

刘瑞金, 廖宏, 常文渊, 等. 2017. 基于国际大气化学—气候模式比较计划模式数据评估未来气候变化对中国东部气溶胶浓度的影响 [J]. 大气科学, 41 (4): 739–751. Liu Ruijin, Liao Hong, Chang Wenyuan, et al. 2017. Impact of climate change on aerosol concentrations in eastern China based on Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) datasets [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 41 (4): 739–751, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1612.16218.

# 基于国际大气化学—气候模式比较计划模式数据评估 未来气候变化对中国东部气溶胶浓度的影响

刘瑞金<sup>1,2</sup> 廖宏<sup>3</sup> 常文渊<sup>1</sup> 张天航<sup>4</sup> 靳少非<sup>5</sup>

1 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029

2 中国科学院大学, 北京 100049

3 南京信息工程大学环境科学与工程学院, 南京 210044

4 中国气象局国家气象中心, 北京 100081

5 中国科学院东北地理与农业生态研究所湿地生态与环境重点实验室, 长春 130102

**摘 要** 气候变化引起的地面气溶胶浓度变化与区域空气质量密切相关。本文利用“国际大气化学—气候模式比较计划”(Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project, ACCMIP)中4个模式的试验数据分析了RCP8.5情景下2000~2100年气候变化对中国气溶胶浓度的影响。结果显示,在人为气溶胶排放固定在2000年、仅考虑气候变化的影响时,2000~2100年气候变化导致中国北部地区(31°N~45°N, 105°E~122°E)硫酸盐、有机碳和黑碳气溶胶分别增加28%、21%和9%,硝酸盐气溶胶在中国东部地区减少30%。气候变化对细颗粒物(PM<sub>2.5</sub>)浓度的影响有显著的季节变化特征,冬季PM<sub>2.5</sub>浓度在中国东部减少15%,这主要是由硝酸盐气溶胶在冬季的显著减少造成的;夏季PM<sub>2.5</sub>浓度在中国北部地区增加16%,而长江以南地区减少为9%,这可能与模式模拟的未来东亚夏季风环流的增强有关。

**关键词** ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project) 气候变化 人为气溶胶 PM<sub>2.5</sub>

文章编号 1006-9895(2017)04-0739-13

中图分类号 P401

文献标志码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1612.16218

## Impact of Climate Change on Aerosol Concentrations in Eastern China Based on Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) Datasets

LIU Ruijin<sup>1,2</sup>, LIAO Hong<sup>3</sup>, CHANG Wenyuan<sup>1</sup>, ZHANG Tianhang<sup>4</sup>, and JIN Shaofei<sup>5</sup>

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

2 Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

3 School of Environmental Science and Engineering, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044

4 National Meteorological Center, China Meteorological Administration, Beijing 100081

收稿日期 2016-08-19; 网络预出版日期 2017-01-11

作者简介 刘瑞金, 男, 1984 年出生, 博士研究生, 主要从事气溶胶气候效应及气候变化的模拟研究。E-mail: liurj@mail.iap.ac.cn

通讯作者 廖宏, E-mail: hongliao@mail.iap.ac.cn

资助项目 国家重点基础研究发展计划(973 计划)项目 2014CB441200, 国家自然科学基金项目 41475137、91544219

**Funded by** National Basic Research Program of China (973 Program, Grant 2014CB441202), National Natural Science Foundation of China (Grants 41475137, 91544219)

5 Key Laboratory of Wetland Ecology and Environment, Northeast Institute of Geography and Agroecology, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130102

**Abstract** Changes in surface layer aerosol concentrations induced by climate change are important for understanding regional air quality. In this study, the impact of climate change on surface-layer aerosol concentrations over East Asia were investigated using multi-model results from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) under the RCP8.5 scenario during 2000–2100. With anthropogenic emissions of aerosols and aerosol precursors kept at year 2000 levels, the annual mean concentrations of surface-layer sulfate, organic carbon, and black carbon over northern China (31°N–45°N, 105°E–122°E) were simulated to increase by 28%, 21%, and 9%, respectively, owing to climate change over 2000–2100. Compared to that in 2000, annual mean surface-layer nitrate concentration in 2100 over eastern China was simulated to decrease by 30% by climate change alone. The climate-induced changes in fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) concentrations were simulated to have large seasonal variation. Due to significant decreases in nitrate concentrations in the winter, wintertime PM<sub>2.5</sub> concentrations over eastern China were simulated to decrease by 15% over 2000–2100. Furthermore, the changes in summertime PM<sub>2.5</sub> concentrations during 2000–2100 were found to have different patterns in northern and southern China; PM<sub>2.5</sub> concentrations in northern China would increase by 16%, while those in southern China would decrease by 9%.

**Keywords** ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project), Climate change, Anthropogenic aerosol, PM<sub>2.5</sub>

## 1 引言

气溶胶作为主要的大气污染物之一,会影响大气能见度、人体健康和生态系统(Christopher et al., 1996; Pope and Dockery, 2006; Mahowald, 2011)。随着人为排放的增加,气溶胶亦逐渐成为影响气候变化的重要因子,其浓度的变化会导致全球和区域气候的改变(石广玉等, 2008; Liao et al., 2015)。政府间气候变化专门委员会(IPCC)第五次气候变化评估报告指出,自工业化以来气溶胶的增加导致了全球平均 $-0.9 \text{ W m}^{-2}$  ( $-1.9 \sim -0.1 \text{ W m}^{-2}$ )的辐射强迫,而温室气体导致的辐射强迫为 $+2.3 \text{ W m}^{-2}$  ( $+1.1 \sim +3.3 \text{ W m}^{-2}$ ),气溶胶负的辐射强迫效应部分抵消了温室气体增加产生的增温效应(Myhre et al., 2013)。

气溶胶作为大气中的短寿命物质,对气象参数的变化非常敏感。气候变化会通过影响温度、湿度、风速和降水频率等进而影响气溶胶的生成、传输和沉降等过程,最终影响其浓度。由于不同气溶胶成分对不同气象要素的响应不同,气候变化对气溶胶浓度的影响存在一定的复杂性。例如,温度升高会导致二氧化硫氧化加速,使硫酸盐气溶胶浓度增加。而对硝酸盐气溶胶而言,温度升高会使得更多的硝酸以气态的形式存在,导致硝酸盐气溶胶浓度减少(Liao et al., 2006; Dawson et al., 2007; Jacob and Winner, 2009; von Schneidmesser et al., 2015)。以往模式研究显示,未来全球降水的增加会导致气

溶胶含量减少(Racherla and Adams, 2006; Avise et al., 2009)。而最近的研究发现,虽然未来总的降水会增加,但降水频率和强度的变化可能会减弱降水对气溶胶的湿清除作用,从而使得未来气溶胶浓度增加(Fang et al., 2011; Allen et al., 2015)。另外,气候变化导致的大气环流的变化对气溶胶的传输也起着重要影响(Tai et al., 2012; Zhu et al., 2012)。

大气化学模式是评估未来气候变化对气溶胶浓度影响的重要工具。Tai et al. (2012) 统计分析CMIP5 (Phase 5 of Coupled Model Intercomparison Project) 多模式模拟的气象场结果发现,在SRES A1B情景下,由于中纬度地区锋面系统的发生频率减少,未来气候变化会导致美国东部气溶胶浓度增加 $0.1 \mu\text{g m}^{-3}$ ,而西北部地区由于受来自海洋的风的影响,气溶胶浓度呈减少的趋势。Hedegaard et al. (2013) 利用DEHM (Danish Eulerian Hemispheric Model) 模式发现,在RCP4.5情景下2000~2100年的气候变化会导致北半球高纬度地区气溶胶浓度减少,特别是北极地区,而在大西洋、热带和副热带的部分地区气溶胶浓度有微弱的(0~15%)增加。Jiang et al. (2013) 利用哈佛大学研发的大气化学传输模式(GEOS-Chem)研究了未来气候变化对中国地区气溶胶浓度的影响,结果显示未来气候条件的变化使得中国东部地区硫酸盐、硝酸盐、铵盐、黑碳和有机碳气溶胶地表浓度的变化范围为 $-1.5 \sim 0.8 \mu\text{g m}^{-3}$ , PM<sub>2.5</sub> 浓度变化10%~20%。Val Martin et al. (2015) 利用耦合的气候—化学模式(CESM)

