

The impacts of transport from South and Southeast Asia on Q_2 concentrations in China from 2015 to 2050

王叶 and 廖宏*

Citation: 科学通报; doi: 10.1360/TB-2021-0707

View online: <https://engine.scichina.com/doi/10.1360/TB-2021-0707>

Published by the [《中国科学》杂志社](#)

Articles you may be interested in

[Modeling the impacts of policy interventions from REDD+ in Southeast Asia: A case study in Indonesia](#)

SCIENCE CHINA Earth Sciences **57**, 2374 (2014);

[The \$P_2O_5\$ content of feldspars from the Yashan granites, Jiangxi Province, South China](#)

Chinese Science Bulletin **44**, 1245 (1999);

[A review on the spread of prehistoric agriculture from southern China to mainland Southeast Asia](#)

SCIENCE CHINA Earth Sciences **63**, 615 (2020);

[Control of atmospheric \$CO_2\$ concentrations by 2050: A calculation on the emission rights of different countries](#)

Science in China Series D-Earth Sciences **52**, 1447 (2009);

[Impacts of changed litter inputs on soil \$CO_2\$ efflux in three forest types in central south China](#)

Chinese Science Bulletin **58**, 750 (2013);

2015~2050年南亚与东南亚输送对中国大气臭氧浓度的影响

王叶, 廖宏*

南京信息工程大学环境科学与工程学院, 江苏省大气环境监测与污染控制高新技术研究重点实验室, 大气环境与装备技术协同创新中心, 南京 210044

* 联系人, E-mail: hongliao@nuist.edu.cn

2021-07-18 收稿, 2021-11-02 修回, 2021-11-04 接受, 2021-12-30 网络版发表

国家自然科学基金(91744311)资助

摘要 使用戈达德对地观测系统化学传输模型(Goddard Earth Observing System Chemical Transport Model, GEOS-Chem)模拟了不同共享社会经济路径(shared socioeconomic pathways, SSPs)下2015~2050年中国、南亚和东南亚地区的日最大8小时臭氧(MDA8 O₃)浓度以及人为和生物质燃烧排放变化导致的南亚和东南亚输送变化对中国O₃浓度的影响。南亚和东南亚输送对中国O₃的影响涵盖珠江三角洲(简称珠三角)、广西、云南、贵州、四川盆地、青海、西藏以及新疆部分区域,使上述区域2015年MDA8 O₃年均浓度上升3.0~19.0 μg m⁻³。在典型污染区域,2015年南亚和东南亚传输对四川盆地MDA8 O₃浓度影响最大(+6.2 μg m⁻³),珠三角随后(+4.7 μg m⁻³),长江三角洲(简称长三角)影响最小(+0.6 μg m⁻³)。传输对典型污染区域MDA8 O₃的影响有明显的月变化特征:伴随春季地表和850 hPa高度30°N附近较强的西风与西南风,对四川盆地2015年MDA8 O₃的影响在3月最大(+10.1 μg m⁻³),4月随后(+9.4 μg m⁻³);由于夏季地表和850 hPa处在10°~30°N区域盛行西南风,传输对珠三角的影响在7月最大(+14.0 μg m⁻³),8月次之(+9.1 μg m⁻³),对长三角的贡献在7月最高(+2.5 μg m⁻³),6月次之(+1.4 μg m⁻³)。从中长期看,2015~2030年南亚和东南亚传输对上述区域MDA8 O₃的影响在SSP1尤其是SSP1-1.9情景下降低(四川盆地4月下降最大为3.5 μg m⁻³(-36.5%,2030年相较2015年的传输变化量与2015年传输量的比值),珠三角和长三角在7月下降最大,分别下降3.0(-21.1%)和1.1 μg m⁻³(-43.1%);传输贡献在SSP3-7.0情景下增加(相较2015年,2030年贡献在四川盆地5月增加20.1%,在珠三角和长三角7月分别增加8.5%和7.5%)。上述三个区域的MDA8 O₃浓度受南亚和东南亚传输影响的长期(2015~2050年)变化特征与中长期类似。

关键词 SSPs情景,人为与生物质燃烧排放,南亚与东南亚,输送, O₃浓度

中国于2013年开始实施《大气污染防治行动计划》(以下简称《计划》),旨在2013~2017年降低可入肺颗粒物(PM_{2.5})浓度,改善空气质量。《计划》的实施使中国PM_{2.5}的浓度大幅下降^[1,2],与此同时,O₃浓度却快速增长^[3~7],尤其是在京津冀、长江三角洲(简称长三角)等经济发达、人口密集的城市群。据观测,在

2013~2017年,中国74个主要城市暖季(4~9月)的MDA8 O₃浓度以每年3%的速度增长^[8],并且MDA8 O₃第90百分位数浓度平均值由2013年的139 μg m⁻³升至167 μg m⁻³^[9]。高浓度的近地面O₃会对人体健康^[3,10~12]、生态系统^[13,14]、农作物产率^[15]造成危害,也会导致一定程度的温室效应,从而对气候产生一定的

引用格式: 王叶, 廖宏. 2015~2050年南亚与东南亚输送对中国大气臭氧浓度的影响. 科学通报, 2022, 67: 1-17

Wang Y, Liao H. The impacts of transport from South and Southeast Asia on O₃ concentrations in China from 2015 to 2050 (in Chinese). Chin Sci Bull, 2022, 67: 1-17, doi: 10.1360/TB-2021-0707

影响^[16].

近地面O₃是由挥发性有机化合物(volatile organic compounds, VOCs)、一氧化碳(CO)、甲烷(CH₄)在氮氧化物(NO_x, NO_x=一氧化氮(NO)+二氧化氮(NO₂))存在的情况下,通过复杂的光化学反应生成的二次污染物.这些O₃前体物大多来自于人为源的排放,还有部分来自自然源.例如,生物源VOCs与土壤和闪电排放的NO_x.NO_x与VOCs是O₃最主要的两个前体物,他们与O₃生成存在着复杂的非线性关系.O₃与前体物之间的关系可结合VOCs/NO_x的比值、VOCs活性、生物反应和地形等因子,划分为NO_x控制区、VOCs控制区与过渡区^[17].根据研究时间段和区域的不同,控制区也会发生变化^[18,19].除了前体物排放,气象条件也是O₃浓度的一个重要影响因素.研究表明,高浓度的O₃污染事件往往伴随着促进O₃在边界层的化学生成与累积的不利天气条件(如高温、低风速和低的相对湿度)与天气形势(如反气旋)^[20,21].

印度作为南亚最大国家,与中国接壤,被预计在未来几十年,将成为世界上人口最多的国家,占世界人口的1/6以上.其城市化、制造业、农业活动和能源利用的快速扩张导致人为排放增加和空气质量迅速恶化.据世界卫生组织2016年报道,印度拥有世界上污染最严重的100座城市中的33座,新德里通常被认为是世界上污染最严重的城市.印度的大气污染不仅限于城市地区;在农村地区,燃烧木材、粪便和生物质用于烹饪和取暖的生活方式也会加剧大气污染水平^[22].近些年,生物质燃烧事件在东南亚变得频繁且广泛,大量污染物排放会导致能见度下降、对人体健康造成危害,同时也会导致一定的气候效应,引起了学界的重视.

并且,多个研究表明,南亚、东南亚的污染物在受不同尺度的大气环流的影响下,可以攀过喜马拉雅山脉,经过长距离输送到达中国,对中国的污染物浓度造成一定影响^[23-29].Yang等人^[23]使用区域气候模式研究了2013年青藏高原黑碳(black carbon, BC)气溶胶外源传输及气候效应.结果表明,受西风和南亚季风影响,中亚、南亚等高原周边排放的污染物通过大气环流传输,进入青藏高原.其中来自南亚的BC对青藏高原外源传输的贡献率最高,在非季风期为61.3%,季风期为19.4%.Jian和Fu^[26]利用GEOS-Chem模式模拟了2001年3月PSEA区域(区域定义为越南、柬埔寨、泰国、老挝和缅甸)的生物质燃烧产生的污染物传输,发现此次生物质燃烧事件会导致中国南部O₃浓度的小幅增加(1%

~5%).Fu等人^[29]利用通用多尺度空气质量(community multiscale air quality, CMAQ)模型研究发现2006年春季PSEA地区的生物质燃烧排放可以对南部O₃造成10%~30%的增幅.但之前O₃污染跨境传输的研究大多是针对生物质燃烧,缺乏因周边国家人为排放变化对中国O₃污染影响的定量研究.

O₃浓度的预估是大气污染中长期计划的基础.之前一些研究基于联合国政府间气候变化专门委员会(Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC) A1B排放情景和代表性浓度路径(representative concentration pathways, RCPs)排放情景对中国地区未来的PM_{2.5}及O₃变化趋势进行了评估^[30-36].Wang等人^[30]基于IPCC A1B排放情景,使用GEOS-Chem模式模拟了2000和2050年中国的O₃浓度,结果表明,在气候和排放的共同作用下,中国区域下午(当地时间12:00~17:00) O₃浓度年均值将由2000年的45.7±10.2 ppb上升至2050年的54.4±14.9 ppb (1 ppb=2.14 μg m⁻³).Zhu和Liao^[34]研究了RCPs (RCP2.6、RCP4.5、RCP6.0和RCP8.5)下由排放变化驱动的未来O₃浓度变化,研究表明RCP8.5 (RCP6.0)情景下2020、2030 (2040、2050)年中国南部的O₃年均值相较于2000年会增加6~12 ppb.Hong等人^[36]使用北卡罗莱纳州立大学改良的通用地球系统模型(North Carolina State University's modified Community Earth System Model, CESM-NCSU)结合区域气象与通用多尺度空气质量耦合模型(Weather Research and Forecasting-Community Multiscale Air Quality, WRF-CMAQ),基于RCP4.5清单评估了气候变化对未来空气质量的影响.研究表明,相较于2006~2010年,2046~2050年4~9月最大1 h O₃浓度在中国大部分地区将增加2~8 ppb.但是目前缺乏未来南亚及东南亚地区的传输对中国O₃浓度影响的预估研究.

近期,一个新的未来排放清单SSPs面世,这个清单整合了未来社会经济发展情况,弥补了之前清单的不足,可以为未来预估提供更好的假设情景^[37-41].SSPs清单已被用于世界气候研究计划(World Climate Research Programme, WCRP)耦合模式比较计划第六版(Coupled Model Intercomparison Project Phase 6, CMIP6)中,为未来空气质量、辐射强迫、生态环境效应以及人体健康效应等的评估提供了很好的条件.为探究南亚和东南亚污染物跨境传输对中国O₃浓度的影响,本文基于更加完善的未来排放SSPs清单,使用三维化学传输模型GEOS-Chem,评估了2015~2050年不同SSPs情景人为

排放与生物质燃烧排放变化情况下, 中国、南亚、东南亚三个区域的O₃浓度, 并且通过模式的敏感性试验定量研究了南亚、东南亚地区的排放变化对中国地区未来大气O₃浓度的影响. 该研究对厘清中国未来O₃浓度变化趋势以及制定O₃空气质量控制政策具有较为重要的意义.

