

春季境外生物质燃烧对东亚臭氧污染的影响

韩函^a, 柳竞先^a, 章迅^b

(南京大学 a.大气科学学院, b.国际地球系统科学研究所, 南京 210023)

摘要: **目的** 定量研究境外生物质燃烧对春季东亚地表臭氧浓度的影响。**方法** 利用敏感性分析法与线性加权法, 使用全球化学传输模式 GEOS-Chem 模拟春季全球不同地区生物质燃烧排放对东亚地表臭氧的贡献。**结果** 春季全球生物质燃烧对东亚地表臭氧贡献在 $1 \times 10^{-9} \sim 5 \times 10^{-9}$ (按体积计算) 之间, 其中 75% 是境外生物质燃烧的贡献。境外生物质燃烧对中国南部的影响比东亚其他区域更大, 可达 3×10^{-9} 。在所有境外源区中, 生物质燃烧对东亚地表臭氧影响最大的源区是非洲与东南亚。前者是中国东北部、中国北部、朝鲜及日本地区的主要境外贡献区域。后者对中国南部的相对贡献最大。**结论** 春季境外生物质燃烧对东亚地表臭氧的贡献具有一定的空间差异。境外生物质燃烧对东亚空气质量有重要影响。东亚地表臭氧污染治理需要世界各国及区域之间的良好合作。

关键词: 对流层臭氧; 臭氧污染; 生物质燃烧; 源汇关系; 污染物远距离传输

DOI: 10.7643/issn.1672-9242.2019.06.017

中图分类号: X511

文献标识码: A

文章编号: 1672-9242(2019)06-0107-08

Influences of Biomass Burning Emissions in Foreign Regions on Springtime Surface Ozone over East Asia

HAN Han^a, LIU Jing-xian^a, ZHANG Xun^b

(a. School of Atmospheric Sciences, b. International Institute for Earth System Science, Nanjing University, Nanjing 210023, China)

ABSTRACT: **Objective** To study the impact of biomass burning emissions from foreign regions on surface ozone over East Asia in the spring. **Methods** Combining a sensitivity test and the linear weighting method, we simulated the individual contribution of biomass burning from different foreign regions in the world to surface ozone in East Asia with a global chemical transport model, GEOS-Chem. **Results** Biomass burning in the Spring of the world contributed $1 \times 10^{-9} \sim 5 \times 10^{-9}$ to surface ozone in East Asia, in which, fire-induced ozone from foreign regions accounted for 75%. Fire-induced ozone from foreign regions contributed more to South China than to other regions in East Asia, reaching approximately 3×10^{-9} . Among all the foreign regions, Southeast Asia and Africa were the largest contributors. Fire-induced ozone from Southeast Asia mainly influenced surface ozone in South China, while Africa imposed the largest foreign influences over Northeast China, North China, Korea, and Japan. The later had relatively large influences on South China. **Conclusion** The influence of biomass burning in foreign regions to springtime surface ozone in East Asia varies largely in space. Biomass burning in foreign regions can impact air quality in East Asia. Regional and international collaborations are needed for ozone pollution control in East Asia.

收稿日期: 2019-01-30; 修订日期: 2019-03-20

基金项目: 科技部国家重点基础研究计划课题 (2016YFA0600204); 国家自然科学基金项目 (91544230, 41375140); 科技部国家重点基础研究计划课题 (2014CB441203)

作者简介: 韩函 (1994—), 男, 江苏淮安人, 博士研究生, 主要研究方向为空气污染与气候变化。

通讯作者: 柳竞先 (1959—), 女, 教授, 主要研究方向为大气环境、大气和陆地相互作用以及大气和陆面遥感。

KEY WORDS: tropospheric ozone; ozone pollution; biomass burning; source-receptor relationship; long-range transport of pollution

臭氧(O_3)是一种危害人体健康与植被生长的大气污染物。近地面臭氧主要是在光照条件下,由一氧化碳(CO)与挥发性有机物(VOCs)及氮氧化物(NO_x)通过光化学反应生成^[1],少部分来自平流层向下传输^[2]。伴随着经济发展、工业化、城市化等过程,中国臭氧污染问题严重,诱发了一系列经济、社会、环境问题,引起中国及世界的广泛关注^[3-4]。近20年来,中国、日本、韩国等东亚地区的臭氧浓度呈现显著上升趋势^[5-6]。

地表臭氧浓度主要受排放及气象条件等因素的影响。这些因素均可以影响东亚地表臭氧浓度的逐日变化、季节变化、年际变化及趋势^[7-8]。从长期看, Sun^[9]等指出,1949年至2015年间,中国人为源 NO_x 、CO及非甲烷挥发性有机物(NMVOCs)的排放平均每年分别增长了5.9%、3.8%、4.6%。人为源排放的增加是中国臭氧浓度呈上升趋势的主要因素。从短期趋势看, Zheng^[10]等发现,2010年至2017年间,中国人为源 NO_x 的排放减少了17%,CO排放减少了27%,NMVOCs排放增加了11%。中国臭氧浓度在这几年仍在上升^[11],包括天气、气候等多尺度系统的气象条件可通过化学反应与物理传输两种途径影响地表臭氧浓度^[12]。例如在反气旋中心地区,阳光充足,风速较低,利于臭氧生成与积聚;气旋中心地区则情况相反^[4, 13]。台风来临前,外围的下沉气流、高温、晴朗天气可使沿海地区地表臭氧浓度升高^[14]。东亚夏季风越强,中国南部臭氧地表浓度越高^[15-17]。

