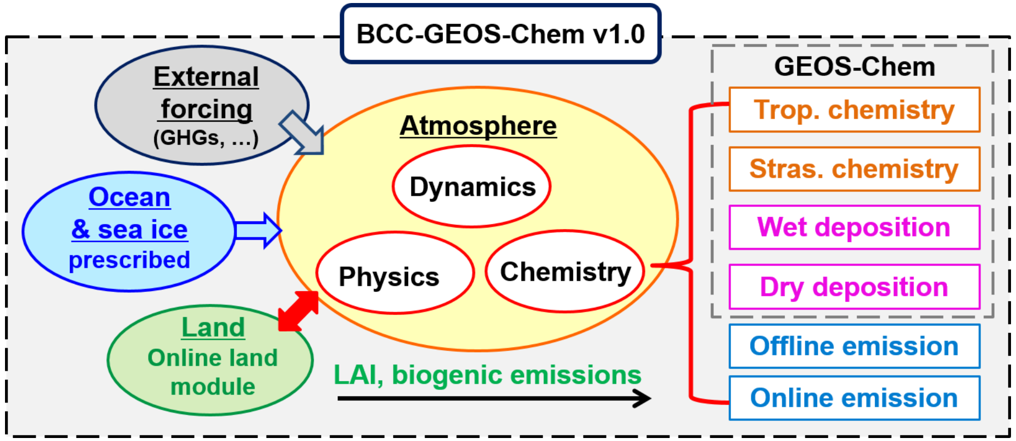
GEOS-Chem模型

GEOS-Chem is a state-of-the-science global 3D Eulerian CTM

1. Park *et al.* [2004] for aerosol chemistry;
2. Y.X. Wang *et al.* [2004] for the nested model;
3. Henze *et al.* [2007] for the model adjoint;
4. Selin *et al.* [2007] for the mercury simulation;
5. Trivitayanurak *et al.* [2008] for TOMAS aerosol microphysics;
6. Yu and Luo [2009] for APM aerosol microphysics;
7. Eastham *et al.* [2014] and for stratospheric chemistry;
8. Keller *et al.* [2014] and Lin *et al.* [2021] for HEMCO;
9. Long *et al.* [2015] for the grid-independent GEOS-Chem;
10. Prather [2015] for Cloud-J;
11. Eastham *et al.* [2018] for the high-performance GEOS-Chem (GCHP);
12. Hu *et al.* [2018] for GEOS-Chem within the GEOS ESM (GEOS-GC);
13. Lin *et al.* [2020] for GEOS-Chem within WRF (WRF-GC);
14. Zhuang *et al.* [2019] and Zhuang *et al.* [2020] for implementations of GEOS-Chem Classic and GCHP on the cloud;
15. Bindle *et al.* [2021] for the stretched-grid capability in GCHP;
16. Murray *et al.* [2021] for GEOS-Chem driven by GISS GCM fields (GCAP 2.0);
17. Bukosa *et al.* [2023] for the carbon simulation;
18. Lin *et al.* [2023] for KPP 3.0.0 with adaptive auto-reduction solver;
19. Miller *et al.* [2024] for HETerogeneous vectorized or Parallel (HETPv1.0).

https://geos-chem.readthedocs.io/

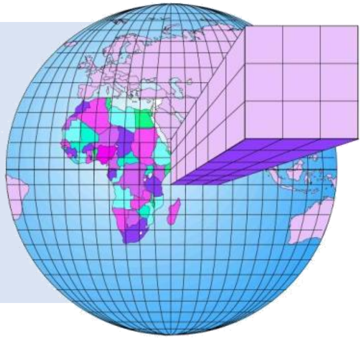
Cutting-edge chemistry



Lu et al., 2020, *GMD*

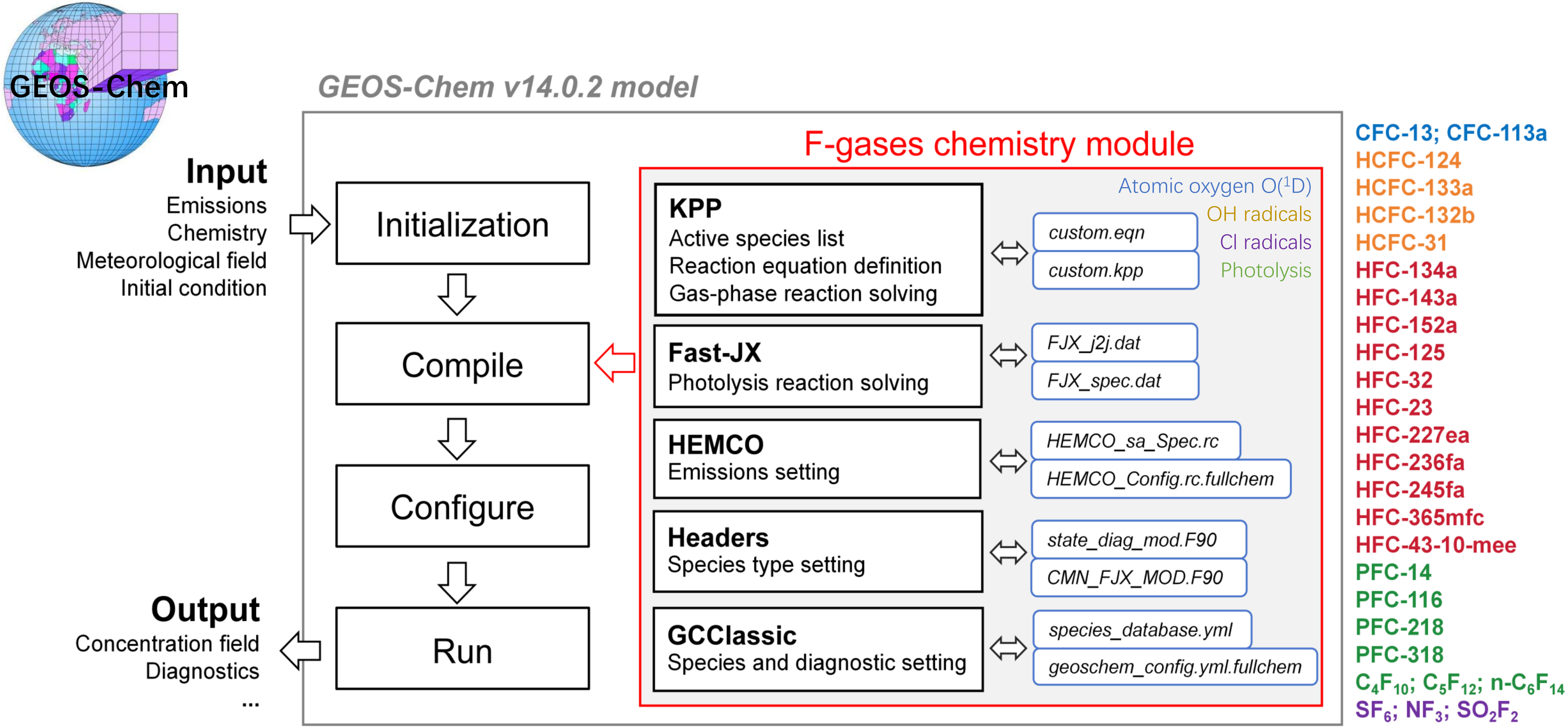
Coupled with Earth science and climate system models

- CFC-11/12/113/114/115
- HCFC-123/141b/142b/22
- HFO-1234yf/1234ze/1233(zd) (E/Z)