1 研究方法

1.1 研究区域

为评估2015~2050年期间南亚和东南亚地区对中国O₃浓度的影响, 整体的研究区域分为三个部分: 中国、南亚和东南亚. 其中南亚地区的国家有印度、阿富汗、孟加拉、不丹、斯里兰卡、马尔代夫、尼泊尔和巴基斯坦, 东南亚地区的国家有文莱、印度尼西亚、柬埔寨、老挝、缅甸、马来西亚、菲律宾、新加坡、泰国、东帝汶与越南. 文章也划分了中国的京津冀区域(BTH, 37°~43°N, 113°~118°E)、长三角区域(YRD, 29°~35°N, 115.5°~120.5°E)、珠三角区域(PRD, 22°~23°N, 112.5°~115°E)和四川盆地(SCB, 28°~30°N, 102.5°~105°E)进行进一步细化分析. 研究区域及其位置展示在图S1中.

1.2 观测数据来源

用于模式验证的2015年中国区域O₃浓度的小时观测数据来自中国环境监测总站(<https://quotsoft.net/air/>). 由于南亚及东南亚其他国家的O₃观测浓度的数据缺失, 仅使用来自Kota等人^[42]文章中的印度2015年O₃浓度年均值来进行模式与观测的对比. NO₂与甲醛(HCHO)的月均对流层柱浓度卫星观测数据从<http://www.temis.nl/airpollution>网址下载, 分辨率为0.25°×0.25°.

1.3 GEOS-Chem模式

本文使用GEOS-Chem v11-01 (http://wiki.seas.harvard.edu/geos-chem/index.php/GEOS-Chem_v11-01)模式模拟2015~2050年中国、南亚以及东南亚的O₃浓度. GEOS-Chem模式由全球模拟和同化办公室(the Global Modelling and Assimilation Office, GMAO)同化的2015年的MERRA-2 (the Modern-Era Retrospective Analysis for Research and Applications, version 2)气象场驱动. 水平分辨率为2°×2.5°(纬度×经度), 共有47个垂直层结至0.01 hPa. 模式包括完全耦合的O₃-NO_x-碳氢化合物

(hydrocarbon)化学机制^[43,44]和气溶胶(包括硫酸盐^[44]、硝酸盐^[45]、铵盐、黑碳、有机碳(organic carbon, OC)^[46]、矿物尘^[47]和海盐气溶胶^[48]). 模式通过Fast-JX模块计算光化学反应速率^[49]和气溶胶的非均相反应, 如湿气溶胶对硝酸根(NO₃)和NO₂的吸收^[50]、五氧化二氮(N₂O₅)的水解^[51]以及气溶胶对过氧自由基(HO₂)的吸收^[52]也包括在模式中. GEOS-Chem模式中的湿清除参照Liu等人^[53]发展的方案, 包括上升气流中的清除、雨除和冲刷过程. 干清除过程基于Wesely^[54]的resistance-in-series模块.

1.4 排放清单

2015~2050年的人为源与生物质燃烧源的排放清单使用SSPs排放清单, 可从<https://esgf-node.llnl.gov/projects/input4mips/>网址获取. 清单包括5个代表性情景: SSP1-1.9、SSP1-2.6、SSP2-4.5、SSP3-7.0、SSP5-8.5, 其中SSP1-5分别代表可持续发展路径、中间路径、区域竞争路径、不平等发展路径与化石燃料燃烧路径, 1.9~8.5则分别代表21世纪末相较于工业革命前的辐射强迫值(W m⁻²). SSP1和SSP5分别描述了通过可持续发展和化石燃料燃烧途径实现强劲经济增长的情景. SSP2是一种中间路径, 在该情景下, 人口增长温和, 各国收入水平趋同较慢, 能源生产(依赖于矿物质)继续以与现阶段大致相同的速度消耗, 导致温室气体排放持续增加. SSP3描述了国家(区域)之间竞争和国家内部高度不平等的未来. 在SSP3情景下, 全球GDP增速慢、增长集中在目前的高收入国家, 而人口增加则集中在低收入国家, 并且煤炭依赖重新抬头. 由于政策实施效率低、各地区政策不相同、国际机构薄弱, 导致该路径下的污染物和气溶胶排放量很高. 在SSPs情景中, SSP1-1.9是唯一可以实现将21世纪全球平均气温上升幅度控制在工业化时期水平之上1.5℃以内的情景.

排放清单中包括2015~2100年每10年(2015年为基准年, 从2020年开始每相隔10年)每月的O₃前体物、气溶胶及其前体物(NO_x、非甲烷挥发性有机物(NMVOCs)、CO、二氧化硫(SO₂)、氨气(NH₃)、BC和OC)排放以及CH₄浓度. 人为排放包括8个行业: 农业、电力、工业、交通、民用(商用)、溶剂的生产与使用、废弃物、国际航运; 生物质燃烧排放包括4个来源: 农业废料燃烧、森林燃烧、草原燃烧、泥炭燃烧. 相较于RCPs情景, SSPs情景结合了不同的社会经济发展

状况,可以更好地评估未来的发展情景.

表1展示了由CMIP6格点排放数据计算的SSPs情景下中国、南亚和东南亚各国2015年不同污染物的人为排放与生物质燃烧排放总量. 计算各国污染物排放量所用的shapefile文件从https://gadm.org/download_country_v3.html下载. 从表1可以看出, 2015年各地区中, 中国除NH₃外所有其他污染物排放量最高, NH₃排放量南亚最高. 中国2015年NO_x、NMVOCs、CO、SO₂、NH₃、BC和OC的排放量分别为32.0、29.1、188.9、23.8、12.7、2.5和5.2 Tg. 在南亚地区, 印度是污染物排放最高的国家, 在2015年排放了15.3 Tg NO_x、18.4 Tg NMVOCs、78.4 Tg CO、13.2 Tg SO₂、10.2 Tg NH₃、1.0 Tg BC和2.9 Tg OC. 中国、南亚和东南亚地区中, 东南亚排放量最低, 2015年NO_x、NMVOCs、CO、SO₂、NH₃、BC和OC排放量分别为7.5、27.2、95.9、3.9、4.6、0.7和3.2 Tg.

其中, 生物质燃烧排放对各个国家和地区总排放的贡献表现各不相同(表S1). 可以看出, 东南亚2015年生物质燃烧污染物排放量占比最大, 其中OC占比最大, 为52.7%, NO_x、NMVOCs和CO分别占比14.3%、33.7%和45.1%. 中国和南亚污染物生物质燃烧排放占比不大, 占比范围分别为0.1%~4.2%和0.2%~5.7%.

不同未来情景下中国、南亚和东南亚地区2015~2050年O₃前体物NO_x、NMVOCs和CO的人为排放与生物质燃烧排放总量与相应的CH₄全球平均浓度如图1所示. 可以看出, 中国2015~2050年NO_x、NMVOCs和CO的排放量在SSP1-1.9、SSP1-2.6情景下均逐年下降, 至2050年相较2015年分别下降了79.7%和85.9%、63.2%和68.1%、83.0%和59.0%. SSP2-4.5情景下, NO_x和CO排放逐年减少, NMVOCs排放在2020年之前呈上升趋势而后呈小幅下降趋势, 2050年与2015年相比NO_x、NMVOCs和CO排放分别变化了-53.0%、

表 1 SSPs情景下中国、南亚和东南亚地区2015年各国不同污染物人为排放与生物质燃烧排放总量(Gg, 1 Gg = 10⁹ g)

Table 1 Anthropogenic and open burning emissions of pollutants from China and different countries in South Asia (SA) and Southeast Asia (SEA) in 2015 under SSP pathways (Gg, 1 Gg = 10⁹ g)

国家	NO _x	NMVOCs	CO	SO ₂	NH ₃	BC	OC
中国	31983.89	29062.01	188905.10	23770.22	12738.52	2474.84	5181.95
印度	15291.80	18426.41	78368.33	13245.87	10223.26	975.27	2923.64
阿富汗	628.64	377.60	1478.56	16.30	159.81	13.72	45.88
孟加拉国	681.15	870.03	3116.69	172.48	961.95	44.61	147.92
不丹	21.90	43.90	254.23	3.12	21.85	0.69	4.80
斯里兰卡	492.95	917.80	3708.98	156.18	500.61	37.38	130.52
马尔代夫	0.44	0.45	3.70	0.06	0.04	0.02	0.07
尼泊尔	120.38	460.13	2290.81	38.77	238.63	32.12	128.15
巴基斯坦	1635.89	2811.97	11964.52	1356.90	1961.38	162.05	551.96
南亚排放总和	18873.15	23878.29	101185.8	14989.68	14067.53	1265.86	3932.94
文莱	19.39	12.98	31.39	6.64	12.25	1.22	2.54
印度尼西亚	3578.71	12797.94	47781.12	1742.98	1857.53	263.61	1591.19
柬埔寨	283.71	1118.62	5537.15	59.62	196.79	37.93	246.37
老挝	186.98	557.26	2856.42	166.50	109.61	16.33	117.47
缅甸	513.00	2008.95	8713.82	84.40	506.38	78.70	458.72
马来西亚	583.17	1719.41	4025.02	263.21	238.73	31.21	76.38
菲律宾	342.56	1167.46	2519.38	261.26	361.76	31.33	84.71
新加坡	-	-	-	-	-	-	-
泰国	1156.20	5005.99	13476.50	625.63	715.95	112.09	319.27
东帝汶	13.66	23.72	136.83	1.76	7.94	0.77	4.01
越南	818.16	2782.70	10843.95	639.70	631.27	98.35	336.75
东南亚排放总和	7495.54	27195.03	95921.58	3851.70	4638.21	671.54	3237.41