通过大气环流的传输作用,区域性臭氧浓度受本地与外来臭氧及其前体物的影响^[18-23]。由于对流层臭氧具有1周至1月的寿命,中国境内高臭氧浓度对下风向地区有显著影响,如韩国、日本^[24-25]。许多研究表明,通过跨太平洋与跨大西洋传输,东亚的人为源排放会增加北美及欧洲的臭氧浓度^[26-28]。然而,虽然有研究认为北美人为源对东亚地表臭氧的贡献与东亚对北美的贡献相当,但是境外排放源对东亚臭氧的影响却没有得到足够的重视,相关研究较少^[29-30]。

臭氧不能直接从生物质燃烧中产生,但生物质燃烧是臭氧前体物的重要来源^[31],生物质燃烧对东亚地表臭氧有显著影响^[32-33]。例如,6月份中国东部农业秸秆燃烧使长三角地区臭氧浓度增加27%~39%^[34]。Chan等^[35]发现,东南亚地区生物质燃烧占全球总生物质燃烧对香港地表CO影响的50%,说明了境外生物质燃烧排放对东亚空气污染的重要影响。目前关于境外生物质燃烧对东亚臭氧影响的研究十分欠缺,相关认识不充分。

文中基于一个在大气化学领域广泛应用的全球大气化学传输模式GEOS-Chem,使用敏感性分析法

与线性加权法,量化春季全球各个地区生物质燃烧对东亚地表臭氧浓度的贡献,为东亚臭氧污染控制提供科学依据。春季是东亚臭氧浓度比较易于受境外影响的季节^[19, 22-23],文献中报道过春季时境外生物质燃烧中产生的空气污染物对东亚的影响^[36],因此本研究选取春季(3—5月)作为研究季节。春季全球生物质燃烧的空间分布特征如图1所示。火点数据来源于MODIS Collection 6产品(<https://earthdata.nasa.gov/earth-observation-data/near-real-time/firms>)。春季时,东南亚地区、非洲西部、非洲南部、北美南部、澳大利亚北部生物质燃烧较为显著。文中,东亚内部生物质燃烧对东亚臭氧的贡献称为本地贡献,东亚外部生物质燃烧对东亚臭氧的贡献称为境外贡献。

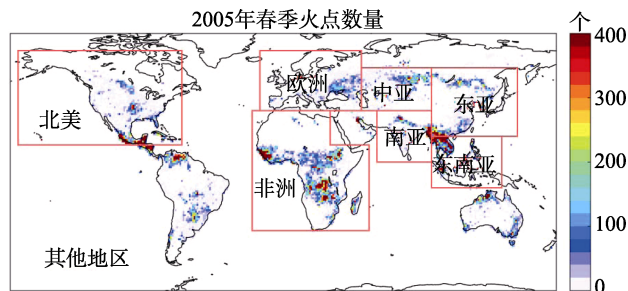


图1 2005年春季全球火点数量分布(格点为 $1^\circ \times 1^\circ$)

1 模式介绍与方法

GEOS-Chem^[37](<http://geos-chem.org>)是由哈佛大学开发并管理的三维全球化学传输模式,包含较为全面的对流层化学机制。它由美国航空航天局(NASA)的全球建模与同化办公室(Global Modeling and Assimilation Office, GMAO)研发的同化气象场数据驱动。前人的很多研究已经验证了GEOS-Chem模拟的对流层臭氧浓度在全球不同地区具有很强的可靠性,如北美^[38, 40]及东亚^[23, 38-40]。在之前关于臭氧远距离传输的研究中,笔者采用了与本研究基本相同的排放源及气象场,并利用Ozonesonde探空及TES卫星观测对模拟进行了详细验证,结果较为理想^[22-23]。

本研究使用MERRA气象场数据驱动GEOS-Chem(v9-02),空间水平分辨率是 2.5° 经度 $\times 2^\circ$ 纬度,垂直方向共47层。传输与化学时间步长分别是10、20 min。使用的人为源排放清单包括基于2000年的EDGAR3.2全球源,并在部分地区使用区域源替换,如2006年INTEX-B亚洲排放源^[41]、2005年美国NEI05排放源、2005年欧洲EMEP排放源等。生物质燃烧与植被排放源分别使用GFED3^[42]与MEG-