发现, 未来气候变暖导致的野火增加会使得美国西部地区  $PM_{2.5}$  浓度在 RCP4.5 和 RCP8.5 情景下分别增加  $4.5\sim 5.6\ \mu\text{g m}^{-3}$  和  $3.2\sim 5.2\ \mu\text{g m}^{-3}$ 。Fu et al. (2016) 利用大气化学传输模式分析了 1980~2010 年气候变化对东亚地区  $PM_{2.5}$  的影响, 当只考虑气候变化的影响时, 中国北部地区冬季  $PM_{2.5}$  浓度减少  $4.0\sim 12.0\ \mu\text{g m}^{-3}$ , 而夏季该地区浓度增加  $6.0\sim 8.0\ \mu\text{g m}^{-3}$ 。综上所述, 虽然已有较多关于气候变化对气溶胶浓度影响的研究, 但以往的研究主要是基于单个模式的结果, 而气候变化对区域气溶胶影响模拟的不确定性很大程度上来自于不同气候模式模拟的未来区域气候变化的差异。为了减少单个气候模式模拟偏差的影响, 也有研究利用多模式集合平均的方法评估气候变化对气溶胶的影响。Colette et al. (2013) 定量分析了四个模式 (IPSL-CM5A-MR, WRF, LMDz-OR-INCA 和 CHIMERE) 的模拟结果, 研究显示 2050 年欧洲地区由于降水的增加, 气溶胶浓度有微弱的减少。Allen et al. (2015) 利用国际大气化学—气候模式比较计划多模式结果分析了全球变暖情景下气候变化对全球总气溶胶含量的影响。研究表明未来气候变化会导致大气中总降水的增加, 但由于大尺度降水频率的减少, 气溶胶湿沉降减少, 从而使得北半球中纬度和热带地区的气溶胶含量增加。尽管 Allen et al. (2015) 对全球总气溶胶浓度的变化进行了分析, 但多模式的研究中尚无专门针对中国区域的研究。

东亚是世界上人口最密集的区域之一, 占世界总人口的 30% 左右, 同时, 该区域也是全球气溶胶含量较大的区域之一 (Zhang et al., 2012; Winker et al., 2013)。因此研究东亚地区未来气溶胶浓度的变化对于了解未来该地区的空气质量具有重要的意义。本文主要是利用“国际大气化学—气候模式比较计划” (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project, ACCMIP) 中多个模式的试验结果分析未来气候变化对中国东部地区气溶胶浓度的影响, 为该地区空气质量控制的中长期政策的制定提供参考。

## 2 资料和方法

ACCMIP 计划是为了评估大气中短寿命成分 (包括气溶胶、臭氧、甲烷等) 及其化学过程在当前气候模式中的模拟水平而开展的 (Lamarque et al., 2010)。这一计划包含了来自全球不同研究所的多

个大气环流模式, 其中部分模式同时参与了“国际耦合模式比较计划” (CMIP)。ACCMIP 包括多个模拟试验, 本文主要采用两类模拟试验的结果进行分析。在控制试验 (E2000C2000) 中, 气溶胶及其前体物的排放和气候条件设置为 2000 年的水平; 在敏感性试验 (E2000C2100) 中, 气溶胶及其前体物的排放与控制试验相同, 而气候条件设置为 RCP8.5 情景下 2100 年。所用模式均采用相同的气溶胶排放数据, 海温和海冰分别设置为对应时间气候平均的固定值。敏感性试验和控制试验的差值就代表了气候变化对气溶胶的影响。因为在 ACCMIP 计划的试验设计中, 只进行了 RCP8.5 情景的气候敏感性试验, 所以本文只对这一情景下气候变化的影响进行研究。参加 ACCMIP 计划的模式中只有 4 个模式同时提供了控制试验和敏感性试验的数据下载, 本文利用这 4 个模式的结果进行分析, 包括 GFDL-AM3 (Geophysical Fluid Dynamics Laboratory Atmospheric Model version 3)、GISS-E2-R (Goddard Institute for Space Studies General Circulation Model)、HadGEM2 (Hadley Centre Global Environmental Model version 2) 和 MIROC-CHEM (Atmospheric chemistry coupled version of Model for Interdisciplinary Research on Climate) 模式, 各个模式的详细信息见表 1。由于各模式输出的数据分辨率差异较大, 为了便于模式间的相互比较, 所有数据双线性插值到  $2^\circ\times 2.5^\circ$  的格点上。本文使用的 ACCMIP 数据来自于 <http://www.ceda.ac.uk/> [2015-07-29]。

为了评估模式的模拟能力, 我们将当前气候条件下模拟的气溶胶浓度与中国气象局大气成分观测网观测的各成分气溶胶浓度进行了对比。观测网中包含了 14 个城市和郊区站点 (图 1), 观测的气溶胶成分包括硫酸盐、硝酸盐、铵盐、黑碳、有机碳和矿物沙尘, 观测时间为 2006 年 1 月到 2007 年 12 月。由于观测的气溶胶是  $PM_{10}$  粒径段的浓度, 而模式模拟的气溶胶浓度一般只包括细模态的浓度。根据 Zhang et al. (2012) 建议的方法, 为了与模式模拟的气溶胶浓度相比较, 观测的气溶胶浓度乘以 0.6 转换成  $PM_{2.5}$  粒径段浓度, 用于与模式结果的比较。另外, 我们还利用“中分辨率成像光谱仪” (MODIS) 观测的 550 nm 气溶胶光学厚度来评估模式模拟的光学厚度, 文中使用的 MODIS 数据是 2000 年到 2004 年的平均值。本文重点分析中国

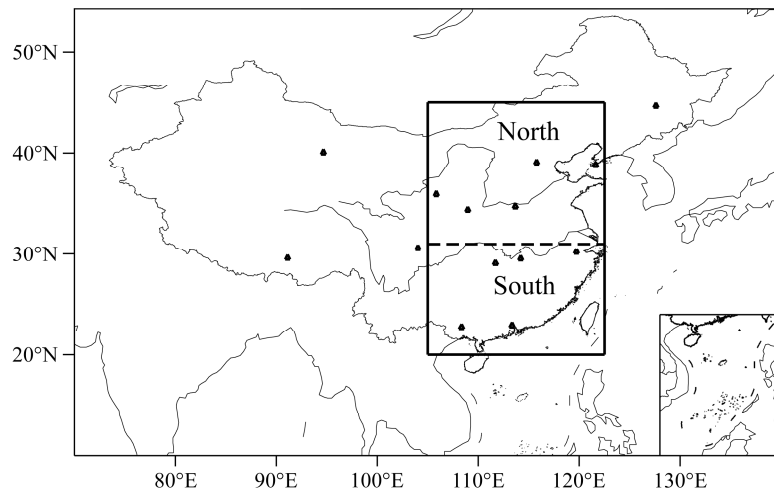


图1 中国气象局大气成分观测网站分布和本文研究区域。三角形代表观测站点位置，研究区域包括中国北部（31°N~45°N, 105°E~122°E）、南部（20°N~31°N, 105°E~122°E）和东部地区（北部+南部, 20°N~45°N, 105°E~122°E）

Fig. 1 Geographic locations of observational sites (triangles) in China Meteorological Administration Atmosphere Watch Network (CAWNET) and the study domains of northern China (31°N–45°N, 105°E–122°E), southern China (20°N–31°N, 105°E–122°E), and eastern China (20°N–45°N, 105°E–122°E)

表1 所选 ACCMIP 模式的基本信息

Table 1 Description of the ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project) models used in this study

研究中心	模式名称	气溶胶成分	分辨率 (经度×纬度)	参考文献
GFDL	GFDL-AM3	SO <sub>4</sub> , NO <sub>3</sub> , BC, POM, SOA, Dust	2°×2.5°	Donner et al. (2011)
GISS	GISS-E2-R	SO <sub>4</sub> , NO <sub>3</sub> , BC, POM, SOA, Dust	2°×2.5°	Koch et al. (2006)
UKMO	HadGEM2	SO <sub>4</sub> , BC, POM, SOA, Dust	1.24°×1.87°	Collins et al. (2011)
NIES	MIROC-CHEM	SO <sub>4</sub> , BC, POM, SOA, Dust	2.8°×2.8°	Watanabe et al. (2011)

注: SO<sub>4</sub>、NO<sub>3</sub>、NH<sub>4</sub>、BC、POM、SOA、Dust 分别代表硫酸盐、硝酸盐、铵盐、黑碳、一次有机气溶胶、二次有机气溶胶和沙尘。GFDL, GISS, UKMO, NIES 分别表示美国 Geophysical Fluid Dynamics Laboratory, 美国 Goddard Institute for Space Studies, 英国 Met Office, 日本 National Institute for Environmental Studies。

东部地区, 定义为 (20°N~45°N, 105°E~122°E, 图1), 为了便于分析, 本文中中国东部地区划分为北部 (31°N~45°N, 105°E~122°E) 和南部 (20°N~31°N, 105°E~122°E)。

### 3 结果和讨论

#### 3.1 当前气候条件下模拟的气溶胶浓度

图2给出了当前气候条件下多模式平均的气溶胶地表浓度的季节分布。模式模拟的人为气溶胶成分包括硫酸盐、黑碳、有机碳、硝酸盐和铵盐气溶胶, 其中有机碳气溶胶包含了一次和二次有机碳气溶胶。在所选取的模式中仅有 GFDL-AM3 和 GISS-E2-R 模式模拟了硝酸盐和铵盐, 硝酸盐和铵盐浓度是这两个模式模拟结果的平均, 其他气溶胶成分是所有4个模式的平均。从图中可以看出, 硫酸盐气溶胶地表浓度夏季最高, 华北地区浓度为