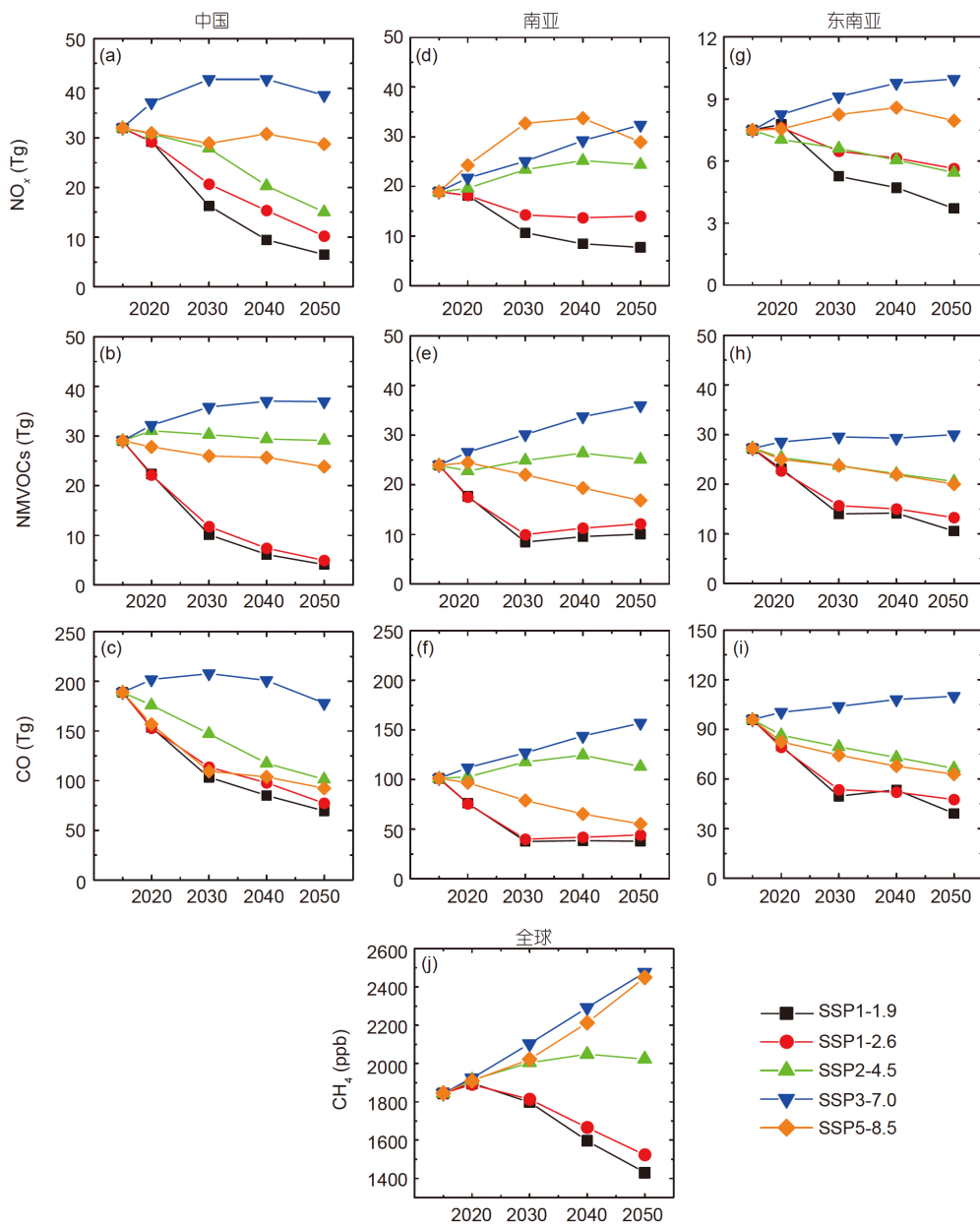


图 1 (网络版彩色)不同未来情景下, 2015~2050年中国(a)~(c)、南亚(d)~(f)和东南亚地区(g)~(i) NO_x 、NMVOCs和CO的人为排放与生物质燃烧排放总量与(j)相应的 CH_4 全球平均浓度

Figure 1 (Color online) Anthropogenic emissions and open burning emissions of NO_x , NMVOCs and CO from (a)~(c) China, (d)~(f) SA and (g)~(i) SEA during 2015~2050 under different future pathways with (j) corresponding global mean concentrations of CH_4

+0.2%和-46.3%。在SSP3-7.0下, 中国的 NO_x 和NMVOCs的人为排放量上升至2040年然后开始下降, CO则在2030年达到排放峰值(208.0 Tg), 2050年相较2015年上述污染物排放分别变化了+20.7%、+27.1%和-5.8%。SSP5-8.5下的中国 NO_x 排放先下降至2030年, 在2040年略有上升, 随后开始下降, 而NMVOCs和CO的排放量呈现逐年递减的趋势。

2015~2050年, 南亚 NO_x 、NMVOCs和CO排放量在SSP1-1.9和SSP1-2.6情景下呈现与中国相似的逐年下降趋势, 但NMVOCs和CO排放量在2040和2050年小幅上升。与中国不同, 南亚三个前体物的排放量在SSP2-4.5情景下均持续上升至2040年再转为下降, 在SSP3-7.0情景下呈现从2015到2050年逐年增加的特征, NO_x 排放量持续上升至2040年达到峰值, 然后开始下降。与

中国类似, SSP1-1.9和SSP1-2.6情景下, 除NMVOCs与CO在SSP1-1.9情景下在2040年有小幅上升外, 东南亚2015–2050年NO_x、NMVOCs和CO排放量逐年下降. 三个前体物排放量在SSP2-4.5情景下均持续下降. 在SSP5-8.5和SSP3-7.0情景下的变化趋势与南亚相似.

CH₄的全球平均浓度在SSP1-1.9和SSP1-2.6情景下先由2015年(1845.0 ppb)升至2020年(SSP1-1.9: 1897.0, SSP1-2.6: 1891.4 ppb), 然后开始快速下降; 在SSP2-4.5情景下, CH₄浓度升至2040年(2048.4 ppb)之后转为下降趋势; 但在SSP3-7.0与SSP5-8.5情景下均呈现从2015年到2050年持续上升的趋势, 至2050年相较2015年分别上升了34.2%和32.8%.

1.5 试验设置

表2描述了文章中数值试验的具体设置. 本研究将2015年作为基准年, 在SSP1-2.6情景下, 结合2015年的气象场与排放场, 设置基准试验(BASE) (2015年为基准年, 5个情景下2015年的排放基本一致, 使用SSP1-2.6情景下的排放模拟的2015年结果代表其他情景下2015年结果). BASE试验结果将用作模式验证. 为模拟5个情景下由人为排放以及生物质燃烧排放驱动的2015–2050年O₃浓度的变化, 我们将气象场与自然排放固定在2015年, 人为排放与生物质燃烧排放随模拟时间变化, 这一系列试验设置为控制试验(CTRL). 敏感性试验(NOSASEA)设置与CTRL试验设置相似, 不同在于关闭了南亚与东南亚的人为排放和生物质燃烧排

放. BASE试验与2015年NOSASEA试验的差值表示2015年南亚和东南亚传输对中国O₃的影响. 2020~2050年CTRL试验与相应年份的NOSASEA试验的差值分别表示2020~2050年南亚和东南亚人为排放与生物质燃烧排放对中国2020~2050年O₃的影响. 在模拟过程中, 我们在每个BASE及CTRL各情景下都分别进行了为期6个月的spin-up, NOSASEA试验均在各年1月1日开始实施减排, 由其BASE/CTRL试验spin-up提供的restart文件驱动.

2 研究结果

2.1 模式验证

图2(a)~(d)对比了2015年(基准年)京津冀、长三角、珠三角和四川盆地观测和模拟的月均MDA8 O₃浓度, 图2(e)对比了2015年观测和模拟的印度新德里、巴特那和孟买三个城市的年均O₃浓度. 可以看出, 模式能较为合理地模拟出各个区域的MDA8 O₃浓度月均浓度值和变化趋势, 也能较好地重现印度三个城市的年均O₃浓度. 将上述4个中国区域和3个印度城市的模式输出与观测的MDA8 O₃ (O₃)浓度做散点图(图2(f)), 线性拟合并进行统计可得: MDA8 O₃ (O₃)观测值与模拟值的相关系数R为0.71, 标准偏差NMB为+35.5%, 因此模式能够合理捕获O₃的时空分布特征. 由图2可以看出, 由于O₃生成过程对温度和光照时间较为敏感, 并且生物源VOCs排放会随着温度的上升而增加, 同时较低的PM_{2.5}浓度会导

表 2 本文数值试验的具体设置

Table 2 Numerical experiments used in this study

数值试验	情景	模拟时间	气象场	人为和生物质燃烧排放	自然排放
BASE	SSP1-2.6	2015	2015	2015	2015
	SSP1-1.9				
	SSP1-2.6				
CTRL	SSP2-4.5	2020, 2030, 2040, 2050	固定在2015年	随模拟时间变化	固定在2015年
	SSP3-7.0				
	SSP5-8.5				
	SSP1-2.6				
NOSASEA	SSP1-1.9	2015, 2020, 2030, 2040, 2050	固定在2015年	与CTRL一致但关闭SA和SEA区域的排放	固定在2015年
	SSP2-4.5				
	SSP3-7.0				
	SSP5-8.5				

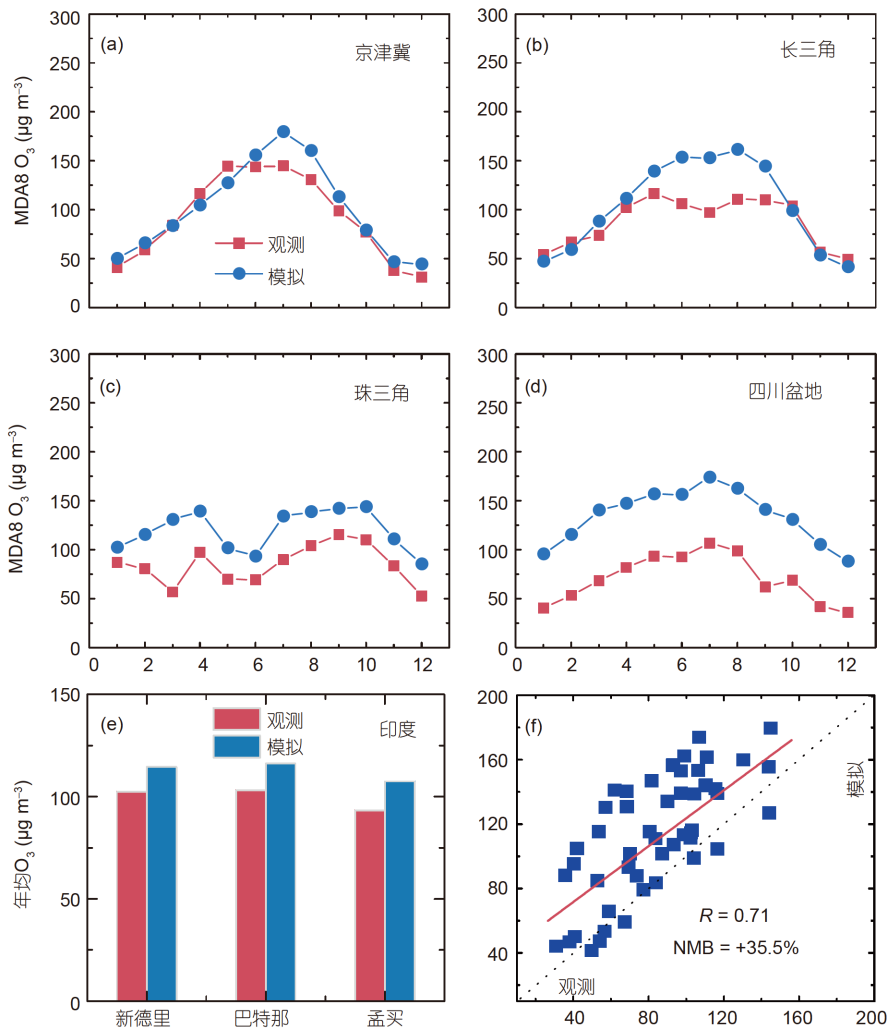


图 2 (网络版彩色) 2015年京津冀(a)、长三角(b)、珠三角(c)和四川盆地(d)观测的(红色)和模拟的(蓝色)月均MDA8 O₃浓度对比. (e) 观测和模拟的印度3个城市(新德里、巴特那和孟买)的2015年O₃年均浓度. (f) 观测值与模拟值的散点图以及拟合线(红线), 相关系数(R)与标准偏差(NMB)也显示在其中