AN2.1^[43]。闪电 NO_x 排放的计算基于 Allen^[44]及 Ott^[45]等提出的方案。

根据全球不同地区的生物质燃烧排放特征及其对东亚影响的可能性大小，将全球分为 8 个地区，分别是东亚（95°E–150°E, 20°N–60°N）、北美（170°W–65°W, 15°N–70°N）、欧洲（15°E–50°E, 35°N–70°N）、非洲（20°W–30°E, 15–35°N 以及 20°W–55°E, 35°S–15°N）、中亚（50°E–95°E, 35°N–60°N）、南亚（60°E–95°E, 5°N–35°N）、东南亚（95°E–140°E, 10°S–20°N）及其他地区（见图 1）。然后使用敏感性分析（开关源）的方法，定量不同地区生物质燃烧的贡献。本研究共进行 1 次控制实验（CE）及 9 次敏感性实验（SE1–SE9）（见表 1）。每个实验的模拟时间是 2004 年 3 月—2005 年 5 月（2004 年 3 月—2005 年 2 月用作模式“热启动”）。在其中一次敏感性实验中，关闭臭氧前体物的全球所有生物质燃烧排放（SE1）。然后将控制实验结果与此敏感性实验模拟结果作差，即可得到全球生物质燃烧对臭氧的贡献。在另外 8 次敏感性实验（SE2—SE9）中，分别关闭 8 个地区的生物质燃烧排放源。因为臭氧的生成具有化学非线性特征，所以本研究使用式（1）的线性加权法处理后 8 种敏感性实验的结果^[30,46]。对于每一个格点，针对不同地区敏感性实验结果之间的比例关系，然后将全球生物质燃烧排放的贡献线性分配到这 8 个地区。

$$c_{O_3k} = \frac{c_{CE} - c_{SE_k}}{\sum_{i=2}^9 (c_{CE} - c_{SE_i})} \times (c_{CE} - c_{SE_1}) \quad (1)$$

式中： c_{O_3k} 指地区 k 生物质燃烧排放引起的臭氧浓度； c_{SE_k} 指地区 k 对应的敏感性实验结果； c_{SE_i} 指地区 i 对应的敏感性实验结果。

表 1 敏感性实验设计

实验名称	方案描述
控制实验（CE）	打开所有人及自然排放源
敏感性实验 1（SE1）	关闭全球生物质燃烧排放源
敏感性实验 2（SE2）	关闭东亚生物质燃烧排放源
敏感性实验 3（SE3）	关闭北美生物质燃烧排放源
敏感性实验 4（SE4）	关闭欧洲生物质燃烧排放源
敏感性实验 5（SE5）	关闭非洲生物质燃烧排放源
敏感性实验 6（SE6）	关闭中亚生物质燃烧排放源
敏感性实验 7（SE7）	关闭南亚生物质燃烧排放源
敏感性实验 8（SE8）	关闭东南亚生物质燃烧排放源
敏感性实验 9（SE9）	关闭其他地区生物质燃烧排放源

2 结果分析

2.1 境外与本地生物质燃烧的贡献

GEOS-Chem 模拟的春季全球地表臭氧浓度及全

球生物质燃烧对此臭氧的贡献如图 2 所示。春季中国西部青藏高原地区臭氧浓度较高（见图 2a），可能是因为此地海拔较高，春季平流层臭氧向下传输的贡献较大^[8,47]。从绝对值来看（见图 2b），春季时全球生物质燃烧对东亚不同区域地表臭氧浓度的贡献约为 $1 \times 10^{-9} \sim 5 \times 10^{-9}$ ，对中国南部的西南区域影响最大。从相对值来看（见图 3a），春季时因全球生物质燃烧产生的臭氧占东亚地区地表臭氧的 2%~5%。生物质燃烧对中国南部和东北部贡献较大，对中国北部与朝鲜及日本地区贡献较小。从区域平均看，春季全球生物质燃烧对东亚地表的贡献为 2%~3%（见图 3b）。有研究指出，春季全球人为源排放对东亚地表贡献约在 $4 \times 10^{-9} \sim 20 \times 10^{-9}$ ^[19,30]。

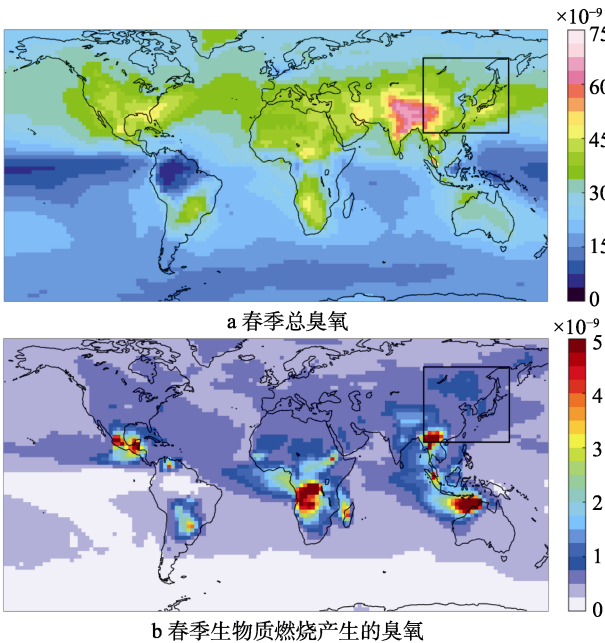


图 2 GEOS-Chem 模拟的 2005 年春季地表总臭氧及因全球生物质燃烧产生臭氧的水平分布

春季本地与境外生物质燃烧对东亚地表臭氧浓度贡献的水平分布如图 4 所示，本地与境外占全球总生物质燃烧排放对东亚地表臭氧浓度贡献的比例如图 5 所示。从图 4 和图 5 可以看出，基本在东亚所有地区，境外生物质燃烧的贡献大于境内。相较于其他子区域，本地生物质燃烧的贡献在中国东北部与中国南部更大，可达总生物质燃烧贡献的 40%~50%。在东亚各个地区，境外生物质燃烧的贡献基本可占总生物质燃烧贡献的 60%以上。境外生物质燃烧对中国南部的贡献最大，可达 3×10^{-9} 。