Some F-gas chemistry

含氟温室气体欧拉模式搭建



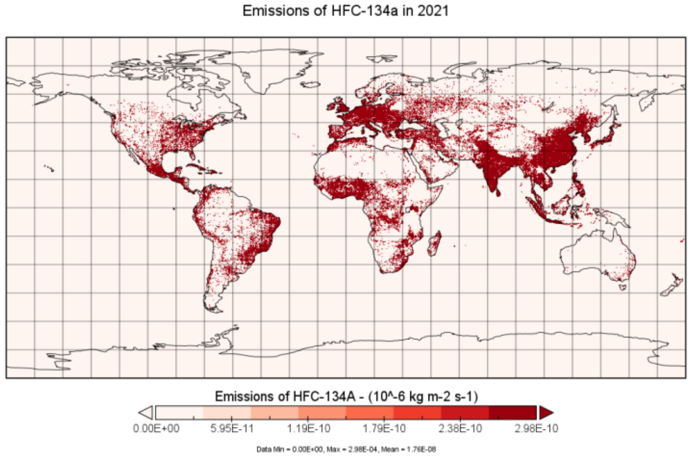
南科大硕士生 李亚莉

含氟温室气体化学模块

添加含氟温室气体化学机理

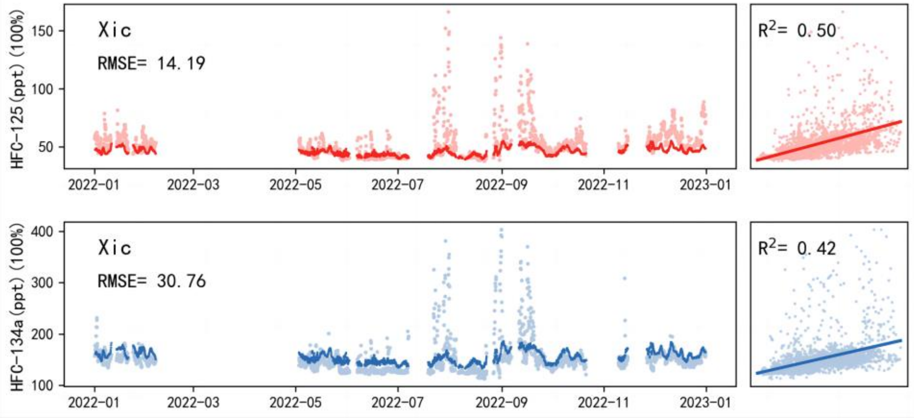
CFCs(3)： CFC-13、CFC-112...
HCFCs(4)： HCFC124、HCFC133a...
HFCs(11)： HFC134a、HFC125...
PFCs(7)： PFC14、PFC116...
HFOs(3)： HFO1234yf...
其他： SF_6、NF_3、SO2F2

Edgar v7.0年排放清单等

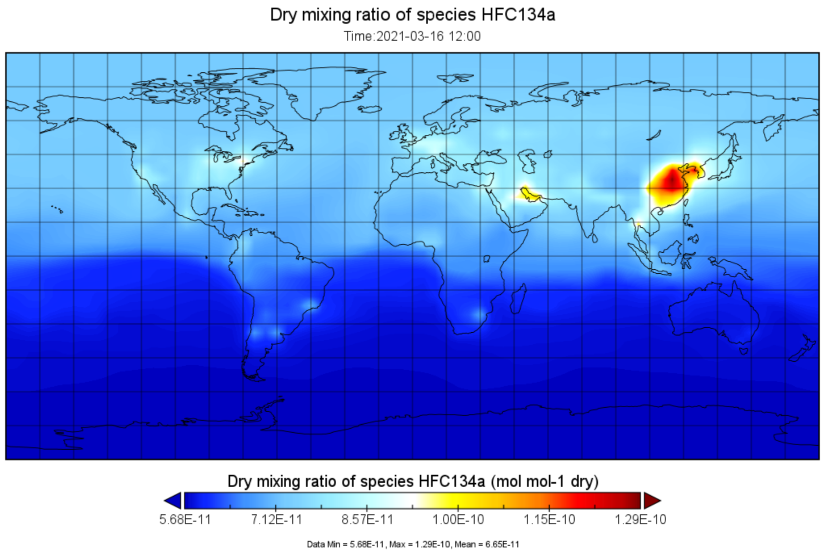


GEOS-chem14.0版本安装
→ 创建运行目录并编译
→ KPP
→ 更新化学机理（→ 添加新物种；→ 编辑化学机理配置文件；→ 重新编译）
→ 重新启动文件添加物种
→ 模拟文件配置
→ 清单输入
→ GEOS-Chem
→ 模拟的大气浓度