14~16  $\mu\text{g m}^{-3}$ , 这与夏季二氧化硫光化学氧化的增强有关。冬季硫酸盐气溶胶浓度最小, 华北地区浓度为 4~6  $\mu\text{g m}^{-3}$ , 春季和秋季的浓度为 8~10  $\mu\text{g m}^{-3}$ 。硝酸盐的生成主要受温度的影响, 温度较低时有利于硝酸盐的生成, 所以硝酸盐气溶胶的季节变化与硫酸盐有明显不同, 冬季浓度最大, 华北地区最大浓度为 14~16  $\mu\text{g m}^{-3}$ 。图中显示硝酸盐气溶胶浓度在夏季明显低于其他季节, 平均浓度在 1  $\mu\text{g m}^{-3}$  以下, 这可能是由于模式低估了夏季东亚地区的氨气排放造成的 (Chang et al., 2015)。另外, 夏季的高温和东亚夏季风造成的降水也导致了硝酸盐气溶胶浓度的偏低。与硝酸盐的分布相似, 铵盐气溶胶也主要分布在中国东部地区, 冬季最大浓度约 8~10  $\mu\text{g m}^{-3}$ 。由于人为气溶胶的排放影响, 黑碳和有机碳气溶胶在冬季浓度较大, 华北地区分别为 4~6  $\mu\text{g m}^{-3}$  和 12~14  $\mu\text{g m}^{-3}$ 。与各类气溶胶

的空间分布相似,  $PM_{2.5}$  浓度也主要分布在中国东部地区, 最大值出现在夏季, 为  $40\sim 50\ \mu\text{g m}^{-3}$ , 其他季节浓度为  $35\sim 40\ \mu\text{g m}^{-3}$ 。冬季硝酸盐气溶胶对  $PM_{2.5}$  浓度的贡献最大, 约为 23%。夏季硫酸盐和

有机碳气溶胶是影响  $PM_{2.5}$  浓度的主要成分, 分别占总浓度的 38%和 29%。

表 2 给出了模式模拟的各成分气溶胶地表浓度以及与观测的相对偏差。观测的中国 14 个站点平

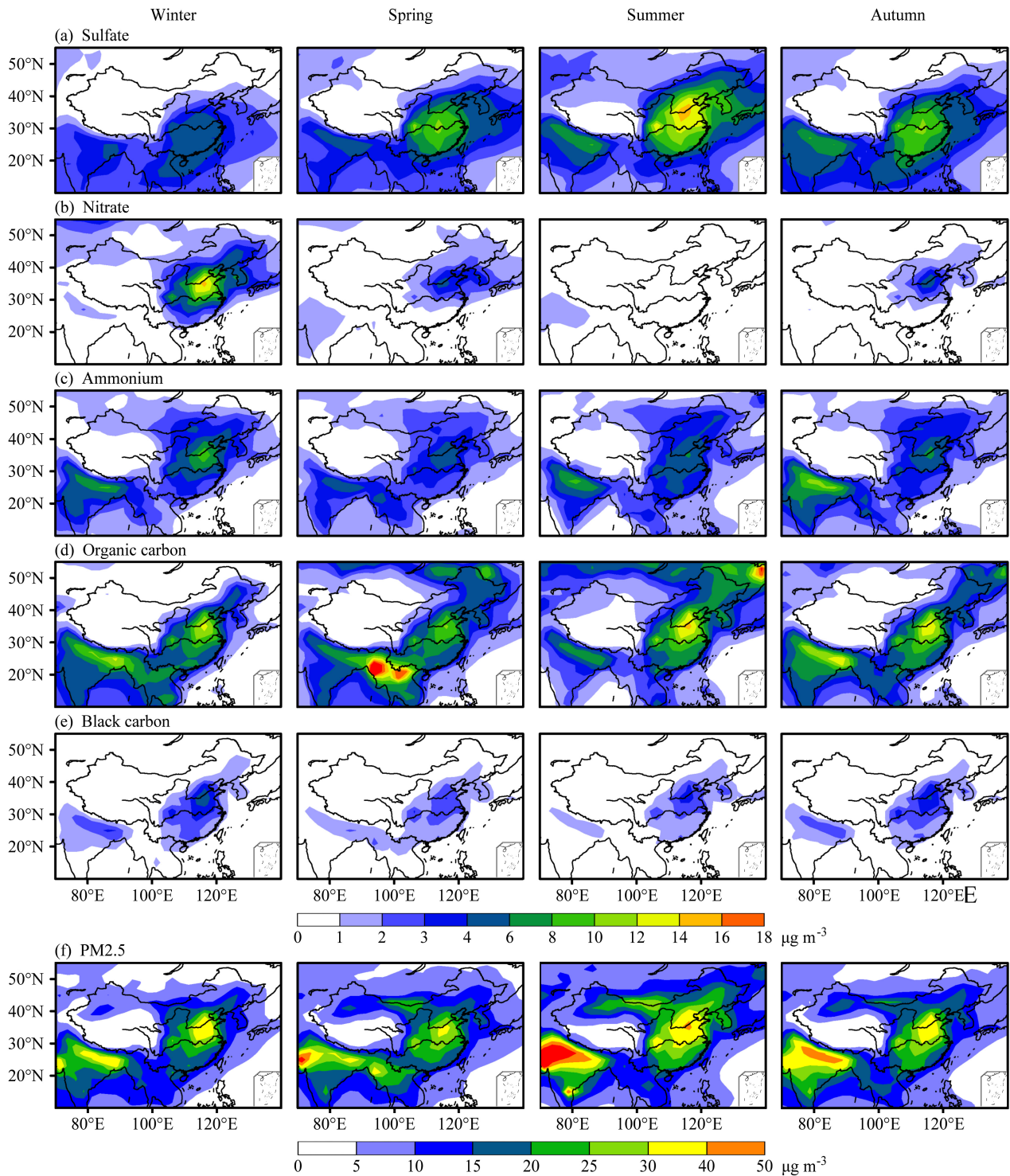


图 2 多模式平均的当前气候态下不同季节气溶胶地表浓度 (单位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) 的空间分布: (a) 硫酸盐, (b) 硝酸盐, (c) 铵盐, (d) 有机碳, (e) 黑碳, (f)  $PM_{2.5}$

Fig. 2 The present-day multi-model and seasonal mean surface-layer concentrations (units:  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) of aerosols over East Asia: (a) Sulfate, (b) nitrate, (c) ammonium, (d) organic carbon, (e) black carbon, (f)  $PM_{2.5}$  (fine particulate matter)

表 2 ACCMIP 模式模拟的各成分气溶胶地表浓度以及与观测的相对偏差

Table 2 Surface-layer aerosol concentrations from the models and normalized mean biases relative to observations

模式	硫酸盐浓度		硝酸盐浓度		铵盐浓度		有机碳浓度		黑碳浓度	
	模拟/ $\mu\text{g m}^{-3}$	归一化平 均偏差	模拟/ $\mu\text{g m}^{-3}$	归一化平 均偏差	模拟/ $\mu\text{g m}^{-3}$	归一化平 均偏差	模拟/ $\mu\text{g m}^{-3}$	归一化平 均偏差	模拟/ $\mu\text{g m}^{-3}$	归一化平 均偏差
GFDL-AM3	8.07	-67.67%	0.95	-91.49%	4.64	-45.70%	5.94	-75.59%	1.32	-77.87%
GISS-E2-R	5.33	-78.64%	3.09	-72.45%	1.88	-77.99%	7.01	-71.19%	1.53	-74.46%
HadGEM2	5.70	-77.18%					4.78	-80.34%	2.46	-58.88%
MIROC-CHEM	3.69	-85.22%					4.69	-80.74%	1.23	-79.39%
平均	5.70	-77.18%	2.02	-81.97%	3.26	-61.85%	5.60	-76.96%	1.63	-72.65%

注：归一化平均偏差定义为： $\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - y_i)}{\sum_{i=1}^n y_i} \times 100\%$ ， $x_i$  和  $y_i$  分别代表不同站点的模拟值和观测值。