2.2 全球各个地区生物质燃烧的贡献

在春季全球生物质燃烧排放对东亚地表臭氧的贡献中，各个地区所占的比例如图 6 所示。从东亚平均看，本地生物质燃烧的贡献占比为 25%。在外部源区中，非洲与东南亚的生物质燃烧最重要，分别占总

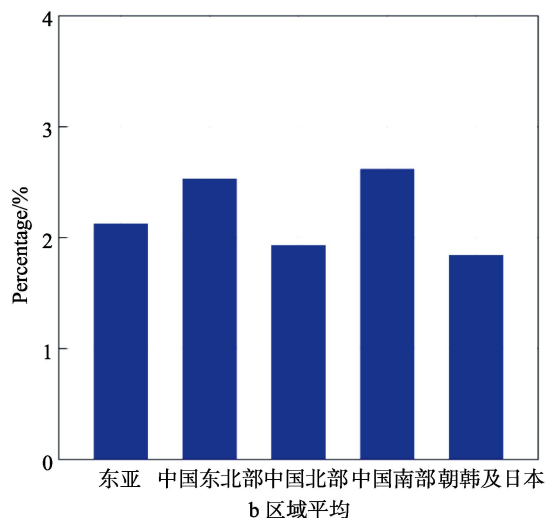
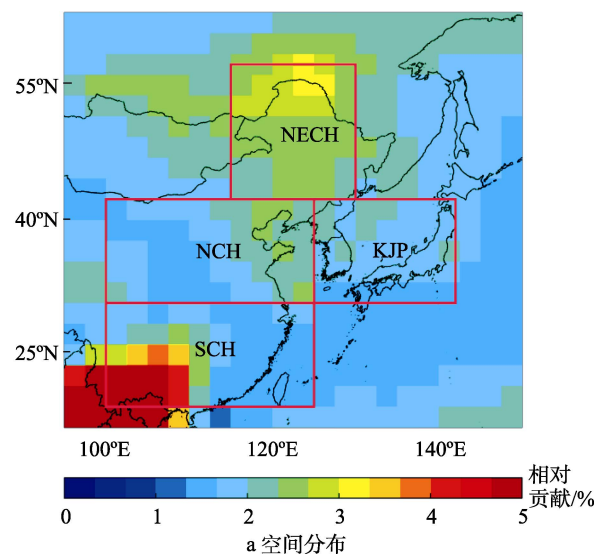


图3 2005年春季全球总生物质燃烧对东亚地区地表臭氧相对贡献的水平分布及其区域平均值

生物质燃烧对东亚贡献的23%与21%。北美、欧洲、中亚与南亚的生物质燃烧均分别占全球生物质燃烧贡献的10%以下。

从图4和图5可以看出,境外生物质燃烧对东亚臭氧的影响存在一定的空间差异性,因此更细致地分析全球不同地区对东亚不同子区域的贡献,如图7所示。东亚子区域包括中国东北部(Northeast China, NECH)、中国北部(North China, NCH)、中国南部(South China, SCH)与朝鲜及日本(Korean Peninsula and Japan, KJP)。由于西伯利亚地区的野火,东亚对中国东北部的贡献占全球生物质燃烧贡献的38%,比东亚其他子区域的影响更大(见图7a)。春季是东南亚地区生物质燃烧频发的季节,东南亚生物质燃烧对中国南部臭氧影响显著,占全球总生物质燃烧对中国南部臭氧贡献的37%(见图7c)。春季非洲也存在大面积生物质燃烧,其产生的臭氧前体物及臭氧可通过哈德莱环流及西风带传输至东亚^[22]。非洲生物质燃烧对中国东北部、中国北部、中国南部与朝鲜及日本

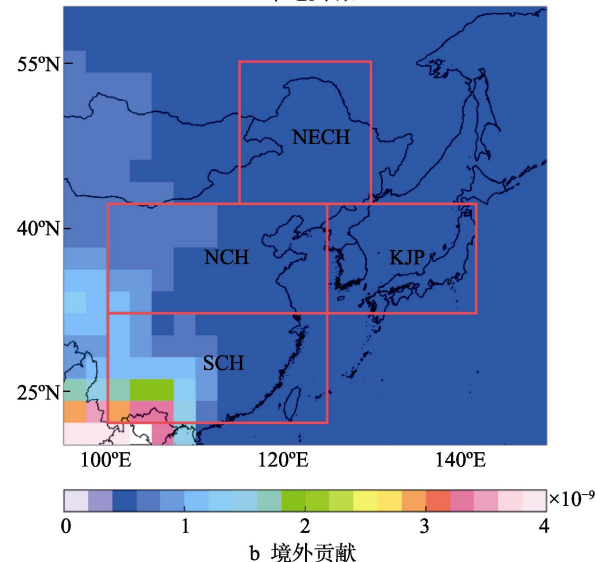
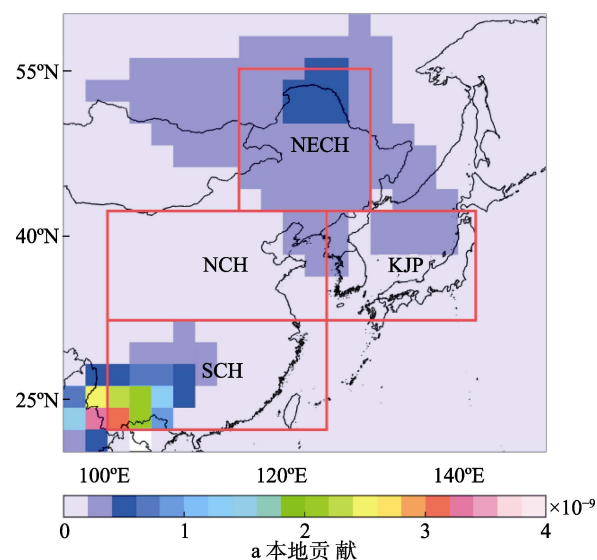