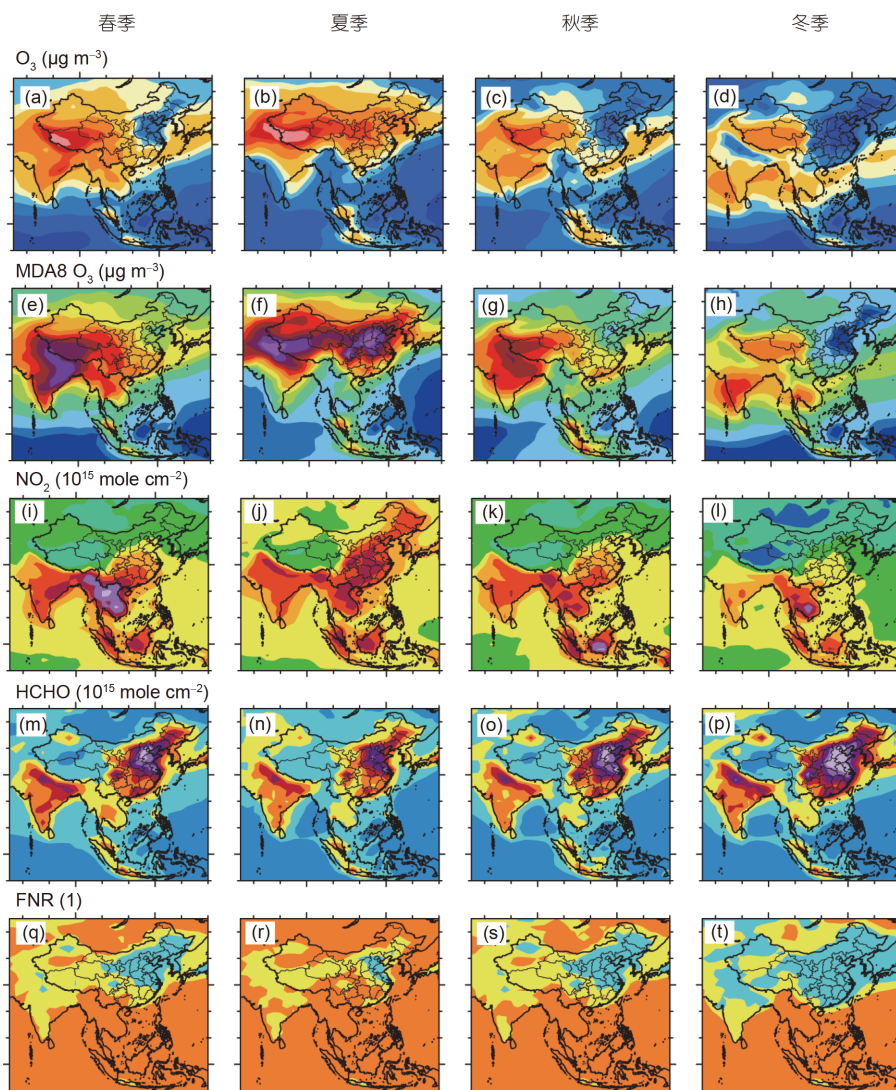
Figure 2 (Color online) Comparisons of observed (red) monthly averaged MDA8 O₃ concentrations in (a) BTH, (b) YRD, (c) PRD and (d) SCB in 2015 with simulations (blue). (e) Comparisons of annual observed O₃ concentrations (blue) and simulations in three cities (Delhi, Patna and Mumbai) in India in 2015. (f) The scatterplot of simulated versus observed values at regions in China and cites in India and the corresponding linear fitting line (red), correlation coefficient (R), and normalized mean bias (NMB)

致气溶胶对HO₂自由基吸收的减弱^[5], 从而导致O₃浓度上升. 所以中国京津冀、长三角、珠三角和四川盆地地区MDA8 O₃浓度月均高值均出现在暖季(4~10月). 京津冀、长三角和四川盆地地区2015年MDA8 O₃最高月均浓度出现在6或7月. 与其他三个区域不同, 珠三角区域呈现秋季(9月)最高的特点, 这是由于珠三角区域独特的天气形势. 研究表明, 珠三角区域在夏季受盛行南风 and 来自海洋的新鲜空气影响, 以及东亚季风相关的大量降水导致O₃水平下降. 而秋季来自北方的污染气团, 加上温暖的静稳天气, O₃浓度水平较高^[9].

图S2展示了2015年卫星观测与GEOS-Chem模拟的NO₂和HCHO对流层柱浓度的年均值分布. 对比发现, 尽管模式分辨率相较卫星较粗, 模拟结果存在部分区域高估的现象, 但是GEOS-Chem模式能够较为准确地重现NO₂和HCHO柱浓度的空间分布特征, 还原浓度高值与低值区, 体现了模拟结果的合理性.

2.2 2015年中国、南亚和东南亚O₃、MDA8 O₃浓度及其前体物浓度的季节分布特征

图3展示了BASE试验中O₃、MDA8 O₃、对流层



审图号: GS(2021)8566号

图 3 模式输出的2015年O₃ (a)–(d)、MDA8 O₃ (e)–(h)、对流层NO₂ (i)–(l)、HCHO柱浓度(m)–(p)和FNR (HCHO/NO₂) (q)–(t)季均值分布. FNR颜色为橙色代表NO_x控制区, 蓝色代表VOCs控制区, 黄色代表过渡区

Figure 3 Simulated distributions of seasonal mean concentrations of (a)–(d) O₃, (e)–(h) MDA8 O₃, (i)–(l) column concentrations of tropospheric NO₂ and (m)–(p) HCHO and (q)–(t) values of FNR (HCHO/NO₂) in 2015. The color of FNR is orange for the NO_x-limited regime, blue for the VOCs-limited regime, and yellow for the transition zone

NO₂、HCHO柱浓度和FNR (HCHO/NO₂, 衡量O₃生成受何种前体物控制的一个参数). FNR<1时O₃生成受VOCs控制, FNR>2时O₃生成受NO_x控制, FNR的值位于1和2之间时O₃生成处于过渡控制区, 这个区域减排NO_x或VOCs都可以达到控制O₃浓度的效果^[55]. 由图3可以看出, O₃与MDA8 O₃呈现出类似的季节分布特征, 其在中国的最高值均出现在夏季(6、7、8月), 分别为130.2和150.5 µg m⁻³, 春季(3、4、5月)次之, 秋(9、10、11月)、冬(同年12、1、2月)随后. 在夏季呈现较高浓度的中国中部和东部沿海地区在其他季节浓度较

低. 由于平流层入侵现象, 尤其在春季, 中国西藏高原O₃ (MDA8 O₃)浓度较高. 南亚(印度)与东南亚区域的O₃与MDA8 O₃浓度在春季最高.

南亚(印度)和东南亚区域的O₃春季均值分别为107.7 (134.7)和103.6 µg m⁻³, MDA8 O₃春季均值为124.0 (162.2)和122.2 µg m⁻³. 印度在春季的MDA8 O₃浓度高值分布均匀, 而在夏季浓度高值仅出现在印度北部. 大气中CH₄的氧化提供了对流层HCHO的背景浓度^[56], HCHO的时空变化受NMVOCs (包括人为源与生物源NMVOCs)的氧化控制. 由于生物源NMVOCs的排

放受温度和植被影响较大,所以中国HCHO对流层柱浓度高值一般出现在南部地区^[57]. 夏季由于温度较高,生物源NMVOCs排放与反应较为活跃,中国的大多东部地区也会出现高值^[58]. 而对流层NO₂浓度分布则与人为NO_x排放量分布较为一致,在冬季浓度最大,春秋季节随后,夏季最低,浓度高值分布在中国东部地区与四川盆地. 南亚与东南亚的对流层HCHO季均浓度高值出现在春季,对流层NO₂的季均浓度高值出现在冬季. 需要关注的是, FNR的季节变化, 尤其在中国十分明显. 在冬季, 中国大部分地区以及印度北部均处于VOCs控制区(FNR<1), 而在春秋季节VOCs控制区开始收缩, 中国南部地区由VOCs控制区转为过渡区(1≤FNR≤2), 而夏季中国大部分区域转换为过渡区与NO_x控制区(FNR>2), 仅长三角和京津冀部分区域处于VOCs控制区. 而南亚除冬季北部地区处于VOCs控制区外, 其余季节基本均处于NO_x控制区与过渡区. 东南亚地区除印度尼西亚小部分区域在四季均处于过渡区外, 其余国家均处于NO_x控制区, O₃浓度变化与该地区的NO_x排放量变化呈现较为线性的关系. 该结果与使用其他模式模拟、观测值分析等方法的研究结果较为一致^[55,58,59].

2.3 模拟的2015~2050年MDA8 O₃浓度变化

图4(a)~(e)展示了不同情景下中国、南亚和东南亚地区2015~2050年MDA8 O₃年均浓度的区域平均值的变化. 可以看出, 2015~2050年, 三个地区的MDA8 O₃

浓度在SSP1-1.9和SSP1-2.6情景下呈现出与其前体物排放量一致的下降趋势, SSP1-1.9路径下的下降幅度更大. 在SSP1-1.9 (SSP1-2.6)情景下, 中国、南亚和东南亚年均MDA8 O₃浓度从2015年的121.4、117.7和98.9 μg m⁻³分别下降至93.8 (101.8) μg m⁻³、90.9 (101.0) μg m⁻³和76.4 (86.0) μg m⁻³, 下降比例分别为22.8% (16.2%)、22.7% (14.2%)和22.8% (13.0%). SSP2-4.5情景下, 模拟的中国和南亚的MDA8 O₃浓度在2030年之前表现为升高, 在2040年之后开始下降, 而东南亚地区MDA8 O₃浓度持续下降. 相较于2015年, 2050年中国、南亚和东南亚O₃浓度分别变化了-1.2%、+1.4%和-4.7%. 这是由于在SSP2-4.5情景下, 2015~2050年中国区域NO_x人为排放的减排力度相较于SSP1情景要小一些, 并且NMVOC排放量在2020年较2015年有所上升(图1), 此后2020~2050年维持较为稳定的状态(图1b). 中国在春、秋、冬季的O₃生成在大部分区域均处于VOCs控制区(图3), 降低的NO_x浓度会导致SSP2-4.5情景下中国区域MDA8 O₃浓度在2020和2030年升高的现象.