均的硫酸盐、硝酸盐、铵盐、有机碳和黑碳气溶胶的年平均浓度分别为  $24.9 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $11.2 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $8.5 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $24.3 \mu\text{g m}^{-3}$  和  $5.9 \mu\text{g m}^{-3}$ 。模式模拟的硫酸盐、硝酸盐、铵盐、有机碳和黑碳气溶胶浓度与观测值的平均偏差分别为 -77.2%、-82.0%、-61.9%、-77.0% 和 -72.7% (表 2)。可以看出，所有模式对各类气溶胶成分都存在明显的低估，这与以往的研究结果相一致 (Shindell et al., 2015; Chang et al., 2015)。一些研究显示，模式对东亚地区气溶胶低估的原因主要是模式中低估了东亚地区人为气溶胶及其前体物的排放 (Liu et al., 2012; Chang et al., 2015)。模式中化学机制不完善也是造成气溶胶浓度模拟存在偏差的原因，最近一些研究显示，现在大气模式中对中国地区硫酸盐气溶胶生成机制考虑不够全面，模式一般会低估中国地区硫酸盐气溶胶浓度 (He et al., 2014; Huang et al., 2014)。而 Gao et al. (2014) 的研究结果显示，因为模式中对硝酸盐光化学过程以及硝酸向硝酸盐转化过程的模拟存在一些不确定性，模式会高估中国部分地区的硝酸盐浓度。可以看出，模式中化学机制不完善对气溶胶浓度模拟的影响还有较大的不确定性，有待于进一步的研究。另外，由于本文利用 2000 年排放的模拟结果与 2006~2007 年观测的浓度比较，排放清单时间的不同也是导致气溶胶浓度偏低的原因。谢祖欣和韩志伟 (2014) 的研究显示，2000 至 2006 年中国各地区污染物排放整体呈现上升趋势， $\text{SO}_2$  排在 2006 年比 2000 年增加了 38%， $\text{NO}_x$  排放增加 40%，BC 排放增加 20%。所以本文选用 2000 年排放的模拟结果与 2006~2007 年观测结果相比较，必然会造成模式的低估。还需要注意的是，由于模式分辨率较低，对于局地排放源、地形和下垫面以及中小尺度输送和扩

散过程的代表性不够，模式很难模拟出一些地区的高浓度值。由于本文主要分析未来气候条件下气溶胶浓度的相对变化特征，虽然各个模式对当前气候态下中国地区气溶胶浓度存在低估，但对于了解气候变化对气溶胶浓度影响的符号和相对变化仍有一定的意义。

为了评估多模式对中国东部地区气溶胶空间分布的模拟能力，我们对比了 MODIS 观测和模式模拟的年平均气溶胶光学厚度的分布 (图 3)。可以看出，模式可以模拟出中国东部气溶胶的空间分布特征。中国东部气溶胶光学厚度明显要高于其他地区，这与各类气溶胶浓度的分布相一致。MODIS 观测的气溶胶光学厚度和模式模拟结果的相关系数 (MODIS 观测和模式模拟的所有对应格点上的光学厚度值的线性相关) 约为 0.58。虽然模式可以模拟出气溶胶光学厚度的空间分布，但模式低估了东亚地区的气溶胶光学厚度的大小，MODIS 观测和模式模拟的中国东部地区 (区域定义见图 1) 年平均的气溶胶光学厚度分别为 0.43 和 0.37，模式低估 14%。

图 4 对比了模式模拟和再分析资料 2000 年的年平均温度、湿度、降水和 850 hPa 风场。其中温度、湿度和 850 hPa 风场数据来自于 NCEP/NCAR 再分析资料 (Kalnay et al., 1996)，降水资料来自于 GPCP (Global Precipitation Climatology Project) 月平均的数据。由图 4 可知，多模式模拟的温度和湿度分布与再分析资料基本一致，表明模式对东亚地区温度和湿度有较好的模拟水平。而模式对降水的模拟有一定的偏差，模式模拟的年平均降水在西南地区明显偏强，这可能与模式中地形的影响有关。对比不同模式的模拟结果发现，不同模式对降水的模拟存在一定的差异，但所有模式都明显低估了夏

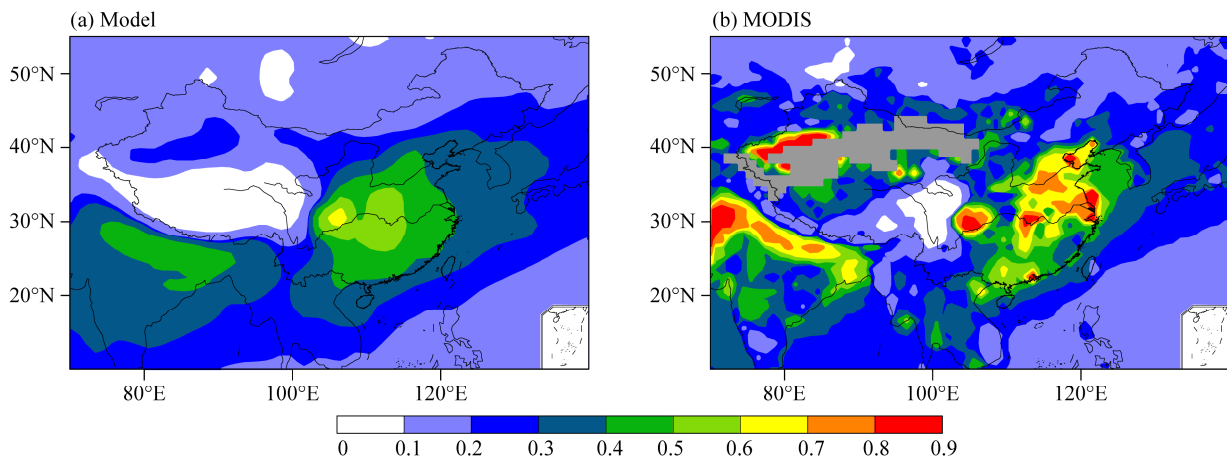


图3 (a) 模式模拟和 (b) MODIS 观测的 550 nm 波长年平均气溶胶光学厚度空间分布。图 b 中灰色部分表示缺少观测数据  
Fig. 3 The annual mean aerosol optical thickness at 550 nm wavelength over China from MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) and ACCMIP models. The gray areas in Fig. b represent the observation data are missing

季中国东部梅雨锋的降水量。对比不同季节 850 hPa 风场的结果显示，模式可以模拟出东亚地区基本的大气环流形势。

### 3.2 未来气候条件的变化特征

图 5 给出了 RCP8.5 情景下中国 2000~2100 年温度、湿度、降水和风场在不同季节的变化特征。由图 5a 可以看出，中国地区各个季节的增温显著，所有区域都通过了 95% 信度水平的显著性检验 ( $t$  检验)。多模式平均的中国东部地区冬季、春季、夏季和秋季的增温分别为 5.9°C、5.4°C、5.7°C 和 5.8°C。其中冬季增温最大，大部分地区增温 4~6°C，增温最明显的地区出现在青藏高原和中国的东北地区。由于不同模式的气候反馈不同，模式模拟的温度变化也略有不同。GFDL-AM3、GISS-E2-R、HadGEM2 和 MIROC-CHEM 模式模拟的中国东部地区年平均增温分别为 5.8°C、3.9°C、5.6°C 和 7.5°C。由于温度的增加，未来大气中的水汽也会增加。由图 5b 可以看出，中国大部分地区的水汽含量增加显著。夏季水汽的增加最明显，中国东部的水汽增加为 4~5 g kg<sup>-1</sup>。冬季、春季和秋季中国东部地区平均的水汽分别增加 1.3 g kg<sup>-1</sup>、2.4 g kg<sup>-1</sup> 和 3.1 g kg<sup>-1</sup>。图 5c 给出了未来降水的变化，模式模拟的中国东部的降水变化并不显著，冬季和秋季降水有微弱减少的趋势，而在春季和夏季，中国东部降水有所增加。其中，夏季中国北部的降水增加比较明显。以往的研究也显示在未来全球变暖的情景下，未来西北太平洋副热带高压向西北方向增强，使得中国东南部的南风 and 西南风增强，从而导

致该地区的水汽通量增加，降水增强 (Seo et al., 2013)。分析不同模式结果发现，虽然不同模式模拟的降水变化存在一定的差异，但大部分 ACCMIP 模式模拟的结果显示，未来中国东部的降水会增加。另外，我们还分析多个模式平均的 850 hPa 风场的变化。因为 ACCMIP 模式的试验数据只有纬向平均的风场数据，没有提供模式各个格点上风场数据的下载。ACCMIP 中的部分模式同时也参加了“第五代国际耦合模式比较计划”(CMIP5)。所以，我们利用 CMIP5 的试验数据来替代 ACCMIP 的风场，这一方法也用在了 Allen et al. (2015) 的研究中。由图 5d 可以看出东亚地区不同季节的大气环流变化有明显的季节差异，大气环流对污染物的输送起着重要的作用，其变化会影响中国地区气溶胶的分布特征。