GEOS-Chem新物种模拟

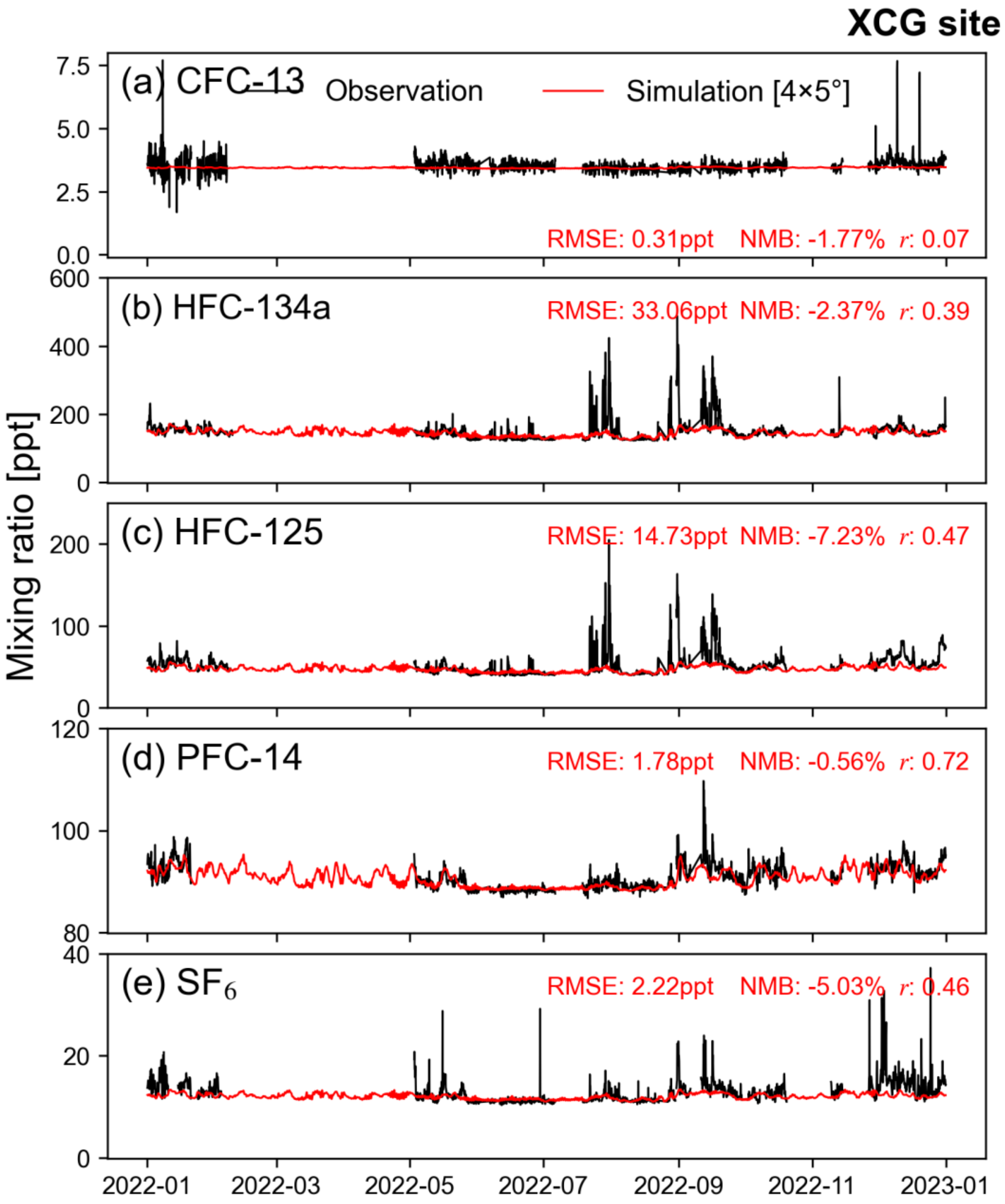


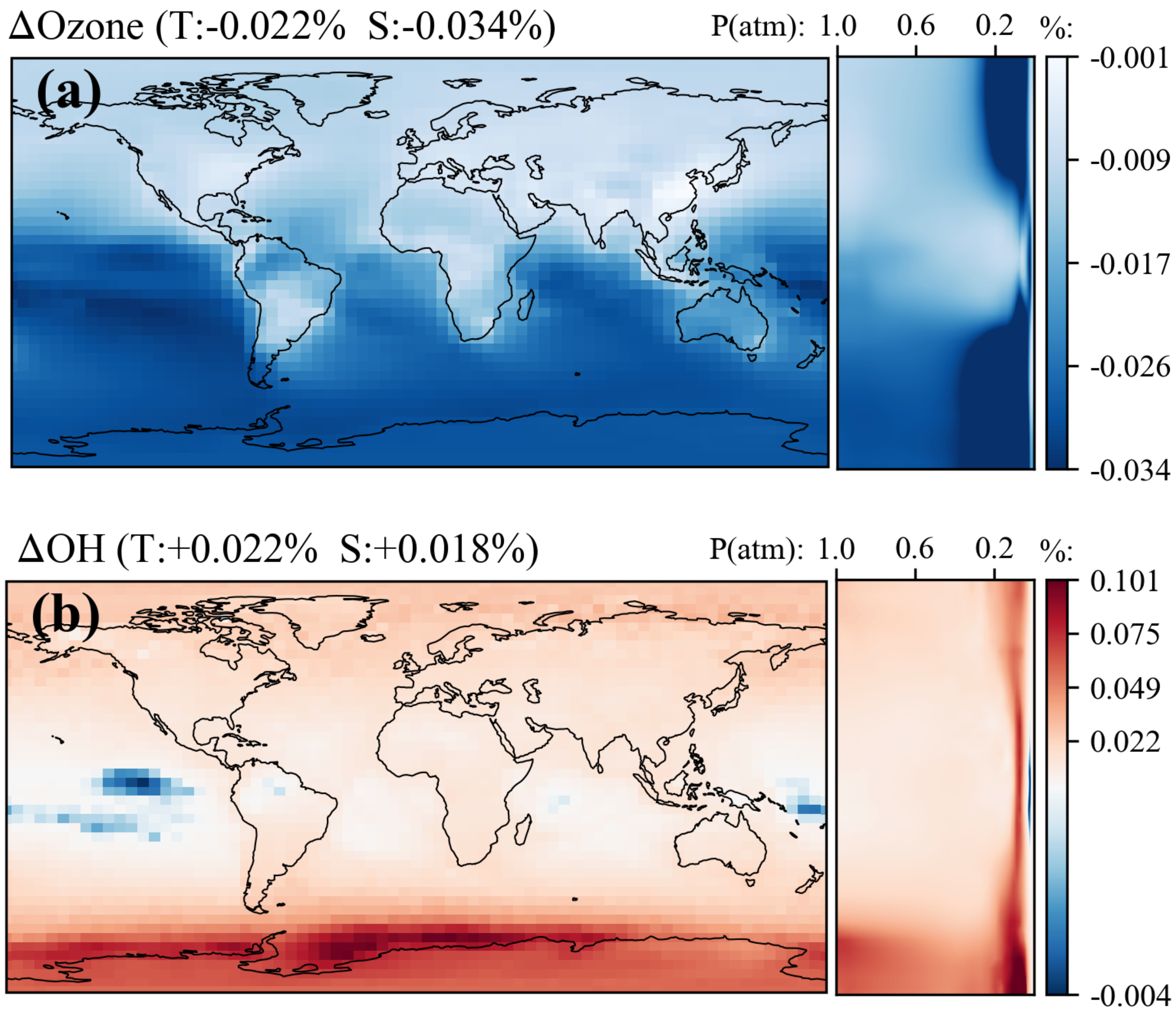
HFC-134a全球模拟浓度结果



南科大硕士生 李亚莉

含氟温室气体模拟评估

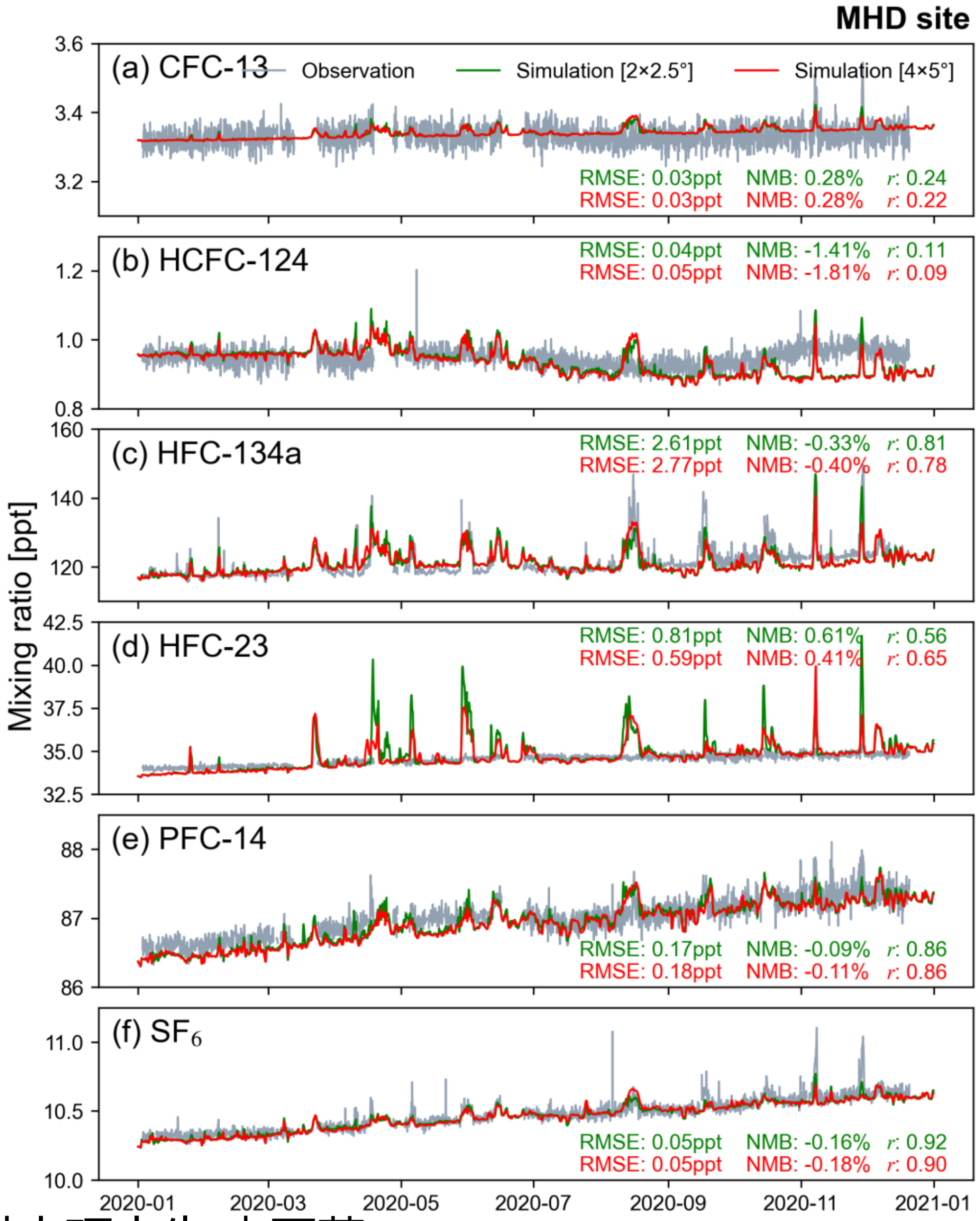