三个地区的MDA8 O₃浓度在SSP3-7.0的情景下均呈持续增加趋势, 2050年浓度相较于2015年分别上升了8.3%、13.0%和10.9%. 在SSP5-8.5情景下, 中国和南亚区域的MDA8 O₃浓度在2015~2050年呈现持续上升的趋势, 东南亚的浓度增长至2040年开始下降, 中国、南亚和东南亚地区的2050年MDA8 O₃年均浓度相较于

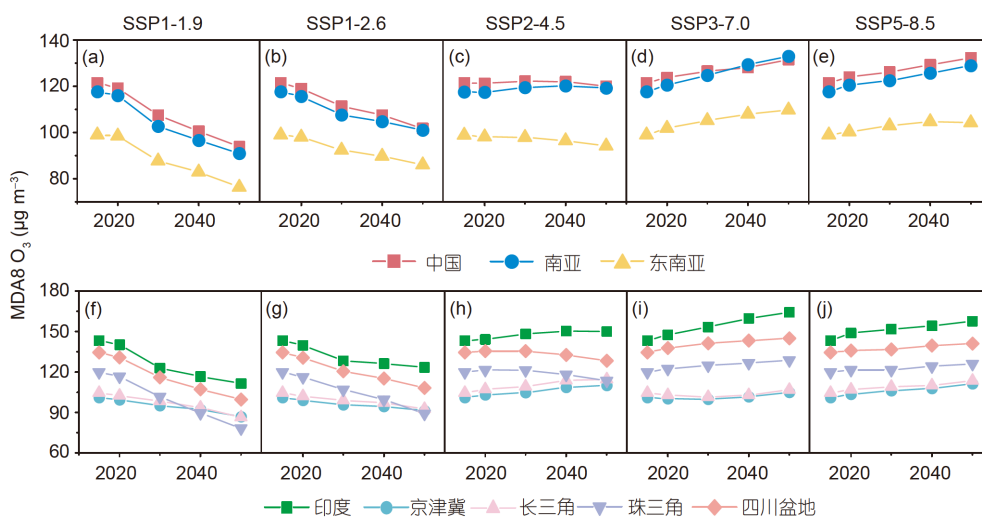


图4 (网络版彩色)不同情景下, 中国、南亚和东南亚(a)~(e)与印度、京津冀、长三角、珠三角和四川盆地(f)~(j) 2015~2050年MDA8 O₃年均浓度变化

Figure 4 (Color online) Changes in MDA8 O₃ concentrations averaged over (a)~(e) China, SA, SEA, (f)~(j) India, BTH, YRD, PRD and SCB from 2015 to 2050 under different pathways

2015年分别增加8.9%、9.6%和5.3%。SSP5-8.5情景下,中国NO_x排放量稳中有升, NMVOCs排放总量下降微弱,不当的前体物减排比例导致O₃浓度上升。

图4(f)~(j)展示了不同情景下2015~2050年印度、京津冀、长三角、珠三角和四川盆地MDA8 O₃年均值变化。可以看出, 2015~2050年, 印度的MDA8 O₃年均值在SSP1-1.9、SSP1-1.6、SSP2-4.5、SSP3-7.0和SSP5-8.5情景下的变化趋势与南亚变化趋势类似, 其年均浓度由2015年的143.3 μg m⁻³分别变化至2050年的111.5、123.4、150.0、164.3和157.7 μg m⁻³, 变化百分比为-22.2%、-13.9%、+4.7%、+14.6%、+10.0%。在选定的中国4个区域中, 京津冀、长三角、珠三角和四川盆地的2015年MDA8 O₃年均浓度分别为101.0、104.5、119.8和134.6 μg m⁻³。珠三角和四川盆地区域的年均MDA8 O₃变化区域与中国区域均值变化趋势一致, 而京津冀和长三角的MDA8 O₃年均浓度虽然在SSP1-1.9与SSP1-2.6情景下持续下降, 但是下降幅度较小, 分别下降了14.0%和17.2% (SSP1-1.9)、9.6%和11.3% (SSP1-2.6)。由于处在VOCs控制区, 京津冀和珠三角区域的MDA8 O₃均值在SSP2-4.5情景下呈现持续上升的状态, 2050年的MDA8 O₃浓度相较2015年分别变化了+8.8%和+9.7%, 在SSP3-7.0情景下则呈现先下降再上升的趋势, 2050年的区域均值分别为105.0和106.8 μg m⁻³。在SSP5-8.5情景下, 京津冀和长三角的MDA8 O₃浓度区域均值持续上升至2050年, 浓度值分别为111.2和113.6 μg m⁻³。图S1也呈现了不同情景下各地区2015~2050年MDA8 O₃年均浓度分布的变化情况。

从O₃空气质量治理角度出发, 为了衡量各情景下的达标时间, 我们分析了不同情景下京津冀、长三角、珠三角和四川盆地区域的MDA8 O₃第90百分位数浓度在2015~2050年的变化情况(图S4)。根据国家标准, 某地区某年的MDA8 O₃的第90百分位数浓度若低于160 μg m⁻³, 则该地区该年O₃达标, 否则不达标。结果表明, SSP1-1.9是最有利于中国O₃空气质量治理的情景, 在该情景下, 上述4个区域的O₃均能在2030年达标。而SSP3-7.0则是对中国O₃空气质量控制最不利的情景, 该情景下的4个区域MDA8 O₃第90百分位数浓度在2015~2050年持续增加, 达标无望。

从上述结果可以看出, 对中国而言, 仅SSP1-1.9和SSP1-2.6情景可以实现未来PM_{2.5}和O₃的协同减排。并且在上述情景下, 由于O₃浓度下降, 其相应的辐射强迫也会下降, 有利于减缓气候变化。而在与现阶段更相似

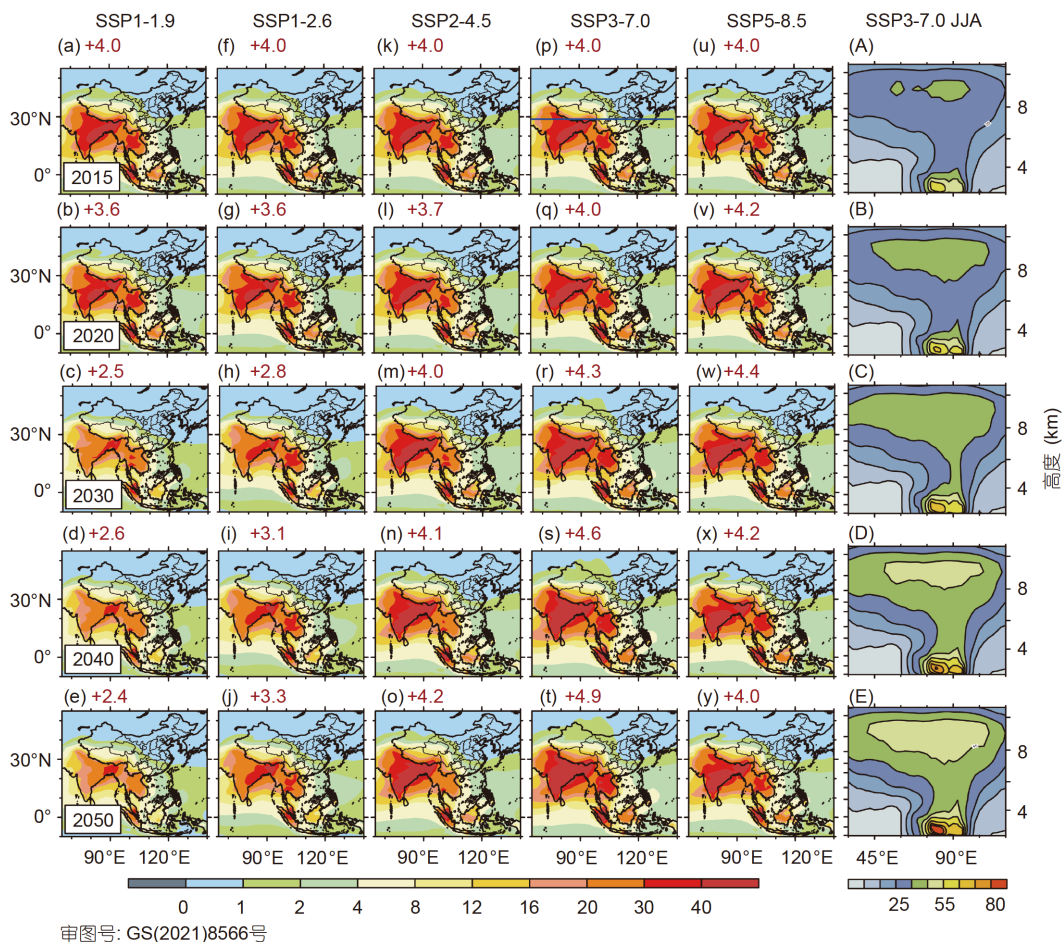
的SSP2-4.5情景下, 尽管中国NO_x排放大幅下降, 但是稳定的NMVOCs排放和上升的全球CH₄浓度, 会使2015~2030年中国MDA8 O₃浓度小幅抬升。2030年以后, NO_x排放下降到了一定阈值, 中国MDA8 O₃平均浓度开始下降。而在SSP3-7.0和SSP5-8.5情景下, 尤其是SSP3-7.0情景下, 由于其前体物排放与全球CH₄浓度的持续增加, 中国将无法实现O₃与PM_{2.5}的协同控制。

由于O₃的生成在南亚和东南亚主要受NO_x控制区和过渡区控制, 所以其浓度变化与前体物的排放变化基本一致。虽然在SSP1情景下, NMVOCs在2040和2050年出现小幅上升, 但是其NO_x排放下降程度相对较大, 导致其在SSP1-1.9和SSP1-2.6情景下均呈现持续下降的特征。

2.4 2015~2050年南亚和东南亚传输对中国O₃浓度的影响

图5(a)~(y)展示了不同未来情景下, 2015~2050年南亚和东南亚输送对中国MDA8 O₃年均浓度的影响。从图5(a)可以看出, 南亚和东南亚输送对中国年均MDA8 O₃浓度的影响范围较广, 涵盖珠三角、广西、云南、贵州、四川盆地、青海、西藏以及新疆部分地区。南亚与东南亚的输送会使上述区域2015的年均MDA8 O₃浓度上升3.0(珠三角、新疆等地)~19.0 μg m⁻³(云南省)。在SSP1-1.9和SSP1-2.6情景下, 南亚与东南亚的传输增加中国2015~2050年的MDA8 O₃浓度, 但增加量逐年波动降低, 由2015年的4.0 μg m⁻³(增量占年均值的3.3%)分别下降至2.4 μg m⁻³(2.6%)和3.3 μg m⁻³(3.2%)。在SSP2-4.5的情景下, 南亚和东南亚区域传输导致的中国O₃增加量从2015到2020年呈下降趋势, 随后逐10年上升, 至2050年升至4.2 μg m⁻³(3.5%), 与其前体物排放量变化较为一致。在SSP3-7.0情景下, 南亚和东南亚传输对中国MDA8 O₃浓度的影响在2015~2050年持续上升, 在2050年贡献了4.9 μg m⁻³(3.7%)的增量。在SSP5-8.5情景下, 南亚和东南亚传输对中国MDA8 O₃区域均值的增加贡献由2015年的4.0 μg m⁻³增加至2030年的4.4 μg m⁻³(3.4%)然后下降至2050年的4.0 μg m⁻³(3.0%)。