### 3.3 未来气候变化对气溶胶地表浓度的影响

图 6 给出了模式模拟的未来气候变化导致的不同季节中国地区人为气溶胶地表浓度的变化特征。由图 6a 可知，中国东部地区硫酸盐气溶胶浓度变化有明显的季节特征，其中夏季和秋季变化最为显著。夏季硫酸盐气溶胶浓度变化有明显的南北差异，在中国北部地区增加 3~4 μg m<sup>-3</sup>，长江以南地区减少 2~3 μg m<sup>-3</sup>。相对于 2000 年的模拟值，硫酸盐气溶胶浓度在北部和南部的相对变化分别为 20% 和 -10%。这可能与模式模拟的未来东亚地区夏季风环流增强有关。夏季风环流的增强导致中国东部南风和西南风增强，使得中国南部地区气溶胶向北方的输送增多，从而导致中国南部气溶胶减少，

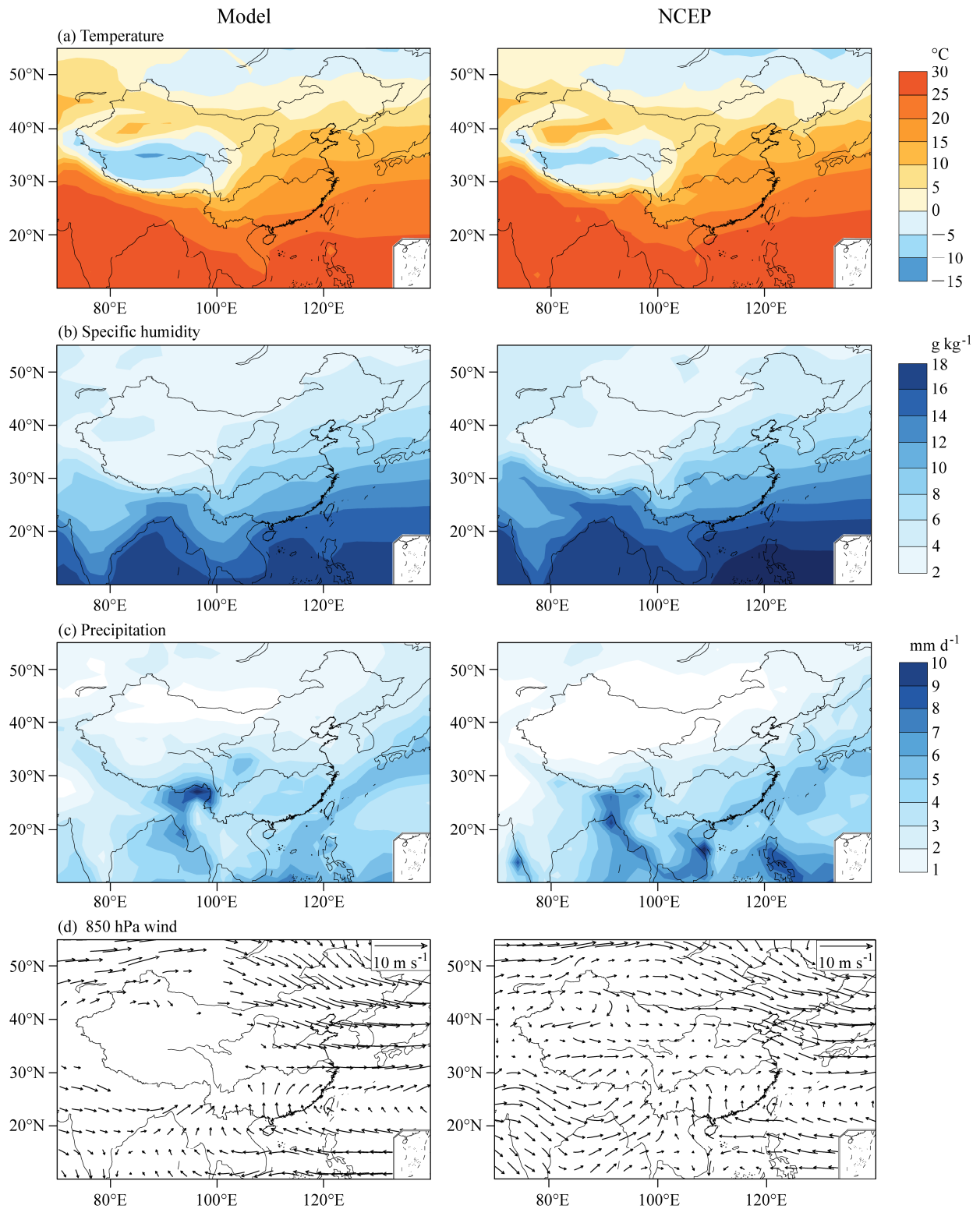


图4 模式模拟的(左列)和NCEP再分析资料的(右列)中国地区年平均(a)温度(单位: °C)、(b)绝对湿度(单位: g kg<sup>-1</sup>)、(c)降水(单位: mm d<sup>-1</sup>)和(d)850 hPa风场(单位: m s<sup>-1</sup>)的分布

Fig. 4 Distributions of annual mean (a) surface temperature (units: °C), (b) specific humidity (units: g kg<sup>-1</sup>), (c) precipitation (units: mm d<sup>-1</sup>), and (d) 850-hPa wind (units: m s<sup>-1</sup>) over China from ACCMIP models (left column) and NCEP data (right column)



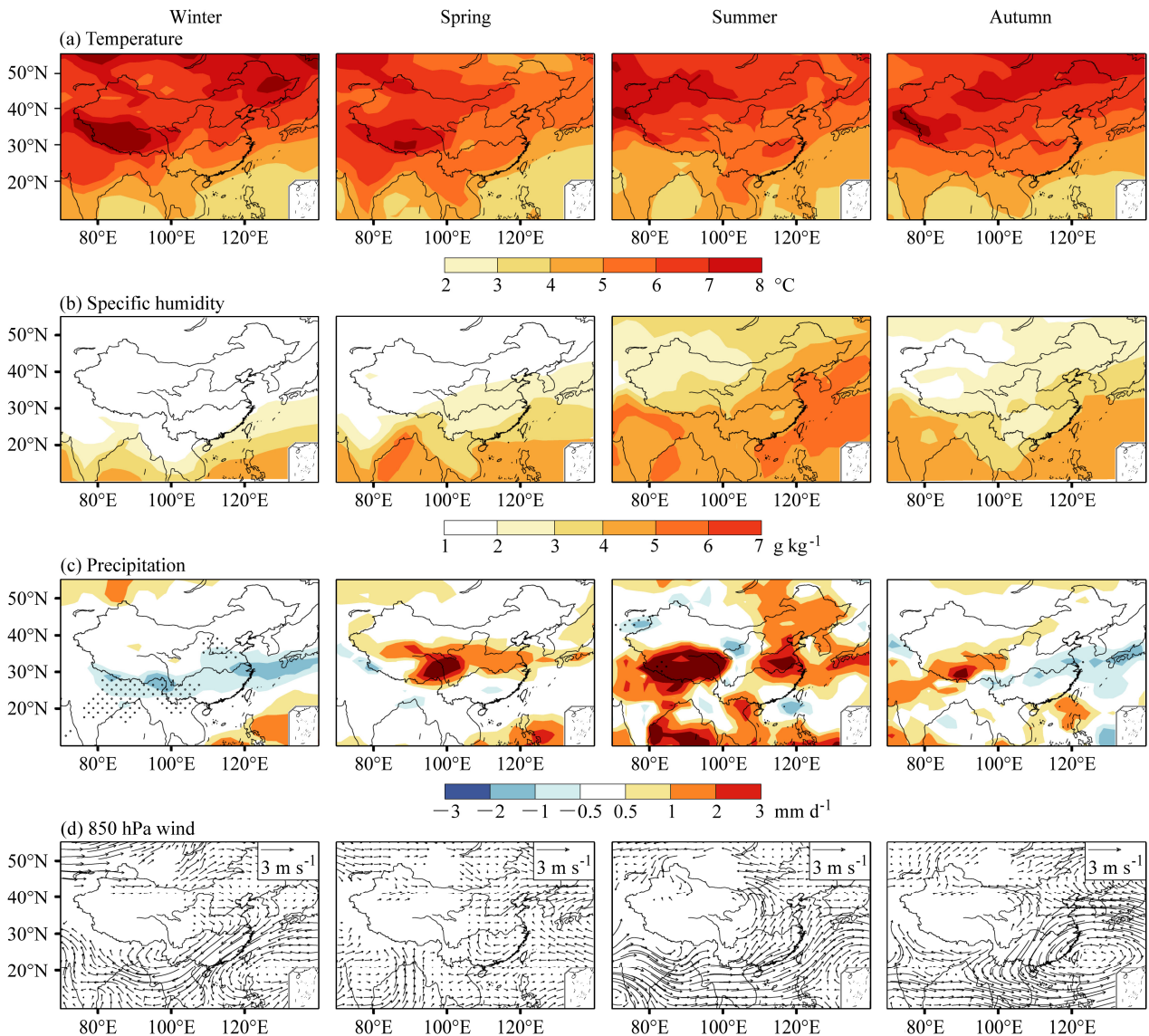


图5 ACCMIP 模式模拟的 RCP8.5 情景下 2000~2100 年中国季节平均的 (a) 温度 (单位:  $^{\circ}\text{C}$ )、(b) 绝对湿度 (单位:  $\text{g kg}^{-1}$ )、(c) 降水 (单位:  $\text{mm d}^{-1}$ ) 和 (d) 850 hPa 风场 (单位:  $\text{m s}^{-1}$ ) 的变化特征。(a) 温度和 (b) 绝对湿度的变化全部通过了 95% 信度水平检验 ( $t$  检验), (c) 降水变化图中打点区域表示通过了 95% 信度水平检验