图4 2005年春季本地与境外生物质燃烧对东亚地表臭氧的贡献

臭氧贡献分别占全球总生物质燃烧对中国贡献的22%、29%、16%、29%

为了比较各个地区生物质燃烧排放输出之间的差异及各个地区生物质燃烧对东亚的相对重要性,根据Fiore^[19]等的研究定义了两个指数:输出效率与输入效率。输出效率定义为某个境外地区生物质燃烧对东亚地表臭氧贡献与该境外地区生物质燃烧对自身贡献的比值。输出效率越高,说明该境外地区生物质燃烧产生的臭氧越易于输出至东亚。输入效率定义为某个境外地区生物质燃烧对东亚地表臭氧的贡献与东亚生物质燃烧对自身贡献的比值。输入效率越高,表示该境外地区生物质燃烧对东亚地表臭氧的相对重要性越高。各源区春季输出效率与输入效率如图8所示,可以看出,春季东南亚和非洲的输入效率远大于其他地区,而欧洲输入效率最小。这说明春季东南亚和非洲因生物质燃烧所生产的臭氧对东亚影响最大。输出效率却是非洲最低,这是

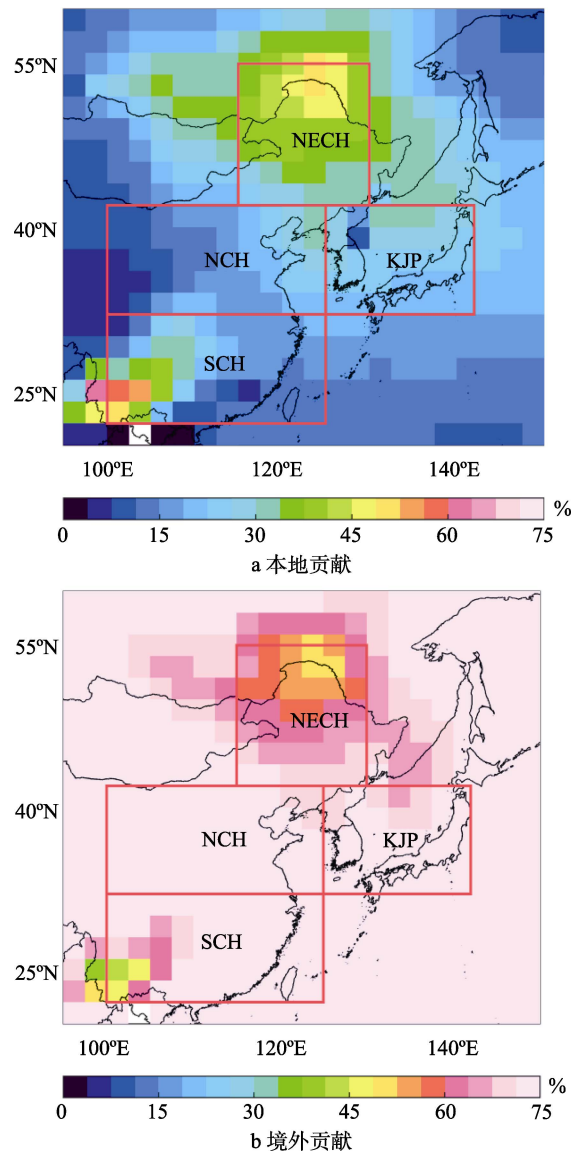


图 5 2005 年春季本地与境外生物质燃烧占全球生物质燃烧对东亚地表臭氧总贡献的比例

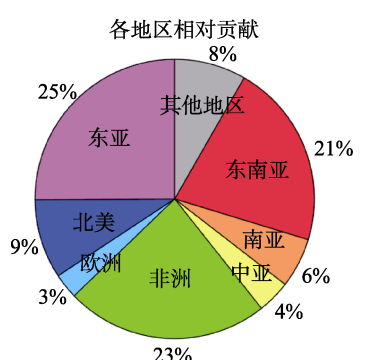


图 6 2005 年春季各个地区生物质燃烧占全球总生物质燃烧对东亚地表臭氧总贡献的比例

由于非洲与东亚距离较远，因非洲生物质燃烧产生的臭氧仅有相对少部分传输到东亚。欧洲因其到东亚的距离较短，输出效率最高。在 6 个源区中，南亚的输出效率排名靠后，可能是因为青藏高原高海