我们选择南亚和东南亚传输在2015~2050年对中国影响持续增加的SSP3-7.0, 研究了该情景下夏季南亚与东南亚传输对中国垂直方向上O₃的影响。图5(A)~(E)展示了SSP3-7.0情景下2015~2050年夏季O₃平均浓度



审图号: GS(2021)8566号

图 5 (a)~(y) 不同情景下, 2015~2050年南亚与东南亚传输对中国年均MDA8 O₃浓度(单位: $\mu\text{g m}^{-3}$)的影响(BASE或CTRL模拟结果减去NOSA-SEA模拟结果). 南亚和东南亚传输对中国MDA8 O₃年均浓度的影响的用红色数字(单位: $\mu\text{g m}^{-3}$)标注在图左上角. (A)~(E) SSP3-7.0情景下南亚与东南亚输送对中国垂直方向O₃浓度(单位: $\mu\text{g m}^{-3}$)的影响. (p)中的蓝色横线表示28°N剖面的区域

Figure 5 Simulated impacts of transport from SA and SEA on (a)~(y) annual concentrations of MDA8 O₃ under different scenarios and (A)~(E) vertical O₃ concentrations (units: $\mu\text{g m}^{-3}$) under SSP3-7.0 pathway from 2015 to 2050 (Results simulated by BASE or CTRL minus those from NOSASEA). The mean increase in MDA8 O₃ concentrations over China due to transport from SA and SEA averaged is marked in red in the upper left corner of each panel. The horizontal blue line in (p) indicates the location of 28°N vertical cross section

差值剖面图(纬度28°N, 经度30°~120°E, 穿过中国青藏高原、四川盆地和长三角等多个重要区域). 由图5可以看出, 南亚与东南亚的人为与生物质燃烧排放不仅会通过近地表O₃及其前体物的传输对中国产生影响, 还会影响中国的O₃浓度垂直廓线. 从2015~2050年, 南亚与东南亚地表排放对近地表与高空O₃浓度的影响量级和影响范围逐年增大, 高空与近地表高值区不断扩大, 120°E(长三角区域)上空的+25 $\mu\text{g m}^{-3}$ 增量廓线从2015年的9 km处下降至2050年的7 km处.

本文进一步探究了南亚和东南亚传输对中国珠三角、四川盆地和长三角3个区域MDA8 O₃浓度影响的月变化特征(图6). 2015年南亚和东南亚传输对上述3个

区域中四川盆地地区MDA8 O₃浓度影响最大, 使其年均浓度增加6.2 $\mu\text{g m}^{-3}$, 珠三角随后(增加4.7 $\mu\text{g m}^{-3}$), 长三角影响最小(增加0.6 $\mu\text{g m}^{-3}$). 图S2展示了2015年不同季节的地表、850 hPa和500 hPa的风场和垂直气压速度 ω , 可以看出地表和850 hPa高度的印度与青藏高原接壤的地区在春季、夏季和秋季, 尤其在春夏, 有较强的气团抬升, 可伴随着西风或西南风将污染物传输至中国.

南亚和东南亚的传输对四川盆地地区2015年MDA8 O₃的影响在2~5月均较大(均值增加8.5 $\mu\text{g m}^{-3}$), 其中春季的3月最高(+10.1 $\mu\text{g m}^{-3}$, +7.2% (传输浓度占当月浓度百分比)), 4月随后(+9.4 $\mu\text{g m}^{-3}$, +6.4%). 春季

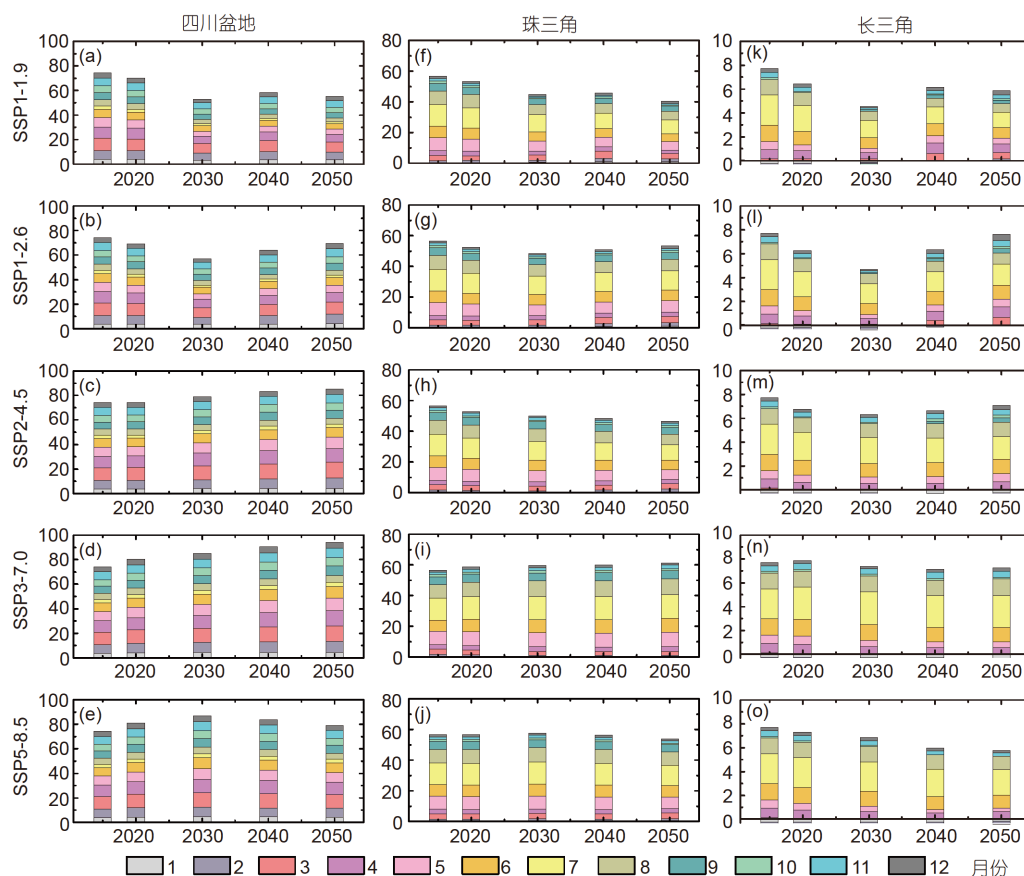


图6 不同情景下, 南亚和东南亚输送对中国2015~2050年四川盆地(a)~(e)、珠三角(f)~(j)和长三角(k)~(o)区域月均MDA8 O₃浓度的影响 (BASE/CTRL模拟结果减去NOSASEA模拟结果) (单位: μg m⁻³)
 Figure 6 The impact of transport from SA and SEA on monthly mean concentrations of MDA8 O₃ averaged over (a)~(e) PRD, (f)~(j) SCB and (k)~(o) YRD from 2015 to 2050 under difference scenarios (results simulated by BASE or CTRL minus those from NOSASEA) (units: μg m⁻³)

地表和850 hPa高度30°N附近有较强的西风与西南风^[60], 可以将南亚的污染物传输至中国内陆区域包括四川盆地地区(图S2)。南亚和东南亚输送对中国2015年珠三角地区5~8月MDA8 O₃浓度影响较大(平均增加9.8 μg m⁻³), 其中夏季的7月影响最大(+14.0 μg m⁻³, +10.4%), 8月次之(+9.1 μg m⁻³, +6.5%)。南亚与东南亚传输对2015年长三角在6~8月MDA8 O₃浓度贡献较大(平均增加1.7 μg m⁻³), 7月最高(+2.5 μg m⁻³, +1.7%), 6月次之(+1.4 μg m⁻³, +0.9%)。如图S2所示, 夏季地表和850 hPa处在10°~30°N区域盛行西南风, 有利于南亚和东南亚区域的污染物向中国沿海区域(如珠三角和长三角)输送^[61-64]。

从中长期来看, 2015~2030年南亚和东南亚传输对四川盆地2~5月的MDA8 O₃影响在SSP1情景下降低(SSP1-1.9情景下, 与2015年相比, 2030年传输在4月变化最大, 为3.5 μg m⁻³ (-36.5%)), 在SSP2-4.5、SSP3-

7.0和SSP5-8.5情景下增加(其中SSP3-7.0情景下5月上升最高, 为+1.5 μg m⁻³ (+20.1%))。2015~2030年南亚和东南亚对珠三角区域5~8月的MDA8 O₃影响在SSP1情景下降低(SSP1-1.9情景下7月下降最大为-3.0 μg m⁻³ (-21.1%)), 在SSP3-7.0和SSP5-8.5情景下增加(SSP3-7.0情景下7月增加1.2 μg m⁻³ (+8.5%))。与上述两个区域不同, 长三角地区2015~2030年6~8月MDA8 O₃浓度受南亚和东南亚传输影响在除SSP3-7.0以外的情景下均下降(7月在SSP1-1.9情景下降低1.1 μg m⁻³ (-43.1%)), 在SSP3-7.0情景下7月MDA8 O₃浓度增量增加0.2 μg m⁻³ (+7.5%)。因此, 2015~2030年中国区域由于南亚和东南亚输送对O₃污染防控导致的压力在SSP1-1.9情景下会逐年缓和, 在SSP3-7.0情景下压力较大。

从长期来看, 2015~2050年南亚和东南亚传输对中国MDA8 O₃浓度影响的变化特征也能由图6看出。在此挑选出SSP1-1.9和SSP3-7.0两个较为极端的情景进行

定量描述。在SSP1-1.9情景下, 南亚、东南亚输送对四川盆地2~5月MDA8 O₃的平均贡献从2015年+8.5 μg m⁻³减少至2050年的+6.3 μg m⁻³(其中4月下降最大, 为-3.5 μg m⁻³ (-36.8%))。南亚、东南亚输送对珠三角地区5~8月MDA8 O₃的平均贡献下降至6.4 μg m⁻³(其中7月下降最大, 为-5 μg m⁻³ (-34.8%))。对长三角区域6~8月平均增量下降至1.0 μg m⁻³(其中7月下降最大, 为-1.3 μg m⁻³ (-49.8%))。在SSP3-7.0情景下, 相较2015年, 2050年四川盆地地区2~5月MDA8 O₃平均增量增加至11.0 μg m⁻³(其中5月增加最大为+3.0 μg m⁻³ (+40.0%))。珠三角地区5~8月平均增量增加至11.0 μg m⁻³(其中7月增加最大为+1.4 μg m⁻³ (+9.7%))。长三角区域6~8月平均增量增加至1.8 μg m⁻³(其中7月增加+0.1 μg m⁻³ (+5.1%))。