Fig. 5 ACCMIP models-simulated changes in seasonal mean (a) surface temperature (units:  $^{\circ}\text{C}$ ), (b) specific humidity (units:  $\text{g kg}^{-1}$ ), (c) precipitation (units:  $\text{mm d}^{-1}$ ), and (d) 850-hPa wind (units:  $\text{m s}^{-1}$ ) over China during 2000–2100 under the RCP8.5 scenario. Projected changes in surface temperature in Fig. a and specific humidity in Fig. b are all statistically significant at the 95% confidence level based on the Student's  $t$  test. The dotted areas in Fig. c represent statistically significant changes at the 95% confidence level based on the Student's  $t$  test

北部地区增加。Zhu et al. (2012) 的结果也表明东亚夏季风环流的强弱变化会显著影响中国东部气溶胶浓度的分布。秋季硫酸盐气溶胶在中国东部地区增加显著, 浓度增加  $1\sim 2 \mu\text{g m}^{-3}$ 。未来温度的增加会使得气相氧化速率和大气氧化物浓度增加, 从而会导致硫酸盐气溶胶浓度的增加。另外, 中国东部秋季降水的减少会使得硫酸盐气溶胶湿沉降减少, 促进了气溶胶浓度的增加。对比不同

模式模拟的结果发现, GFDL-AM3、HadGEM2 和 MIROC-CHEM 模式模拟的未来中国地区硫酸盐气溶胶浓度都呈现增加的趋势, 只有 GISS-E2-R 模式结果出现减少的情况, 这可能与 GISS-E2-R 模式模拟的未来中国东部温度的增加幅度较小, 而降水增加比较显著有关, 降水增加对硫酸盐浓度的湿清除作用超过了温度的影响, 导致硫酸盐气溶胶浓度减少。

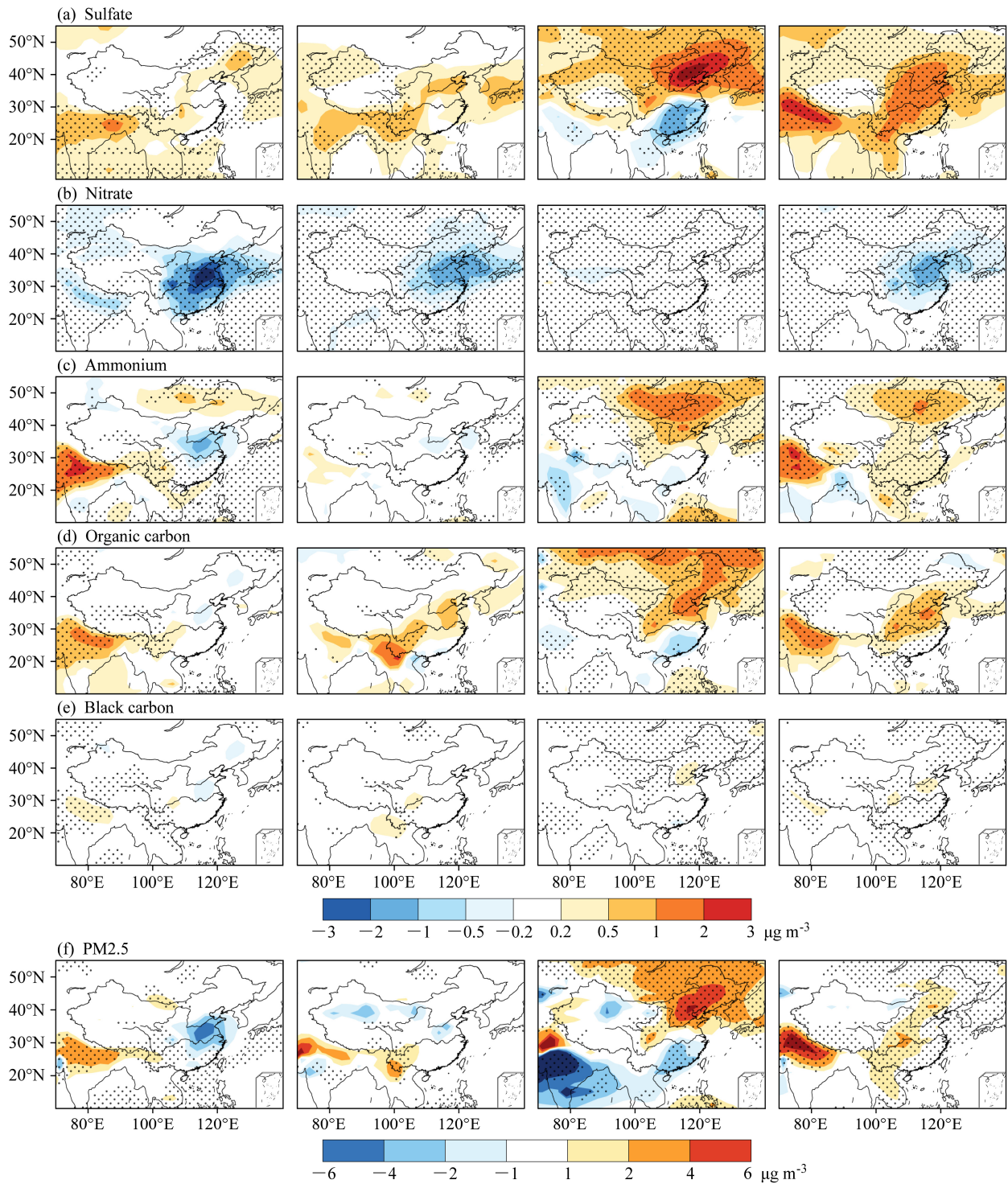


图6 ACCMIP 模式模拟的 RCP8.5 情景下 2000~2100 年气候变化导致的中国地区人为气溶胶各季节地表浓度的变化 (单位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ ): (a) 硫酸盐, (b) 硝酸盐, (c) 铵盐, (d) 有机碳, (e) 黑碳, (f) PM<sub>2.5</sub>。打点区域表示偏差通过了 95% 信度水平检验 ( $t$  检验)

Fig. 6 ACCMIP models-simulated changes in seasonal mean surface-layer concentrations (units:  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) of aerosols over China during 2000–2100 induced by the projected climate change under the RCP8.5 scenario: (a) Sulfate, (b) nitrate, (c) ammonium, (d) organic carbon, (e) black carbon, (f) PM<sub>2.5</sub>. The dotted areas represent statistically significant values at the 95% confidence level based on the Student's  $t$  test

硝酸盐气溶胶浓度的变化特征与硫酸盐明显不同(图6b), 硝酸盐气溶胶在各个季节都有明显减少的趋势, 浓度减少的区域主要位于中国东部地区。冬季浓度减少最明显, 华北地区大约减少 $3\sim 4\ \mu\text{g m}^{-3}$ 。春季和秋季浓度变化幅度相当, 华北地区减少 $1\sim 2\ \mu\text{g m}^{-3}$ 。由于模式模拟的夏季硝酸盐气溶胶浓度明显偏低, 所以夏季气溶胶浓度的绝对变化不明显。但对比2000年的浓度显示, 各个季节硝酸盐气溶胶在中国东部地区的相对变化均可达 $-40\%$ 。硝酸盐气溶胶浓度的变化同时受到温度、降水等气象条件的影响。对比未来温度和降水的变化趋势发现, 未来硝酸盐浓度的变化与温度的变化有很好的一致性(温度增加导致硝酸盐减少)。这表明温度对未来中国东部硝酸盐气溶胶浓度的变化起主导作用, 这也与Jiang et al. (2013)的研究结果相一致。另外, 对比GFDL-AM3和GISS-E2-R两个模式的结果发现, 虽然两个模式模拟的未来降水的变化不同, 但模拟的硝酸气溶胶浓度的变化却出现一致减少的趋势, 这也表明降水不是影响硝酸盐浓度变化的主要因素。需要注意的是, 由于当前气候模式中对硝酸盐化学机制的考虑还不够完善, 所以模式模拟的未来气候变化对硝酸盐气溶胶浓度的影响仍有一定的不确定性。