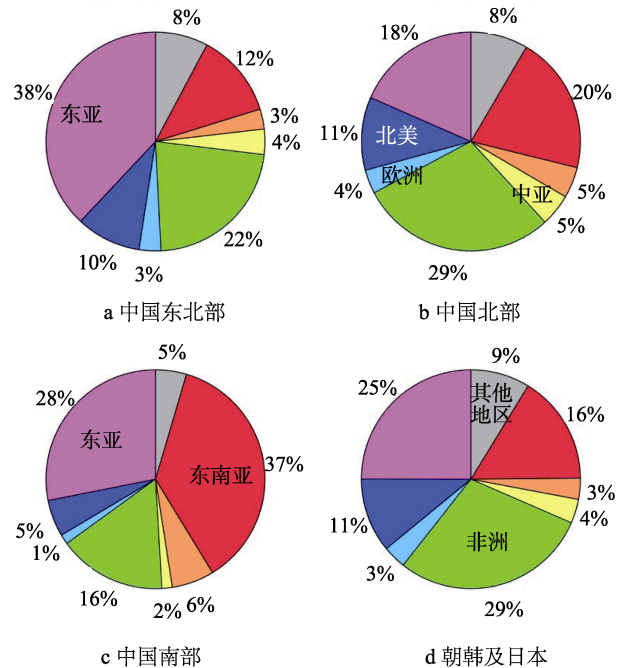


图 7 2005 年春季各个地区生物质燃烧占全球总生物质燃烧对中国东北部、中国北部、中国南部、朝韩及日本地表臭氧贡献的比例

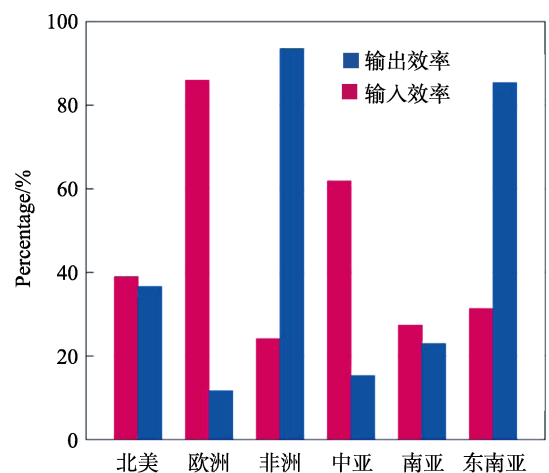


图 8 2005 年春季全球各个地区生物质燃烧对东亚地表臭氧贡献的输出及输入效率

拔地形的阻隔作用^[30]。

3 结论

基于全球化学传输模式 GEOS-Chem 数值模拟，使用敏感性分析法与线性加权法，定量描述了东亚境外及本地生物质燃烧排放对东亚地表臭氧的贡献，比较分析了全球不同地区生物质燃烧对东亚不同子区域影响之间的差异。主要结论包括以下几点。

1) 春季全球总生物质燃烧排放源对东亚地表臭氧贡献在 $1\times 10^{-9}\sim 5\times 10^{-9}$ 之间，最大影响区域是中国南部。

2) 从绝对贡献上看,在东亚各子区域中,境外生物质燃烧对中国南部地表臭氧贡献最大,可达 3×10^{-9} 。

3) 从相对贡献上看,在全球总生物质燃烧对东亚地表臭氧影响之中,境外生物质燃烧占比为 75%,远大于本地生物质燃烧的影响。更详细地说,境外生物质燃烧占全球总生物质燃烧贡献的比例在中国北部最大,达到 82%,在东北最小,仅为 62%。换言之,本地生物质燃烧的相对贡献在中国东北部最大,在中国北部最小。

4) 在所有境外源区中,境外生物质燃对东亚地表臭氧影响最大的源区是非洲和东南亚。

更详细地说,对中国南部影响最大的境外源区是东南亚,对中国东北部、中国北部、朝韩及日本影响最大的境外源区是非洲。

本研究揭示了春季境外生物质燃烧排放源对东亚地表臭氧的影响。选择 2005 年春季,是因为 2005 年春季生物质燃烧没有明显的极端事件^[48-49],可以大致代表平均状况。使用 MODIS 数据统计了近 15 年来春季全球火点数量,其在 2005 年的值与多年平均值很接近(见表 2)。由于全球生物质燃烧具有一定的年际变化,未来工作需研究生物质燃烧的年际变化及趋势的影响,尤其是对东亚影响较大的地区,如非洲与东南亚。近 20 年来,全球平均生物质燃烧呈现显著下降趋势,非洲春季火点也在减少,但是东南亚的火点在显著上升^[48-49]。因此,与文中结果相比,在近两年,非洲生物质燃烧对东亚的影响可能更小,但是东南亚生物质燃烧的影响更大,本研究的结果具有一定的不确定性。臭氧的生产与消亡过程具有较强的非线性^[19],比如表现在生物质燃烧排放与人为源臭氧前体物之间的化学反应。虽然本研究使用了开关源及线性加权的方法较好地定量了全球各个源区的贡献,但是对非线性问题的线性化处理仍具有一定的误差。另外,本研究的目的是定量描述境外生物质燃烧对东亚臭氧的贡献,因此没有着重研究传输机制。在分析中,应用远距离污染物传输的相关知识对模式结果进行了简要解释,还根据输出效率与输入效率指数,研究了全球不同源区对东亚的相对贡献及传输机制在不同源区之间的差异。更详细的境外污染物传输至东亚的机制分析可参见笔者之前关于臭氧的研究^[22-23],也是未来继续探索的方向。