Liu和Wang^[65]使用区域传输模型研究了《计划》实施期间(2013~2017年) O₃污染逐年加剧的现象, 结果表明2013~2017年的人为排放变化使京津冀、长三角、珠三角、四川盆地等经济发达的城市区域夏季(6~8月)MDA8 O₃浓度大幅增加, 最高可达12.2 ppb(在标况下约为26.1 μg m⁻³), 与不同情景下的2015~2050年南亚和东南亚传输对上述长三角、珠三角和四川盆地地区夏季MDA8 O₃浓度均值的影响(0.96~11.5 μg m⁻³)比较可以看出, 无论是最好或最坏的情景下, 南亚和东南亚排放对中国地区的影响都很显著, 并有可能加速经济发达的城市群区域的O₃增长, 抵消其他地区由于减排带来的O₃改善效果。探究2015~2050年南亚和东南亚传输对中国O₃浓度的影响对今后的O₃防治具有深远意义。

3 总结与展望

本文使用三维传输模型GEOS-Chem模式结合未来排放清单SSPs预估了不同情景下(SSP1-1.9、SSP1-2.6、SSP2-4.5、SSP3-7.0和SSP5-8.5) 2015~2050年中国、南亚和东南亚3个区域的MDA8 O₃浓度变化特征,

并假设在自然排放和气候条件不变的情况下, 定量分析了南亚和东南亚国家人为排放和生物质燃烧排放变化所导致的输送变化对中国地区O₃浓度的影响。在此基础上结合不同季节的风场与垂直气压速度进一步分布探究了南亚与东南亚传输对中国四川盆地、珠三角和长三角地区MDA8 O₃浓度影响的月变化特征。

南亚与东南亚传输对中国地区MDA8 O₃浓度有较为显著的影响, 可使2015年MDA8 O₃浓度均值上升4.0 μg m⁻³, 其影响在不同情景下的变化趋势与南亚和东南亚地区O₃前体物排放量的变化趋势基本一致。南亚和东南亚对中国四川盆地地区2~5月MDA8 O₃浓度影响较大, 其中3月最大, 4月次之; 对珠三角地区5~8月影响较大, 其中7月最大, 8月次之; 对长三角地区6~8月贡献较大, 其中7月最大, 6月次之。南亚和东南亚的传输会对长三角、珠三角和四川盆地地区的MDA8 O₃浓度造成较大影响, 从而可能会造成上述区域的O₃超标天数的上升, 抵消其他区域部分由于减排带来的O₃污染改善效果。但中国区域由于南亚和东南亚输送对O₃污染防控导致的压力在SSP1尤其是SSP1-1.9情景下会逐年缓和。

南亚和东南亚传输会从O₃传输和O₃前体物传输两个方面对中国O₃浓度造成影响, 其中O₃前体物的传输会引起O₃生成控制区的变化, 从而间接影响O₃浓度。文中所用开关人为和生物质燃烧排放的方法无法区分O₃及其前体物对中国O₃浓度的单独传输贡献, 具有一定局限性。在模拟未来人为排放和生物质燃烧排放变化导致的南亚和东南亚输送变化对中国大气臭氧浓度影响的试验中, 气象场和自然排放固定在2015年, 此方法无法涵盖未来气候变化(例如季风等的变化)对传输过程可能产生的影响。在后续的研究中, 若能考虑未来气候变化对传输造成的影响、分离南亚、东南亚O₃与其前体物对中国O₃浓度的单独贡献、深入研究周边国家污染物跨境传输对中国区域污染物的影响, 对中国大气污染治理政策的制定有更大的参考价值。

致谢 文中涉及的地图经自然资源部地图技术审查中心审查, 审图号为GS(2021)8566号。

参考文献

- 1 Zhai S, Jacob D J, Wang X, et al. Fine particulate matter (PM_{2.5}) trends in China, 2013–2018: Separating contributions from anthropogenic emissions and meteorology. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 11031–11041
- 2 Zhang Q, Zheng Y, Tong D, et al. Drivers of improved PM_{2.5} air quality in China from 2013 to 2017. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2019, 116: 24463–

24469

- 3 Dang R, Liao H. Radiative forcing and health impact of aerosols and ozone in China as the consequence of Clean Air Actions over 2012–2017. *Geophys Res Lett*, 2019, 46: 12511–12519
- 4 Shen L, Jacob D J, Liu X, et al. An evaluation of the ability of the Ozone Monitoring Instrument (OMI) to observe boundary layer ozone pollution across China: Application to 2005–2017 ozone trends. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 6551–6560
- 5 Li K, Jacob D J, Liao H, et al. A two-pollutant strategy for improving ozone and particulate air quality in China. *Nat Geosci*, 2019, 12: 906–910
- 6 Lu X, Zhang L, Wang X, et al. Rapid increases in warm-season surface ozone and resulting health impact in China since 2013. *Environ Sci Technol Lett*, 2020, 7: 240–247
- 7 Dai H, Zhu J, Liao H, et al. Co-occurrence of ozone and PM_{2.5} pollution in the Yangtze River Delta over 2013–2019: Spatiotemporal distribution and meteorological conditions. *Atmos Res*, 2021, 249: 105363
- 8 Lu X, Hong J, Zhang L, et al. Severe surface ozone pollution in China: A global perspective. *Environ Sci Technol Lett*, 2018, 5: 487–494
- 9 Fu Y, Liao H, Yang Y. Interannual and decadal changes in tropospheric ozone in China and the associated chemistry-climate interactions: A review. *Adv Atmos Sci*, 2019, 36: 975–993
- 10 Cohen A J, Brauer M, Burnett R, et al. Estimates and 25-year trends of the global burden of disease attributable to ambient air pollution: An analysis of data from the Global Burden of Diseases Study 2015. *Lancet*, 2017, 389: 1907–1918
- 11 Nuvoletto D, Petri D, Voller F. The effects of ozone on human health. *Environ Sci Pollut Res*, 2018, 25: 8074–8088
- 12 Lelieveld J, Evans J S, Fnais M, et al. The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale. *Nature*, 2015, 525: 367–371
- 13 Ainsworth E A, Yendrek C R, Sitch S, et al. The effects of tropospheric ozone on net primary productivity and implications for climate change. *Annu Rev Plant Biol*, 2012, 63: 637–661
- 14 Yue X, Unger N, Harper K, et al. Ozone and haze pollution weakens net primary productivity in China. *Atmos Chem Phys*, 2017, 17: 6073–6089
- 15 Feng Z, Hu E, Wang X, et al. Ground-level O₃ pollution and its impacts on food crops in China: A review. *Environ Pollut*, 2015, 199: 42–48
- 16 Myhre G, Aas W, Cherian R, et al. Multi-model simulations of aerosol and ozone radiative forcing due to anthropogenic emission changes during the period 1990–2015. *Atmos Chem Phys*, 2017, 17: 2709–2720
- 17 Seinfeld J H, Pandis S N. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. 2nd ed. New York: John Wiley & Sons, 2006
- 18 Milford J B, Gao D, Sillman S, et al. Total reactive nitrogen (NO_x) as an indicator of the sensitivity of ozone to reductions in hydrocarbon and NO_x emissions. *J Geophys Res*, 1994, 99: 3533–3542
- 19 Zou Y, Deng X J, Zhu D, et al. Characteristics of 1 year of observational data of VOCs, NO_x and O₃ at a suburban site in Guangzhou, China. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15: 6625–6636
- 20 Gong C, Liao H. A typical weather pattern for ozone pollution events in North China. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 13725–13740
- 21 Han H, Liu J, Shu L, et al. Local and synoptic meteorological influences on daily variability in summertime surface ozone in eastern China. *Atmos Chem Phys*, 2020, 20: 203–222
- 22 David L M, Ravishankara A R, Kodros J K, et al. Aerosol optical depth over India. *J Geophys Res Atmos*, 2018, 123: 3688–3703
- 23 Yang J, Kang S, Ji Z, et al. Modeling the origin of anthropogenic black carbon and its climatic effect over the Tibetan Plateau and surrounding regions. *J Geophys Res Atmos*, 2018, 123: 671–692
- 24 Ji Z, Kang S, Zhang D, et al. Simulation of the anthropogenic aerosols over South Asia and their effects on Indian summer monsoon. *Clim Dyn*, 2011, 36: 1633–1647
- 25 Chan L Y, Chan C Y, Liu H Y, et al. A case study on the biomass burning in southeast Asia and enhancement of tropospheric ozone over Hong Kong. *Geophys Res Lett*, 2000, 27: 1479–1482
- 26 Jian Y, Fu T M. Injection heights of springtime biomass-burning plumes over peninsular Southeast Asia and their impacts on long-range pollutant transport. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14: 3977–3989
- 27 Zheng J, Hu M, Du Z, et al. Influence of biomass burning from South Asia at a high-altitude mountain receptor site in China. *Atmos Chem Phys*, 2017, 17: 6853–6864
- 28 Lin C Y, Hsu H M, Lee Y H, et al. A new transport mechanism of biomass burning from Indochina as identified by modeling studies. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 7901–7911
- 29 Fu J S, Hsu N C, Gao Y, et al. Evaluating the influences of biomass burning during 2006 BASE-ASIA: A regional chemical transport modeling. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12: 3837–3855
- 30 Wang Y, Shen L, Wu S, et al. Sensitivity of surface ozone over China to 2000–2050 global changes of climate and emissions. *Atmos Environ*, 2013, 75: 374–382
- 31 Liu Q, Lam K S, Jiang F, et al. A numerical study of the impact of climate and emission changes on surface ozone over South China in autumn time