图6c显示的是铵盐气溶胶地表浓度在各个季节

的变化特征, 铵盐气溶胶浓度的变化不仅受降水、输送等气象条件的影响, 还与硫酸盐和硝酸盐气溶胶的浓度有关系。由图可知, 铵盐气溶胶浓度在夏季和秋季的变化比较显著。夏季气溶胶浓度在中国北部增加 $1\sim 2\ \mu\text{g m}^{-3}$  (15%), 在长江以南地区有微弱的减少( $-5\%$ ); 秋季气溶胶浓度在中国东部出现一致增加的趋势, 这与硫酸盐气溶胶的浓度变化相一致。有机碳和黑碳气溶胶的浓度变化也有相似的变化特征(图6d、e), 受大气环流输送的影响, 夏季有机碳和黑碳气溶胶浓度的变化特征有明显的南北差异, 有机碳气溶胶浓度在中国北部增加 $1\sim 2\ \mu\text{g m}^{-3}$  (36%), 在中国南部减少约 $1\ \mu\text{g m}^{-3}$  ( $-7\%$ )。气候变化对 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的影响也有显著的季节变化特征(图6f)。冬季和春季 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度在中国东部有减少的趋势, 其中冬季华北地区减少 $4\sim 6\ \mu\text{g m}^{-3}$ , 这主要是由硝酸盐气溶胶在冬季显著减少造成的。夏季 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度变化的空间分布与硫酸盐相似, 有明显的南北差异。中国北部 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度增加 $5\sim 6\ \mu\text{g m}^{-3}$ , 长江以南地区减少 $3\sim 4\ \mu\text{g m}^{-3}$ , 相对于2000年的模拟值,  $\text{PM}_{2.5}$ 浓度在北部和南部的相对变化分别为16%和 $-9\%$ 。受硫酸盐、铵盐和有机碳气溶胶浓度增加的影响, 秋季 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度在中国东部增加 $1\sim 2\ \mu\text{g m}^{-3}$  (7%)。

图7给出了多模式平均的2000~2100年气候

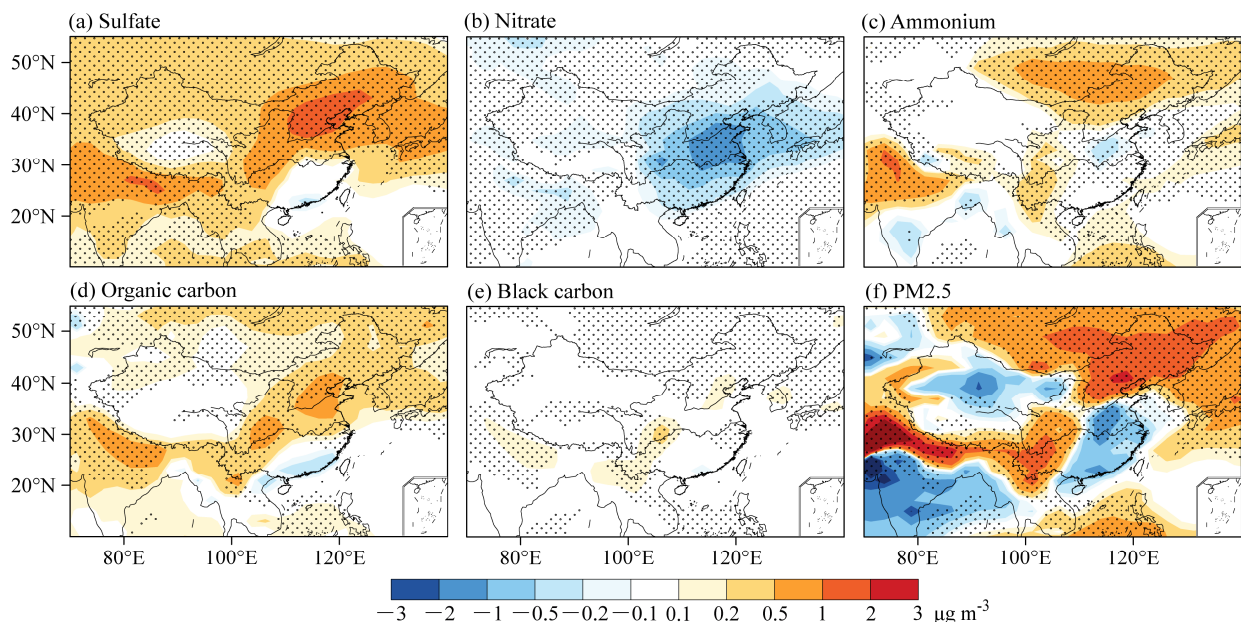


图7 ACCMIP 模式模拟的2000~2100年气候变化导致的中国地区人为气溶胶年平均地表浓度的变化(单位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ ): (a) 硫酸盐, (b) 硝酸盐, (c) 铵盐, (d) 有机碳, (e) 黑碳, (f)  $\text{PM}_{2.5}$ 。打点区域表示偏差通过了95%信度水平检验(*t*检验)  
 Fig. 7 ACCMIP models-simulated changes in annual mean surface-layer concentrations (units:  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) of aerosols over China during 2000~2100 induced by the projected climate change under the RCP8.5 scenario: (a) Sulfate, (b) nitrate, (c) ammonium, (d) organic carbon, (e) black carbon, (f)  $\text{PM}_{2.5}$ . The dotted areas represent statistically significant values at the 95% confidence level based on the Student's *t* test

变化导致的中国地区人为气溶胶年平均地表浓度的变化。气候变化对不同气溶胶浓度的影响不同。未来气候变化导致中国大部分地区硫酸盐、有机碳和黑碳气溶胶年平均浓度增加,增加显著的区域出现在中国北部。硫酸盐气溶胶在中国北部地区增加最明显,浓度增加最大的区域约  $1\sim 2\ \mu\text{g m}^{-3}$ 。有机碳气溶胶浓度的增加趋势略小,在中国北部地区增加小于  $1\ \mu\text{g m}^{-3}$ 。由于黑碳气溶胶本身浓度较小,其绝对浓度的变化明显小于硫酸盐和有机碳。相对于模式模拟的 2000 年的浓度值,2100 年硫酸盐、有机碳和黑碳气溶胶在中国北部地区(区域定义见图 1)分别增加 28%、21%和 9%。中国南部地区气溶胶浓度变化幅度较小,在沿海地区有弱的减少趋势。与硫酸盐气溶胶的变化不同,硝酸盐和铵盐气溶胶年平均浓度在中国东部有明显减少的趋势。模式平均的结果显示,2000~2100 年气候变化导致中国东部硝酸盐气溶胶减少约  $1\sim 2\ \mu\text{g m}^{-3}$ ,相对于 2000 年的浓度值减少 30%。这主要是因为未来温度的增加使得更多的硝酸以气态的形式存在,从而使得硝酸盐气溶胶浓度减少。受各类气溶胶浓度变化的影响,PM<sub>2.5</sub> 年平均浓度在中国北部增加  $2\sim 3\ \mu\text{g m}^{-3}$  (10%~20%)。

## 4 结论

本文利用“国际大气化学—气候模式比较计划”中 4 个模式的结果分析了 RCP8.5 情景下 2000~2100 年气候变化对中国东部气溶胶浓度的影响。首先分析了模式对当前气候条件下气溶胶地表浓度的模拟水平。结果显示,模式可以模拟出中国地区各成分气溶胶的空间和季节分布特征。但与中国气象局大气成分观测网各成分气溶胶的观测数据以及 MODIS 观测结果比较发现,模式明显低估了中国地区各类气溶胶的浓度值,这可能与模式中气溶胶及其前体物排放的低估以及气溶胶的化学过程有关。

分析未来气候变化对中国东部气溶胶浓度影响的结果显示,2000~2100 年中国东部地区的温度、湿度明显增加,同时考虑降水的变化,未来气候变化会导致中国大部分地区气溶胶浓度增加。相对于 2000 年的浓度,模式模拟的 2100 年硫酸盐、有机碳和黑碳气溶胶的浓度在中国北部分别增加 28%、21%和 9%,而硝酸盐气溶胶在中国东部减少约 30%。PM<sub>2.5</sub> 浓度的变化有显著的季节特征,冬季

PM<sub>2.5</sub> 浓度在中国东部减少 15%,夏季 PM<sub>2.5</sub> 浓度变化有明显的南北差异,在中国北部地区增加 16%,而在长江以南地区减少 9%,这可能与模式模拟的未来东亚夏季风环流的增强有关。