表 2 MODIS Collection 6 春季全球、非洲及东南亚火点数量(万个)

	全球	非洲	东南亚
2005 年	42.5	12.8	5.3
2003-2017 年平均±标准差	43.5±4.7	12.9±1.6	5.1±1.1

在 21 世纪过去的近 20 年里,中国政府及公众关于治理大气污染的工作主要放在酸雨及颗粒物污染

方面,并取得了很好的成就。2010—2017 年间,中国人为源 NO_x 、CO 排放有所下降^[9-10],NMVOCs 的排放仍在增长^[9-10]。减少中国人为源 NMVOCs 的排放,对于控制东亚臭氧污染也必不可少^[4,50]。中国臭氧污染治理不仅需要减少人为源排放,也需要加深对自然源的理解。控制生物质燃烧,如减少森林大火,禁止秸秆燃烧,对降低中国臭氧污染具有重要作用。东亚臭氧污染的治理需要东亚各国的努力,也需要与东亚之外其他国家或地区的良好合作。

致谢:文中所用 GEOS-Chem 模式由哈佛大学开发并管理。

参考文献:

- [1] LELIEVELD J, DENTENER F J. What Controls Tropospheric Ozone[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2000, 105: 3531-3551.
- [2] MCLINDEN C A, OLSEN S C, HANNEGAN B, et al. Stratospheric Ozone in 3-D Models: A Simple Chemistry and the Cross-tropopause Flux[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2000, 105: 14653-14665.
- [3] ZHANG Q, HE K B, HUO H. Cleaning China's Air[J]. *Nature*, 2012, 484: 161-162.
- [4] WANG T, XUE L, BRIMBLECOMBE P, et al. Ozone Pollution in China: A Review of Concentrations, Meteorological Influences, Chemical Precursors, and Effects[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 575: 1582-1596.
- [5] CHANG K L, PETROPAVLOVSKIKH I, COOPER O R, et al. Regional Trend Analysis of Surface Ozone Observations from Monitoring Networks in Eastern North America, Europe and East Asia[J]. *Elementa: Science of the Anthropocene*, 2017, 5: 50-72.
- [6] GAUDEL A, COOPER O, ANCELLET G, et al. Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day Distribution and Trends of Tropospheric Ozone Relevant to Climate and Global Atmospheric Chemistry Model Evaluation[J]. *Elementa: Science of the Anthropocene*, 2018, 6: 39.
- [7] DING A, HUANG X, FU C. Air Pollution and Weather Interaction in East Asia[J]. *Oxford Research Encyclopedias-Environmental Science*, 2017, 1: 1-26.
- [8] XU W, XU X, LIN M, et al. Long-term Trends of Surface Ozone and Its Influencing Factors at the Mt Waliguan GAW Station, China-Part 2: The Roles of Anthropogenic Emissions and Climate Variability[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18: 773-798.
- [9] SUN W, SHAO M, GRANIER C, et al. Long-Term Trends of Anthropogenic SO_2 , NO_x , CO, and NMVOCs Emissions in China[J]. *Earth's Future*, 2018, 6: 1112-1133.