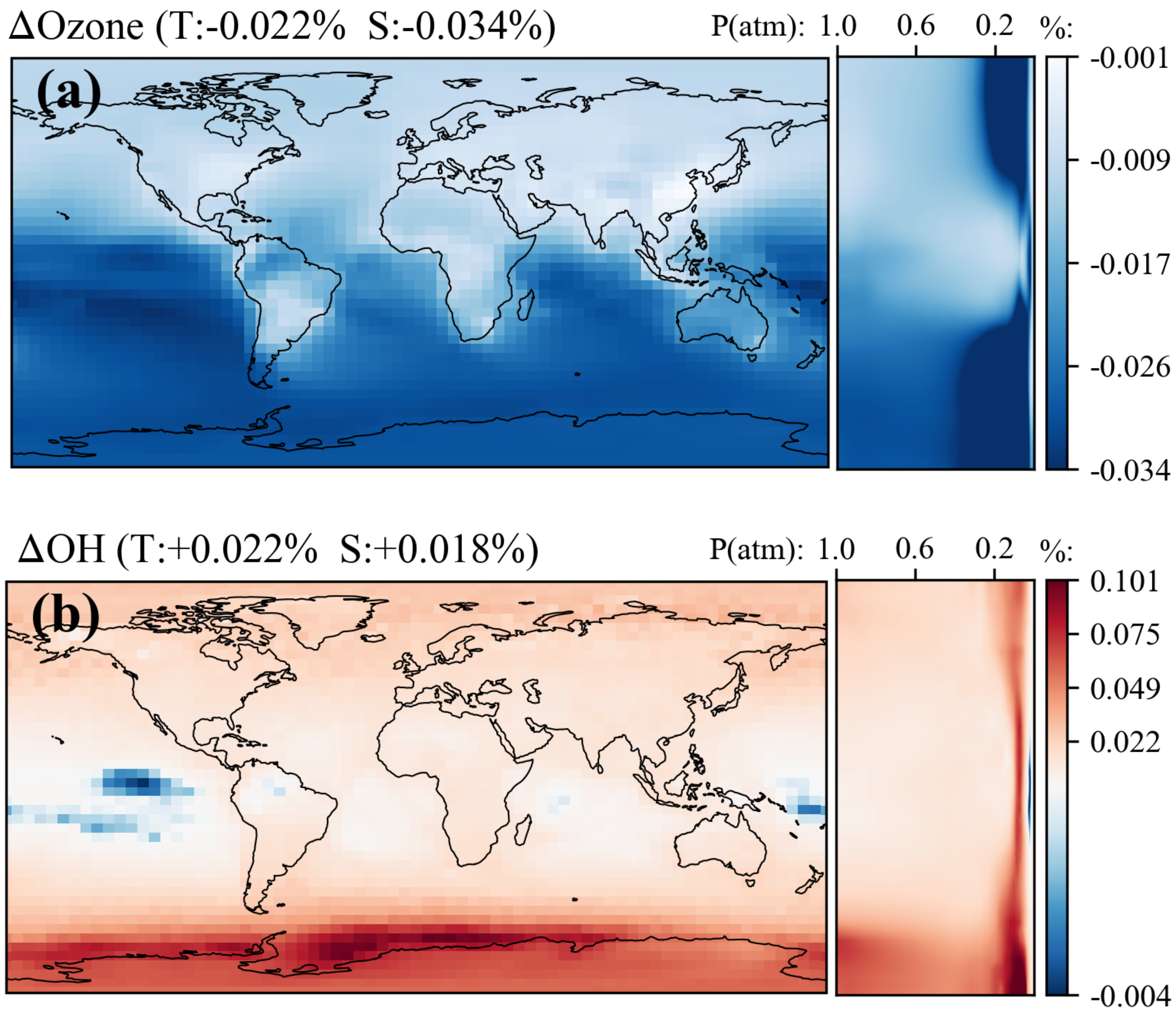


- 捕捉到基线水平及部分污染事件
- 对现有模型臭氧和OH自由基影响较小 (≤ 0.1%)

南科大硕士生 李亚莉

含氟温室气体模拟评估

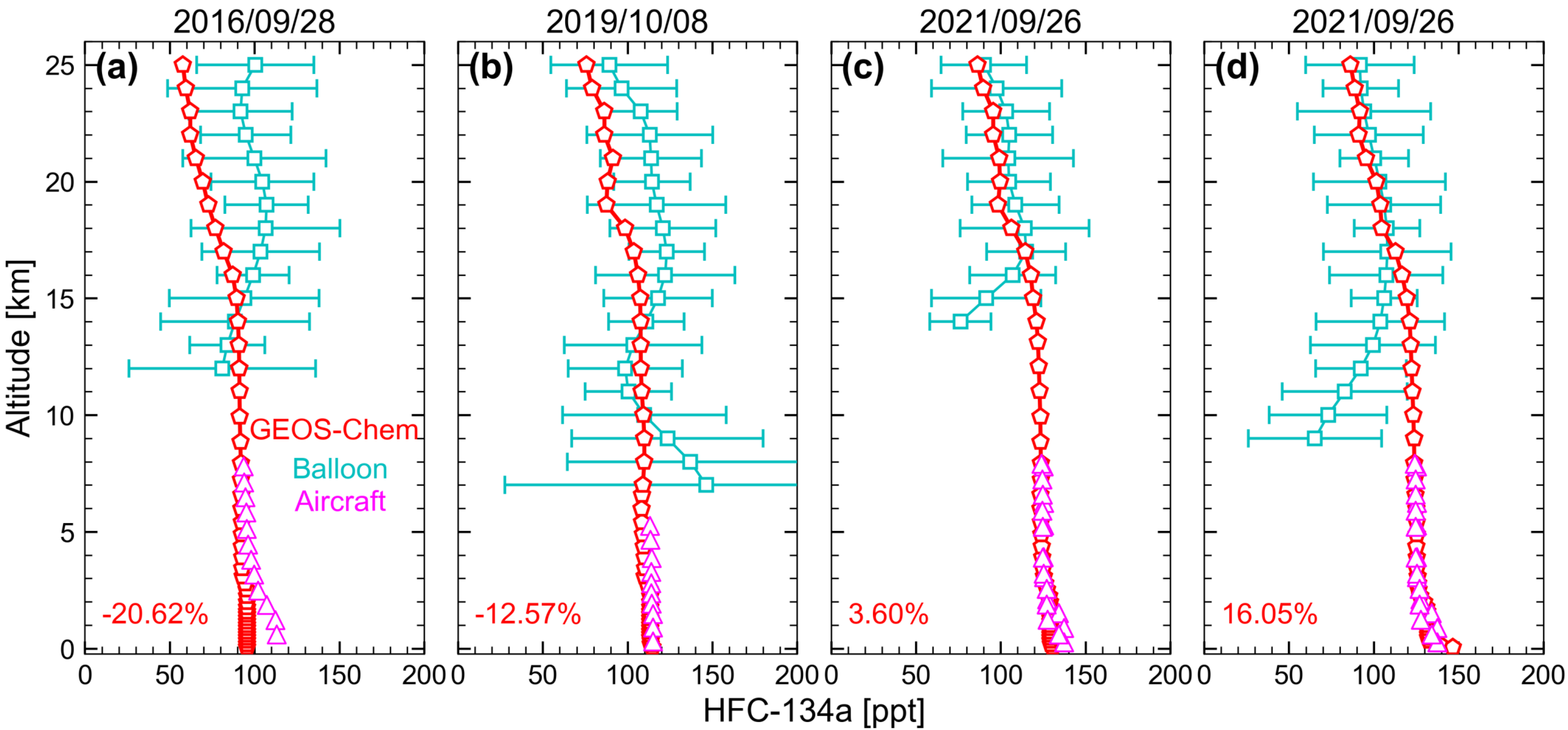




- ➢ 捕捉到基线水平及部分污染事件
- ➢ 对现有模型臭氧和OH自由基影响较小 (≤ 0.1%)