## 参考文献 (References)

- Allen R J, Landuyt W, Rumbold S T. 2015. An increase in aerosol burden and radiative effects in a warmer world [J]. *Nat. Climate Change*, 6 (3): 269–274, doi:10.1038/nclimate2827.
- Avise J, Chen J, Lamb B, et al. 2009. Attribution of projected changes in summertime US ozone and PM<sub>2.5</sub> concentrations to global changes [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 9 (4): 1111–1124, doi:10.5194/acp-9-1111-2009.
- Chang W Y, Liao H, Xin J Y, et al. 2015. Uncertainties in anthropogenic aerosol concentrations and direct radiative forcing induced by emission inventories in eastern China [J]. *Atmos. Res.*, 166: 129–140, doi:10.1016/j.atmosres.2015.06.021.
- Christopher S A, Kliche D V, Chou J, et al. 1996. First estimates of the radiative forcing of aerosols generated from biomass burning using satellite data [J]. *J. Geophys. Res.*, 101 (D16): 21265–21273, doi:10.1029/96JD02161.
- Colette A, Bessagnet B, Vautard R, et al. 2013. European atmosphere in 2050, a regional air quality and climate perspective under CMIP5 scenarios [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 13 (15): 7451–7471, doi:10.5194/acp-13-7451-2013.
- Collins W J, Bellouin N, Doutriaux-Boucher M, et al. 2011. Development and evaluation of an earth-system model-HadGEM2 [J]. *Geosci. Model Dev.*, 4 (4): 1051–1075, doi:10.5194/GMD-4-1051-2011.
- Dawson J P, Adams P J, Pandis S N. 2007. Sensitivity of ozone to summertime climate in the eastern USA: A modeling case study [J]. *Atmos. Environ.*, 41 (7): 1494–1511, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.10.033.
- Donner L J, Wyman B L, Hemler R S, et al. 2011. The dynamical core, physical parameterizations, and basic simulation characteristics of the atmospheric component AM3 of the GFDL global coupled model CM3 [J]. *J. Climate*, 24 (13): 3484–3519, doi:10.1175/2011JCLI3955.1.
- Fang Y Y, Fiore A M, Horowitz L W, et al. 2011. The impacts of changing transport and precipitation on pollutant distributions in a future climate [J]. *J. Geophys. Res.*, 116 (D18), doi:10.1029/2011JD015642.
- Fu Y, Tai A P K, Liao H. 2016. Impacts of historical climate and land cover changes on fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) air quality in East Asia between 1980 and 2010 [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 16 (16): 10369–10383, doi:10.5194/acp-16-10369-2016.
- Gao Y, Zhao C, Liu X, et al. 2014. WRF-Chem simulations of aerosols and anthropogenic aerosol radiative forcing in East Asia [J]. *Atmos. Environ.*, 92 (0): 250–266, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.04.038.
- He H, Wang Y S, Ma Q X, et al. 2014. Mineral dust and NO<sub>x</sub> promote the conversion of SO<sub>2</sub> to sulfate in heavy pollution days [J]. *Sci. Rep.*, 4: 4172, doi:10.1038/srep04172.
- Hedegaard G B, Christensen J H, Brandt J. 2013. The relative importance of impacts from climate change vs. emissions change on air pollution levels in the 21st century [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 13 (7): 3569–3585,

- doi:10.5194/acp-13-3569-2013.
- Huang X, Song Y, Zhao C, et al. 2014. Pathways of sulfate enhancement by natural and anthropogenic mineral aerosols in China [J]. *J. Geophys. Res.*, 119 (24): 14165–14179, doi:10.1002/2014JD022301.
- Jacob D J, Winner D A. 2009. Effect of climate change on air quality [J]. *Atmos. Environ.*, 43 (1): 51–63, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.09.051.
- Jiang H, Liao H, Pye H O T, et al. 2013. Projected effect of 2000–2050 changes in climate and emissions on aerosol levels in China and associated transboundary transport [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 13 (16): 7937–7960, doi:10.5194/acp-13-7937-2013.
- Kalnay E, Kanamitsu M, Kistler R, et al. 1996. The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project [J]. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 77 (3): 437–471, doi:10.1175/1520-0477(1996)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2.
- Koch D, Schmidt G A, Field C V. 2006. Sulfur, sea salt, and radionuclide aerosols in GISS ModelE [J]. *J. Geophys. Res.*, 111 (D6): D06206, doi:10.1029/2004JD005550.
- Lamarque J F, Bond T C, Eyring V, et al. 2010. Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: Methodology and application [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 10 (15): 7017–7039, doi:10.5194/acp-10-7017-2010.
- Liao H, Chen W T, Seinfeld J H. 2006. Role of climate change in global predictions of future tropospheric ozone and aerosols [J]. *J. Geophys. Res.*, 111 (D12), doi:10.1029/2005jd006852.
- Liao Hong, Chang Wenyuan, Yang Yang. 2015. Climatic effects of air pollutants over China: A review [J]. *Adv. Atmos. Sci.*, 32 (1): 115–139, doi:10.1007/s00376-014-0013-x.
- Liu X, Easter R C, Ghan S J, et al. 2012. Toward a minimal representation of aerosols in climate models: Description and evaluation in the Community Atmosphere Model CAM5 [J]. *Geosci. Model Dev.*, 5 (3): 709–739, doi:10.5194/gmd-5-709-2012.
- Mahowald N. 2011. Aerosol indirect effect on biogeochemical cycles and climate [J]. *Science*, 334 (6057): 794–796, doi:10.1126/science.1207374.
- Myhre G, Shindell D, Bréon F M, et al. 2013. Anthropogenic and natural radiative forcing [M]//*Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Stocker T F, Qin D, Plattner G K, et al., Eds. Cambridge, UK and New York, USA: Cambridge University Press, doi:10.1017/CBO9781107415324.018.
- Pope III C A, Dockery D W. 2006. Health effects of fine particulate air pollution: Lines that connect [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 56 (6): 709–742, doi:10.1080/10473289.2006.10464485.
- Racherla P N, Adams P J. 2006. Sensitivity of global tropospheric ozone and fine particulate matter concentrations to climate change [J]. *J. Geophys. Res.*, 111 (D24): D24103, doi:10.1029/2005JD006939.
- Seo K H, Ok J, Son J H, et al. 2013. Assessing future changes in the East Asian summer monsoon using CMIP5 coupled models [J]. *J. Climate*, 26 (19): 7662–7675, doi:10.1175/JCLI-D-12-00694.1.
- 石广玉, 王标, 张华, 等. 2008. 大气气溶胶的辐射与气候效应 [J]. *大气科学*, 32 (4): 826–840. Shi Guangyu, Wang Biao, Zhang Hua, et al. 2008. The radiative and climatic effects of atmospheric aerosols [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 32 (4): 826–840, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2008.04.11.
- Shindell D T, Faluvegi G, Rotstayn L, et al. 2015. Spatial patterns of radiative forcing and surface temperature response [J]. *J. Geophys. Res.*, 120 (11): 5385–5403, doi:10.1002/2014JD022752.
- Tai A P K, Mickley L J, Jacob D J. 2012. Impact of 2000–2050 climate change on fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) air quality inferred from a multi-model analysis of meteorological modes [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 12 (23): 11329–11337, doi:10.5194/acp-12-11329-2012.
- Val Martin M, Heald C L, Lamarque J F, et al. 2015. How emissions, climate, and land use change will impact mid-century air quality over the United States: A focus on effects at national parks [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 15 (5): 2805–2823, doi:10.5194/acp-15-2805-2015.
- von Schneidmesser, E, Monks, P S, Allan J D, et al. 2015. Chemistry and the linkages between air quality and climate change [J]. *Chem. Rev.*, 115 (10): 3856–3897, doi:10.1021/acs.chemrev.5b00089.
- Watanabe S, Hajima T, Sudo K, et al. 2011. MIROC-ESM 2010: Model description and basic results of CMIP5–20c3m experiments [J]. *Geosci. Model Dev.*, 4 (4): 845–872, doi:10.5194/gmd-4-845-2011.
- Winker D M, Tackett J L, Getzewich B J, et al. 2013. The global 3-D distribution of tropospheric aerosols as characterized by CALIOP [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 13 (6): 3345–3361, doi:10.5194/acp-13-3345-2013.
- 谢祖欣, 韩志伟. 2014. 基于排放清单的中国地区人为排放源的年际变化 [J]. *中国科学院大学学报*, 31 (3): 289–296. Xie Zuxin, Han Zhiwei. 2014. Investigation of interannual variations in anthropogenic emission in China based on several emission inventories [J]. *Journal of University of Chinese Academy of Sciences*, 31 (3): 289–296, doi:10.7523/j.issn.2095-6134.2014.03.001.
- Zhang X Y, Wang Y Q, Niu T, et al. 2012. Atmospheric aerosol compositions in China: Spatial/temporal variability, chemical signature, regional haze distribution and comparisons with global aerosols [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 12 (2): 779–799, doi:10.5194/ACP-12-779-2012.
- Zhu J L, Liao H, Li J P. 2012. Increases in aerosol concentrations over eastern China due to the decadal scale weakening of the East Asian summer monsoon [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 39 (9): L09809, doi:10.1029/2012gl051428.