- in 2000–2050. *Atmos Environ*, 2013, 76: 227–237
- 32 Jiang H, Liao H, Pye H O T, et al. Projected effect of 2000–2050 changes in climate and emissions on aerosol levels in China and associated transboundary transport. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13: 7937–7960
- 33 Lee J B, Cha J S, Hong S C, et al. Projections of summertime ozone concentration over East Asia under multiple IPCC SRES emission scenarios. *Atmos Environ*, 2015, 106: 335–346
- 34 Zhu J, Liao H. Future ozone air quality and radiative forcing over China owing to future changes in emissions under the Representative Concentration Pathways (RCPs). *J Geophys Res Atmos*, 2016, 121: 1978–2001
- 35 Li K, Liao H, Zhu J, et al. Implications of RCP emissions on future PM_{2.5} air quality and direct radiative forcing over China. *J Geophys Res Atmos*, 2016, 121: 12985–13008
- 36 Hong C, Zhang Q, Zhang Y, et al. Impacts of climate change on future air quality and human health in China. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2019, 116: 17193–17200
- 37 Ebi K L, Hallegatte S, Kram T, et al. A new scenario framework for climate change research: Background, process, and future directions. *Clim Change*, 2014, 122: 363–372
- 38 Kriegler E, Edmonds J, Hallegatte S, et al. A new scenario framework for climate change research: The concept of shared climate policy assumptions. *Clim Change*, 2014, 122: 401–414
- 39 O'Neill B C, Kriegler E, Riahi K, et al. A new scenario framework for climate change research: The concept of shared socioeconomic pathways. *Clim Change*, 2014, 122: 387–400
- 40 van Vuuren D P, Kriegler E, O'Neill B C, et al. A new scenario framework for climate change research: Scenario matrix architecture. *Clim Change*, 2014, 122: 373–386
- 41 Riahi K, van Vuuren D P, Kriegler E, et al. The shared socioeconomic pathways and their energy, land use, and greenhouse gas emissions implications: An overview. *Glob Environ Change*, 2017, 42: 153–168
- 42 Kota S H, Guo H, Myllyvirta L, et al. Year-long simulation of gaseous and particulate air pollutants in India. *Atmos Environ*, 2018, 180: 244–255
- 43 Bey I, Jacob D J, Yantosca R M, et al. Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. *J Geophys Res*, 2001, 106: 23073–23095
- 44 Park R J, Jacob D J, Field B D, et al. Natural and transboundary pollution influences on sulfate-nitrate-ammonium aerosols in the United States: Implications for policy. *J Geophys Res*, 2004, 109: D15204
- 45 Pye H O T, Liao H, Wu S, et al. Effect of changes in climate and emissions on future sulfate-nitrate-ammonium aerosol levels in the United States. *J Geophys Res*, 2009, 114: D01205
- 46 Park R J, Jacob D J, Chin M, et al. Sources of carbonaceous aerosols over the United States and implications for natural visibility. *J Geophys Res*, 2003, 108: 4355
- 47 Fairlie T D, Jacob D J, Park R J. The impact of transpacific transport of mineral dust in the United States. *Atmos Environ*, 2007, 41: 1251–1266
- 48 Alexander B, Park R J, Jacob D J, et al. Sulfate formation in sea-salt aerosols: Constraints from oxygen isotopes. *J Geophys Res*, 2005, 110: D10307
- 49 Bian H, Prather M J. Fast-J2: Accurate simulation of stratospheric photolysis in global chemical models. *J Atmos Chem*, 2002, 41: 281–296
- 50 Jacob D J. Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone. *Atmos Environ*, 2000, 34: 2131–2159
- 51 Evans M J, Jacob D J. Impact of new laboratory studies of N₂O₅ hydrolysis on global model budgets of tropospheric nitrogen oxides, ozone, and OH. *Geophys Res Lett*, 2005, 32: L09813
- 52 Thornton J A, Jaeglé L, McNeill V F. Assessing known pathways for HO₂ loss in aqueous atmospheric aerosols: Regional and global impacts on tropospheric oxidants. *J Geophys Res*, 2008, 113: D05303
- 53 Liu H, Jacob D J, Bey I, et al. Constraints from ²¹⁰Pb and ⁷Be on wet deposition and transport in a global three-dimensional chemical tracer model driven by assimilated meteorological fields. *J Geophys Res*, 2001, 106: 12109–12128
- 54 Wesely M L. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmos Environ*, 1989, 23: 1293–1304
- 55 Jin X, Holloway T. Spatial and temporal variability of ozone sensitivity over China observed from the ozone monitoring instrument. *J Geophys Res Atmos*, 2015, 120: 7229–7246
- 56 Millet D B, Jacob D J, Turquety S, et al. Formaldehyde distribution over North America: Implications for satellite retrievals of formaldehyde columns and isoprene emission. *J Geophys Res*, 2006, 111: D24S02
- 57 Duncan B N, Yoshida Y, Damon M R, et al. Temperature dependence of factors controlling isoprene emissions. *Geophys Res Lett*, 2009, 36: L05813
- 58 Jin X, Fiore A M, Murray L T, et al. Evaluating a space-based indicator of surface ozone-NO_x-VOC sensitivity over midlatitude source regions and application to decadal trends. *J Geophys Res Atmos*, 2017, 122: 10439–10461

- 59 Wang P, Chen Y, Hu J, et al. Attribution of tropospheric ozone to NO_x and VOC emissions: Considering ozone formation in the transition regime. *Environ Sci Technol*, 2019, 53: 1404–1412
- 60 Xu R, Tie X, Li G, et al. Effect of biomass burning on black carbon (BC) in South Asia and Tibetan Plateau: The analysis of WRF-Chem modeling. *Sci Total Environ*, 2018, 645: 901–912
- 61 Zhang L, Liao H, Li J. Impacts of Asian summer monsoon on seasonal and interannual variations of aerosols over eastern China. *J Geophys Res*, 2010, 115: D00K05
- 62 Fu C, Ding A, Jian W. Review on Studies of Air Pollution and Climate Change Interactions in Monsoon Asia. 3rd ed. Singapore: World Scientific, 2017. 315–326
- 63 Zhang R, Xu X, Wang Y. Impacts of subgrid orographic drag on the summer monsoon circulation and precipitation in East Asia. *J Geophys Res Atmos*, 2020, 125: e32337
- 64 Gao C, Chen H, Li G, et al. Land-atmosphere interaction over the Indo-China Peninsula during spring and its effect on the following summer climate over the Yangtze River basin. *Clim Dyn*, 2019, 53: 6181–6198
- 65 Liu Y, Wang T. Worsening urban ozone pollution in China from 2013 to 2017—Part 1: The complex and varying roles of meteorology. *Atmos Chem Phys*, 2020, 20: 6305–6321

补充材料

图S1 中国、南亚和东南亚地理位置以及中国京津冀、长三角、珠三角和四川盆地的定义

图S2 2015年卫星观测与GEOS-Chem模拟的年均 NO_2 与HCHO对流层柱浓度分布对比

图S3 不同情景下, 2015~2050年MDA8 O_3 年均浓度分布

图S4 模拟的不同情景下京津冀、长三角、珠三角和四川盆地地区的2015~2050年MDA8 O_3 第90百分位数浓度

图S5 2015年不同季节的地表、850 hPa和500 hPa的风场和垂直气压速度分布

表S1 SSPs情景下中国、南亚和东南亚地区2015年各国不同污染物生物质燃烧排放量占人为排放与生物质燃烧排放总量的百分比

本文以上补充材料见网络版csb.scichina.com. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

Summary for “2015–2050年南亚与东南亚输送对中国大气臭氧浓度的影响”

The impacts of transport from South and Southeast Asia on O₃ concentrations in China from 2015 to 2050

Ye Wang & Hong Liao*

Jiangsu Key Laboratory of Atmos Environ Monitoring and Pollution Control, Jiangsu Collaborative Innovation Center of Atmos Environ and Equipment Technology, School of Environmental Science and Engineering, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China

* Corresponding author, E-mail: hongliao@nuist.edu.cn

Although the significant decrease in PM_{2.5} concentrations across China in response to the Air Pollution Prevention and Control Action Plan during 2013–2017, the ozone (O₃) concentrations have increased rapidly. Previous studies have revealed that long-range transboundary transport from South Asia (SA) and Southeast Asia (SEA) greatly influences the O₃ concentrations in China; however, these studies majorly focused on biomass burning events. The impact of anthropogenic emissions from neighboring countries on China's O₃ pollution has not been comprehensively and quantitatively investigated. In addition, the analysis of the impact of future transport from SA and SEA on O₃ concentrations in China is required. Based on (Shared Socioeconomic Pathways) SSPs, a new set of future emission inventories, this study estimated the MDA8 O₃ concentrations in China, SA, and SEA under different SSPs scenarios from 2015 to 2050 with varying anthropogenic and open burning emissions using a three-dimensional chemical transport model (GEOS-Chem). Several sensitivity experiments were simulated to quantitatively assess the impact of anthropogenic and open burning emission changes in SA and SEA on the future atmospheric O₃ concentrations in China. Transport from SA and SEA can influence MDA8 O₃ concentrations in China widely, covering the Pearl River Delta (PRD), Guangxi, Yunnan, Guizhou, Sichuan Basin (SCB), Qinghai, Tibet and parts of Xinjiang. It contributed to an increase in annual mean MDA O₃ concentrations over above regions by 3.0–19.0 μg m⁻³ in 2015, and led to an increase in MDA8 O₃ concentration in China by 4.0 μg m⁻³. Monthly variation characteristics of the impacts of SA and SEA transport on concentrations of MDA O₃ in SCB, PRD, and YRD regions were further explored in this study. In 2015, the regional transport from SA and SEA had the highest impact on the MDA8 O₃ concentrations in SCB, increased its annual mean concentration by 6.2 μg m⁻³, followed by PRD (+4.7 μg m⁻³), and YRD (+0.6 μg m⁻³). Accompanied by the strong westerly and southwesterly winds on the surface and 850 hPa near 30°N in spring, the influence of transport from SA and SEA on MDA8 O₃ concentrations was highest in SCB in March in 2015 (+10.1 μg m⁻³, +7.2%), followed by April (+9.4 μg m⁻³, +6.4%). Due to the prevailing southwesterly winds at 10°N–30°N on the surface and 850 hPa in summer, the contribution attained its peak in July (+14.0 μg m⁻³, +10.4%), followed by August (+9.1 μg m⁻³, +6.5%) in PRD, while it peaked in July (+2.5 μg m⁻³, +1.7%), followed by June (+1.4 μg m⁻³, +0.9%) in YRD. Based on medium and long-term perspectives (2015–2030), the impact of transport from SA and SEA on MDA8 O₃ concentrations in SCB, PRD, and YRD from 2015 to 2030 were simulated. Substantive reductions under SSP1, especially under SSP1-1.9 pathway were observed (the largest decline in SCB was -3.5 μg m⁻³ (-36.5%) in April, and -3.0 μg m⁻³ (-21.1%) and -1.1 μg m⁻³ (-43.1%) in PRD and YRD, respectively, in July). The MDA8 O₃ concentrations in SCB, PRD, and YRD during 2015–2030 were projected to increase under SSP3-7.0 scenario (the highest increase in the SCB will be +1.5 μg m⁻³ (+20.1%) in May, and +1.2 μg m⁻³ (+8.5%) and 0.2 μg m⁻³ (+7.5%) in July, respectively, in PRD and YRD). Therefore, controlling O₃ pollution due to the transport from SA and SEA in China during 2015–2030 will be easier year by year under the SSP1-1.9 scenario, while greater efforts would be required under the SSP3-7.0 pathway. The long-term (2015–2050) trend of MDA8 O₃ concentrations in the above three regions affected by the transport from SA and SEA is similar to that of the mid-to-long term.

SSPs scenarios, anthropogenic and open burning emissions, South Asia and Southeast Asia, transport, O₃ concentrations

doi: [10.1360/TB-2021-0707](https://doi.org/10.1360/TB-2021-0707)