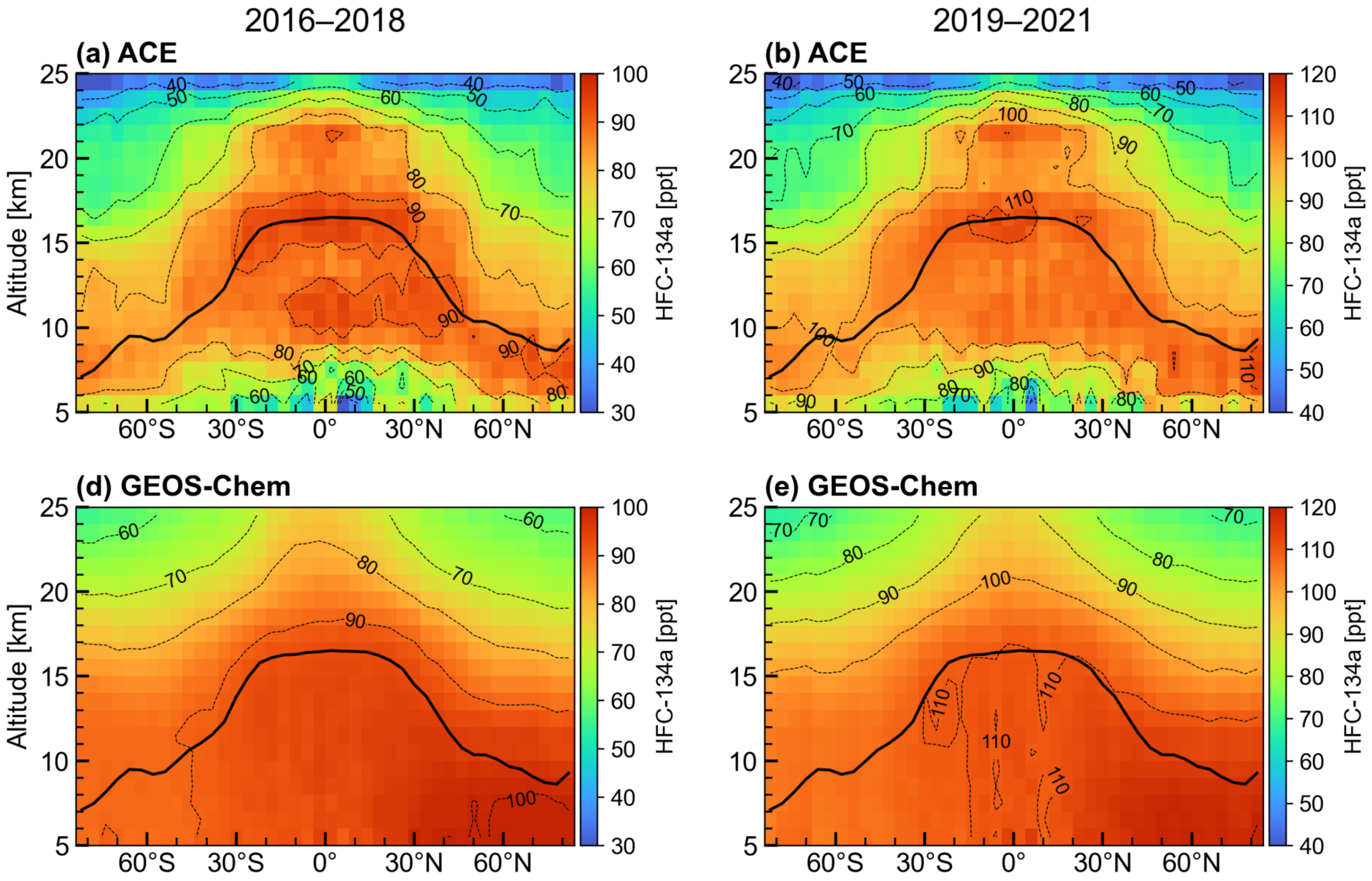
南科大硕士生 李亚莉

含氟温室气体模拟评估



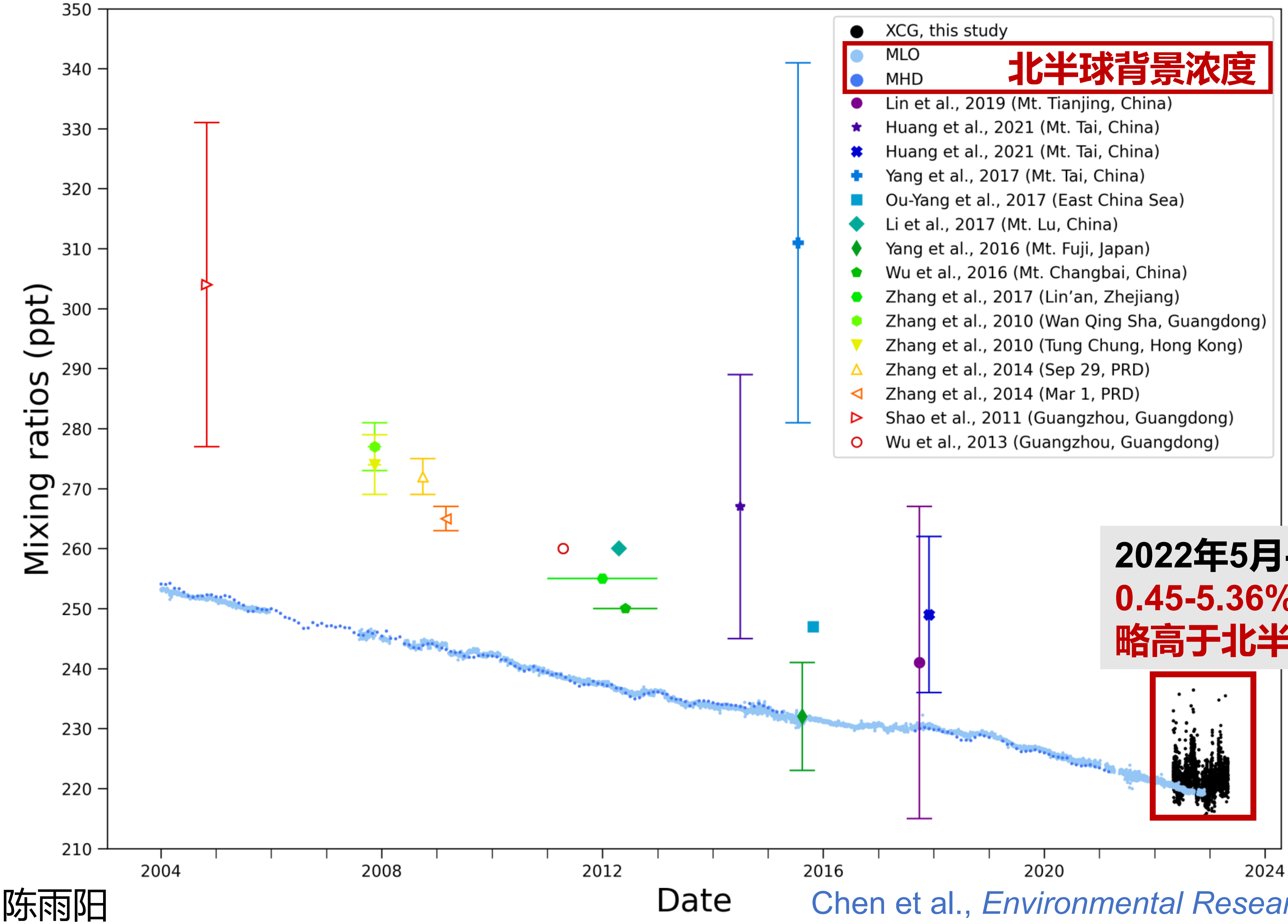
南科大硕士生 李亚莉

含氟温室气体模拟评估



南科大硕士生 李亚莉

西涌观测与国内外数据对比（CFC-11）

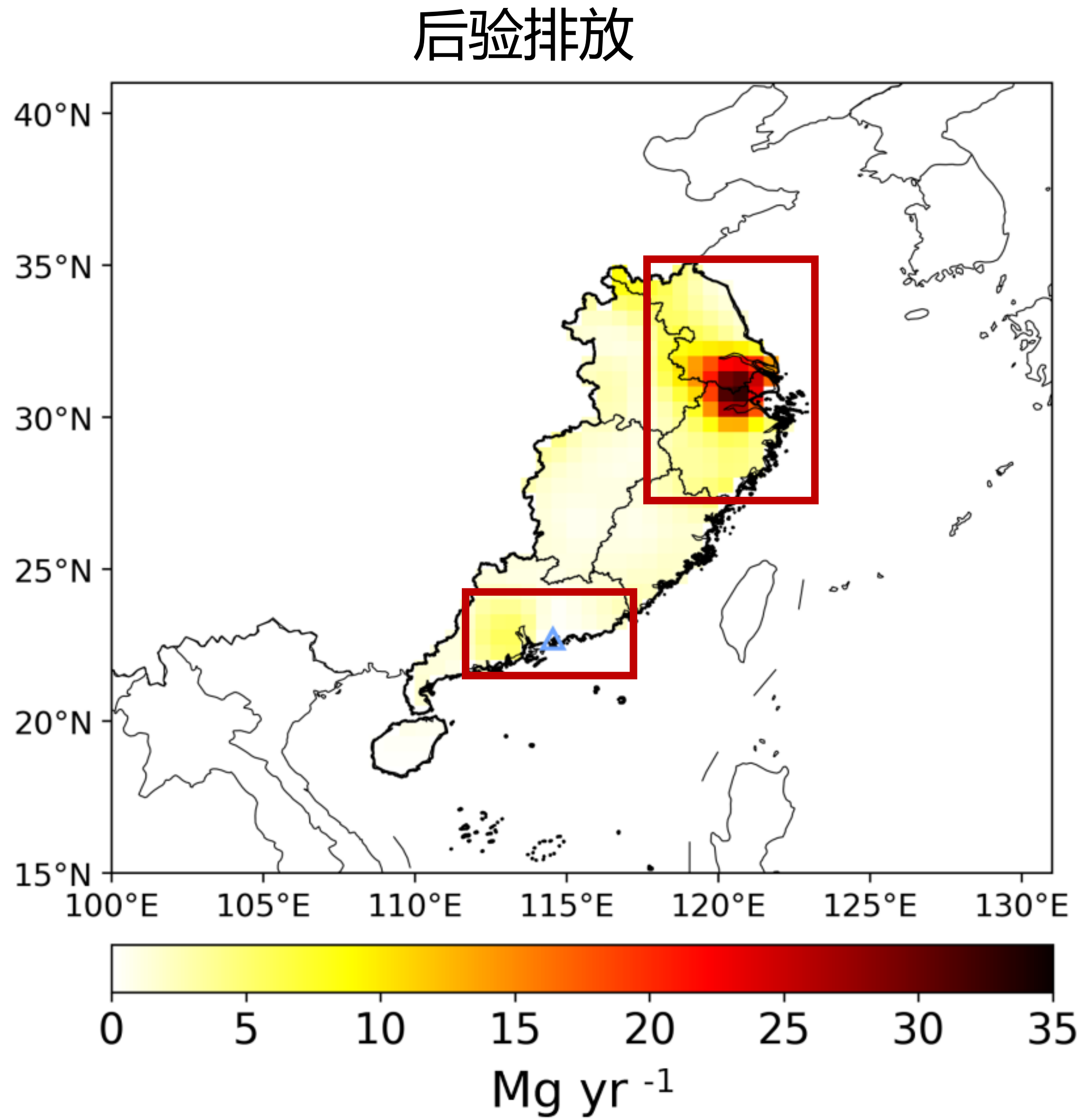


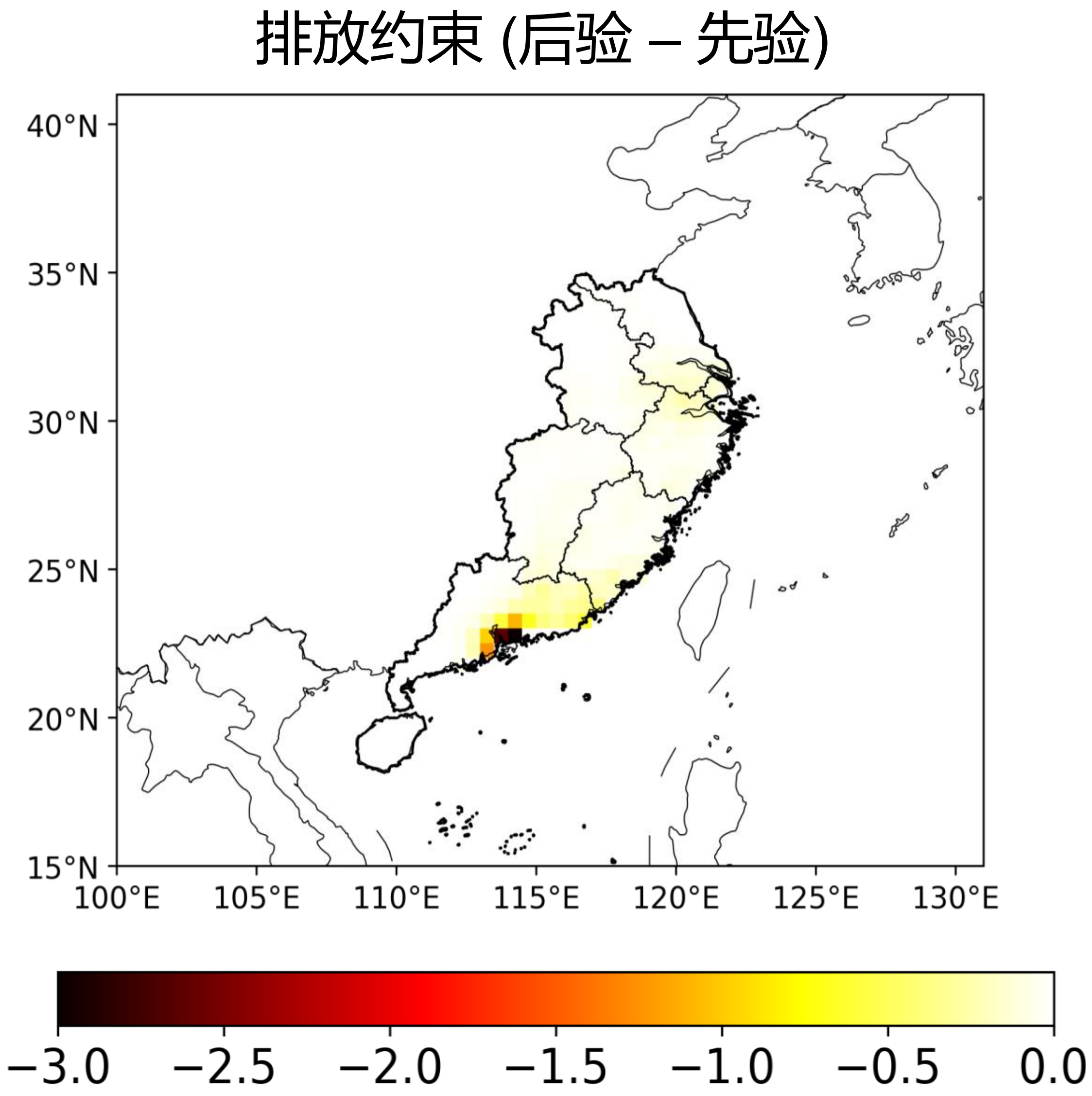
2022年5月-2023年4月
0.45-5.36%
略高于北半球背景浓度

南科大博士生 陈雨阳

Chen et al., *Environmental Research Letters*, 2024

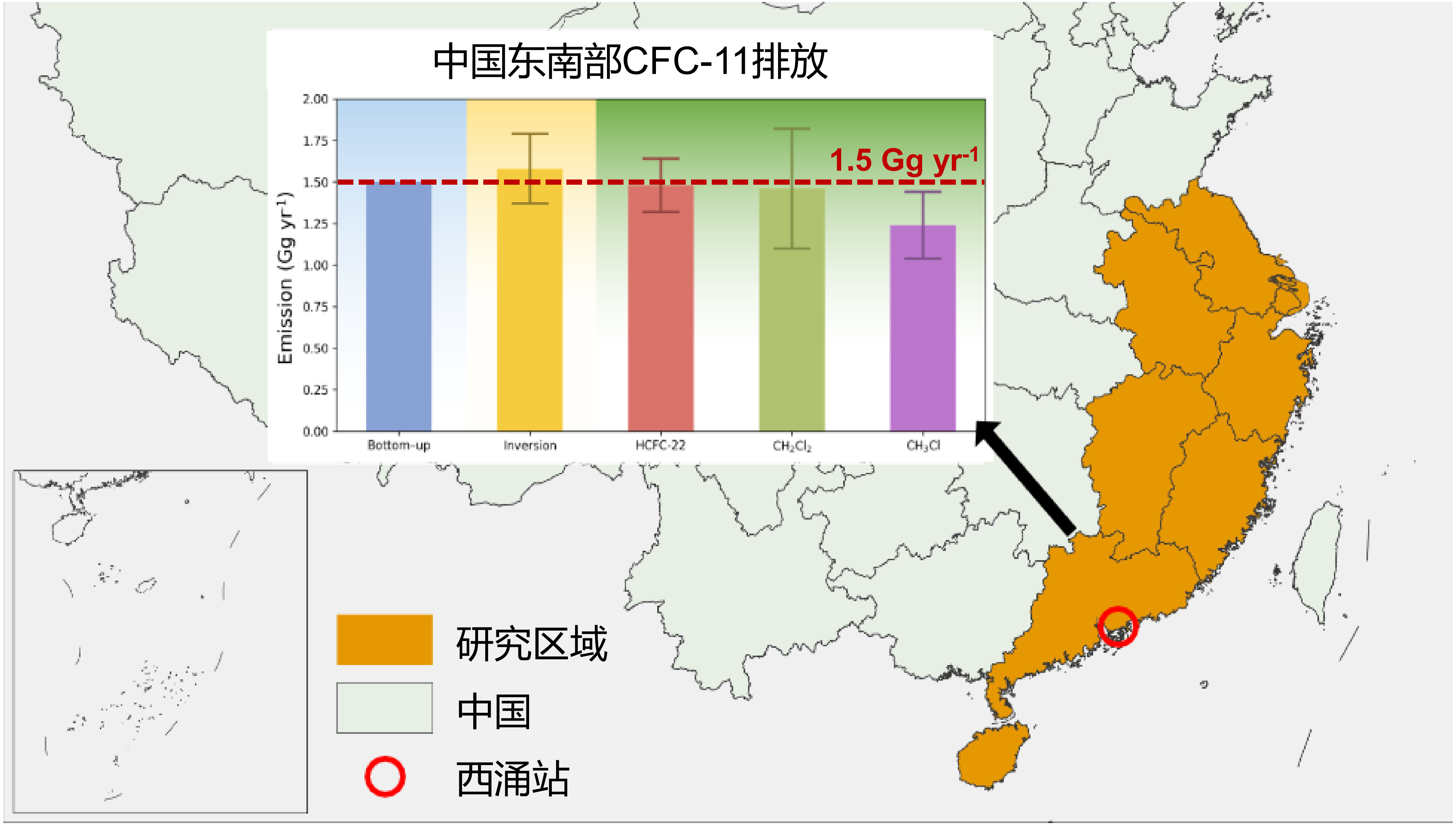
基于西涌观测的CFC-11排放反演





南科大博士生 陈雨阳

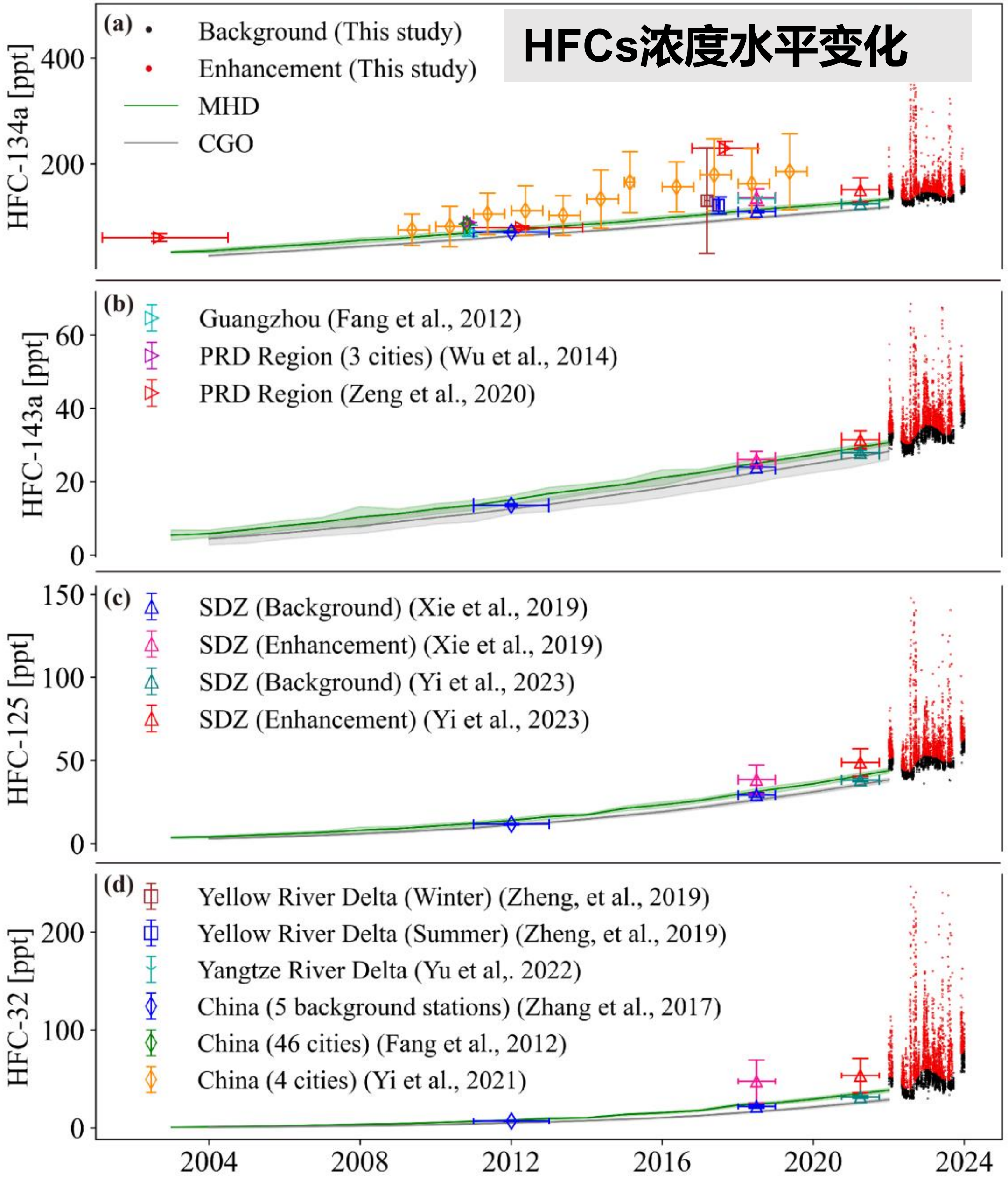
CFC-11的排放，已回落到2010前水平



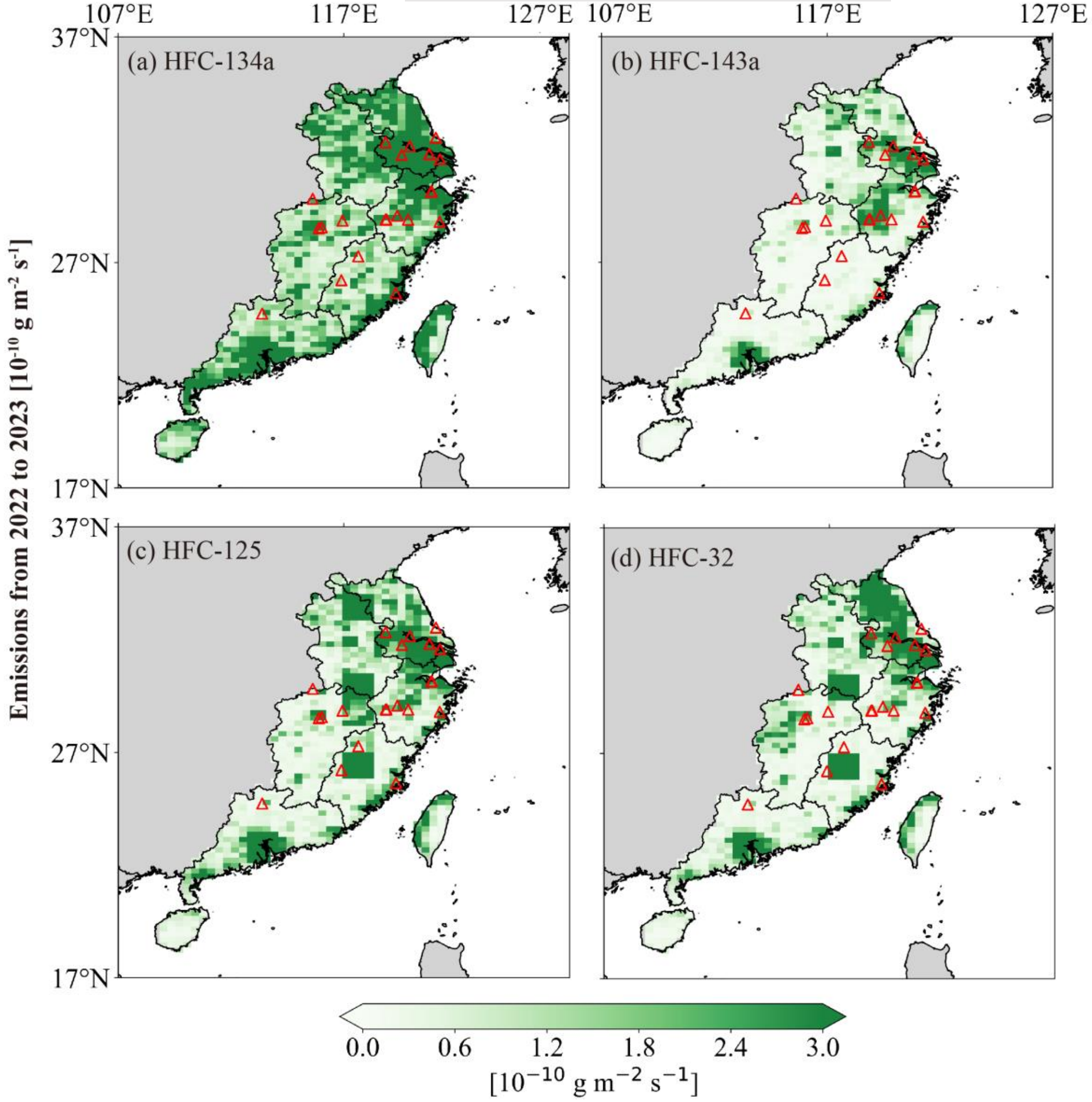
氢氟碳化合物的浓度与排放

南科大博士生 李娟

HFCs浓度水平变化

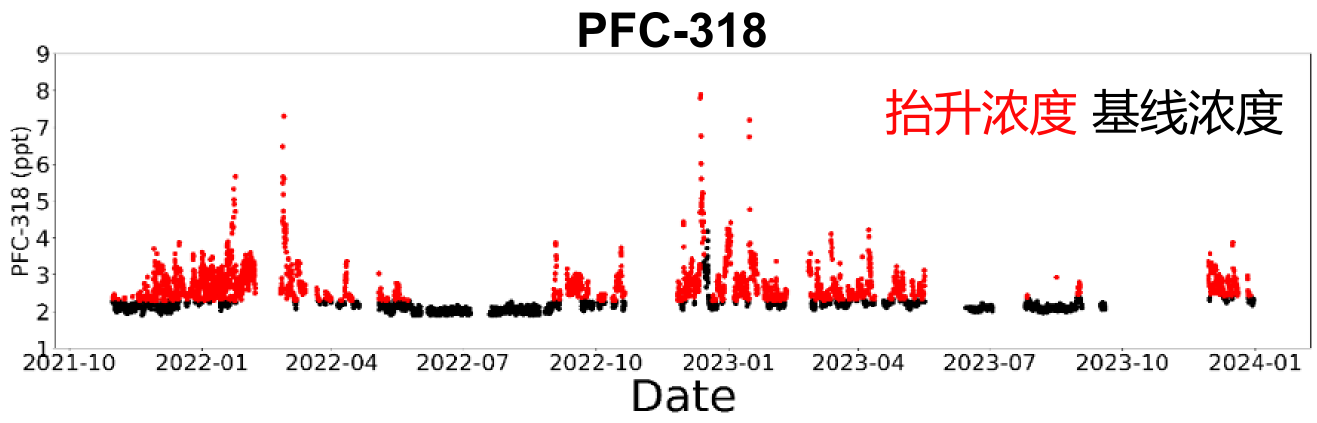


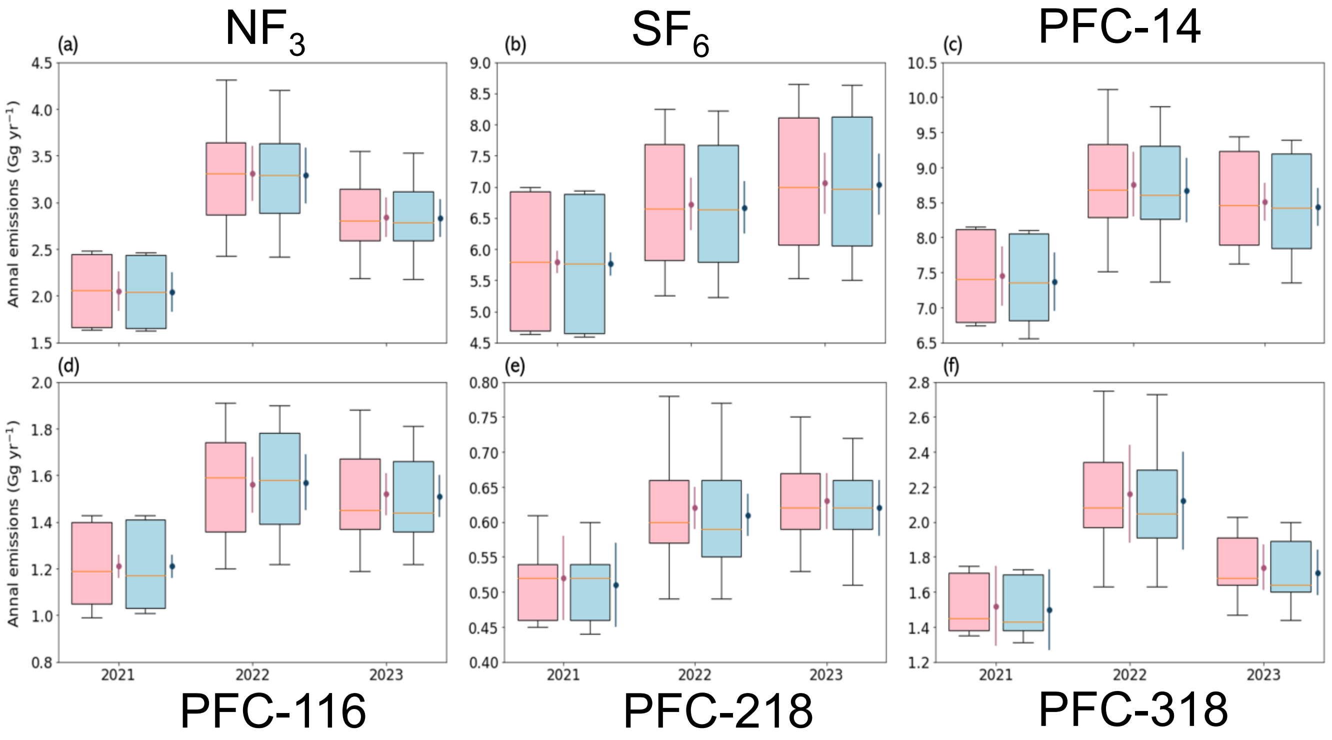
后验HFCs排放强度

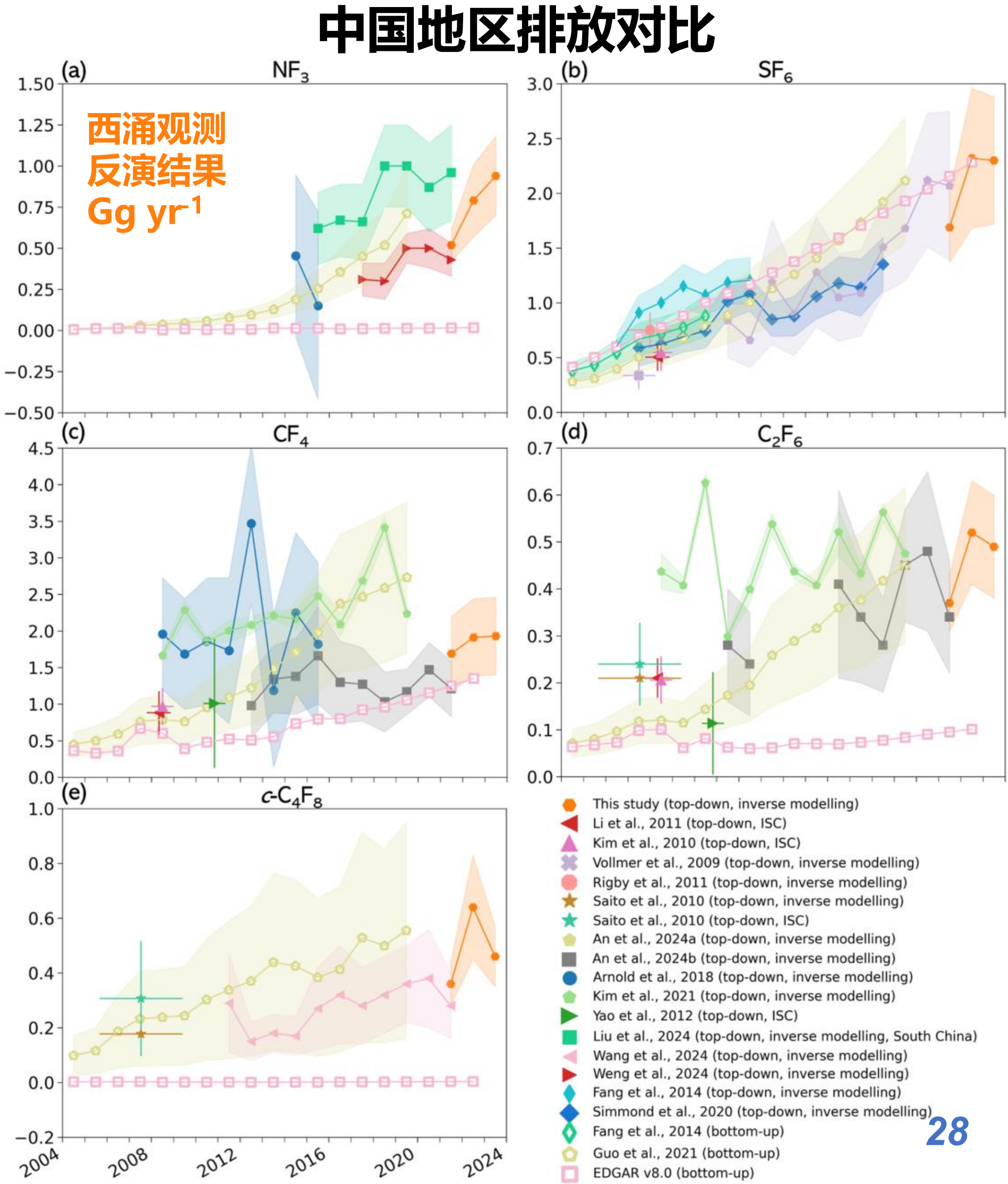


Li et al., *Environmental Science & Technology Letters*, 2025

激增的全氟化气体排放：全氟化碳（PFCs）、NF_3、SF_6







南科大博士生 陈雨阳

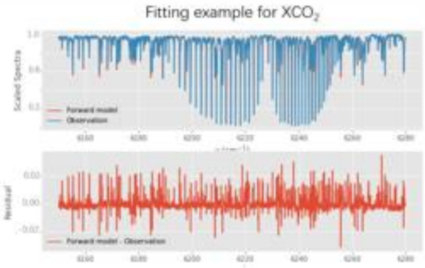
Chen et al., *Geophysical Research Letters*, 2025

基于西涌站点观测的拓展研究

全组分温室气体监测与排放反演

地面通量监测
LI-COR LI-7500DS 开路
CO_2/CH_4分析仪

含氟温室气体及消耗臭氧层物质全要素在线观测系统



地基遥感
傅里叶变换红外光谱

- FLEXPART + NAME **模拟与反演框架**
- F-gas 化学模块 + **地球系统模式**

厘清局地、区域、域外贡献

- 建立**服务不同目标**的监测体系
  - □ 城市站点 → 区域排放（长三角、珠三角）
  - □ 区域背景 → 区域传输（华南、华东）
  - □ 背景站点 → 国际贡献（南沙、藏南）

胡建信教授（北京大学）

感谢各位专家指导!

南方科技大学
SOUTHERN UNIVERSITY OF SCIENCE AND TECHNOLOGY

南科大环境学院
SUSTech | School of Environment