- [10] ZHENG B, TONG D, LI M, et al. Trends in China's Anthropogenic Emissions Since 2010 as the Consequence of Clean Air Actions[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18: 14095-14111.
- [11] LU X, HONG J, ZHANG L, et al. Severe Surface Ozone Pollution in China: A Global Perspective[J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 2018, 5: 487-494.
- [12] SEKIYA T, SUDO K. Roles of Transport and Chemistry Processes in Global Ozone Change on Interannual and Multidecadal Time Scales[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2014, 119: 4903-4921.
- [13] DING A, FU C, YANG X, et al. Ozone and Fine Particle in the Western Yangtze River Delta: An Overview of 1 Year Data at the SORPES Station[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13: 5813-5830.
- [14] JIANG Y, ZHAO T, LIU J, et al. Why Does Surface Ozone Peak before a Typhoon Landing in Southeast China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15: 13331-13338.
- [15] ZHOU D, DING A, MAO H, et al. Impacts of the East Asian Monsoon on Lower Tropospheric Ozone over Coastal South China[J]. *Environmental Research Letters*, 2013, 8: 044011.
- [16] YANG Y, LIAO H, LI J. Impacts of the East Asian Summer Monsoon on Interannual Variations of Summertime Surface-layer Ozone Concentrations over China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14: 6867-6879.
- [17] LI S, WANG T, HUANG X, et al. Impact of East Asian Summer Monsoon on Surface Ozone Pattern in China[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2018, 123: 1401-1411.
- [18] LIU H, JACOB D J, CHAN L Y, et al. Sources of Tropospheric Ozone Along the Asian Pacific Rim: An Analysis of Ozone Sonde Observations[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2002, 107: D21.
- [19] FIORE A M, DENTENER F J, WILD O, et al. Multi-model Estimates of Intercontinental Source-receptor Relationships for Ozone Pollution[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2009, 114: D04301.
- [20] DOHERTY R M. Ozone Pollution from Near and Far[J]. *Nature Geoscience*, 2015, 8: 664.
- [21] HAN H, LIU J, YUAN H, et al. Impacts of Synoptic Weather Patterns and Their Persistency on Free Tropospheric Carbon Monoxide Concentrations and Outflow in Eastern China[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2018, 123: 7024-7046.
- [22] HAN H, LIU J, YUAN H, et al. Characteristics of Intercontinental Transport of Tropospheric Ozone from Africa to Asia[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18: 4251-4276.
- [23] ZHU Y, LIU J, WANG T, et al. The Impacts of Meteorology on the Seasonal and Interannual Variabilities of Ozone Transport from North America to East Asia[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2017, 122: 10612-10636.
- [24] YOSHITOMI M, WILD O, AKIMOTO H. Contributions of Regional and Intercontinental Transport to Surface Ozone in the Tokyo Area[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11: 7583-7599.
- [25] NAGASHIMA T, SUDO K, AKIMOTO H, et al. Long-term Change in the Source Contribution to Surface Ozone over Japan[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, 17: 8231-8246.
- [26] ZHANG L, JACOB D J, KOPACZ M, et al. Intercontinental Source Attribution of Ozone Pollution at Western U.S. Sites Using an Adjoint Method[J]. *Geophysical Research Letters*, 2009, 36: L11810.
- [27] COOPER O R, LANGFORD A O, PARRISH D D, et al. Challenges of a Lowered U.S. Ozone Standard, *Science*[J]. 2015, 348: 1096-1097.
- [28] HUANG M, CARMICHAEL G R, PIERCE R B, et al. Impact of Intercontinental Pollution Transport on North American Ozone Air Pollution: An HTAP Phase 2 Multi-model Study[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, 17: 5721-5750.
- [29] DENTENER F, KEATING T, AKIMOTO H. HTAP: Hemispheric Transport of Air Pollution 2010[M]. United Nations: New York and Geneva, 2010.
- [30] NI R, LIN J, YAN Y, et al. Foreign and Domestic Contributions to Springtime Ozone Over China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18: 11447-11469.
- [31] VAN der WERF G R, RANDERSON J T, GIGLIO L, et al. Global Fire Emissions Estimates during 1997 — 2016[J]. *Earth System Science Data*, 2017, 9: 697-720.
- [32] DING A, FU C, YANG X, et al. Intense Atmospheric Pollution Modifies Weather: A Case of Mixed Biomass Burning with Fossil Fuel Combustion Pollution in Eastern China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13: 10545-10554.
- [33] HUANG X, DING A, LIU L, et al. Effects of Aerosol-radiation Interaction on Precipitation during Biomass-burning Season in East China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16: 10063-10082.
- [34] TANG H, LIU G, ZHU J, et al. Seasonal Variations in Surface Ozone as Influenced by Asian Summer Monsoon and Biomass Burning in Agricultural Fields of the Northern Yangtze River Delta[J]. *Atmospheric Research*, 2013, 122: 67-76.
- [35] CHAN K. Biomass Burning Sources and Their Contributions to the Local Air Quality in Hong Kong[J]. *Science of The Total Environment*, 2017, 596-597: 212-221.
- [36] DING K, LIU J, DING A, et al. Uplifting of Carbon Monoxide from Biomass Burning and Anthropogenic Sources to the Free Troposphere in East Asia[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15: 2843-2866.
- [37] BEY I, JACOB D J, YANTOSCA R M, et al. Global Modeling of Tropospheric Chemistry with Assimilated Meteorology: Model Description and Evaluation[J].

- Journal of Geophysical Research, 2001, 106: 23073-23095.
- [38] ZHANG L, JACOB D J, BOERSMA K F, et al. Transpacific Transport of Ozone Pollution and the Effect of Recent Asian Emission Increases on Air Quality in North America: An Integrated Analysis Using Satellite, Aircraft, Ozone sonde, and Surface Observations[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2008, 8: 6117-6136.
- [39] WANG Y, ZHANG Y, HAO J, et al. Seasonal and Spatial Variability of Surface Ozone over China: Contributions from Background and Domestic Pollution[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011, 11: 3511-3525.
- [40] JIANG Z, MIYAZAKI K, WORDEN J R, et al. Impacts of Anthropogenic and Natural Sources on Free Tropospheric Ozone over the Middle East[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, 16: 6537-6546.
- [41] ZHANG Q, STREETS D G, CARMICHAEL G R, et al. Asian Emissions in 2006 for the NASA INTEX-B Mission[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2009, 9: 5131-5153.
- [42] VAN DER WERF G R, RANDERSON J T, GIGLIO L, et al. Global fire Emissions and the Contribution of Deforestation, Savanna, Forest, Agricultural, and Peat Fires (1997—2009)[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, 10: 11707-11735.
- [43] GUENTHER A B, JIANG X, HEALD C L, et al. The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature Version 2.1 (MEGAN2.1): An Extended and Updated Framework for Modeling Biogenic Emissions[J]. Geoscientific Model Development, 2012, 5: 1471-1492.
- [44] ALLEN D, PICKERING K, DUNCAN B, et al. Impact of Lightning NO Emissions on North American Photochemistry as Determined Using the Global Modeling Initiative (GMI) Model[J]. Journal of Geophysical Research, 2010, 115: D22301.
- [45] OTT L E, PICKERING K E, STENCHIKOV G L, et al. Production of Lightning NO_x and Its Vertical Distribution Calculated from Three-dimensional Cloud-scale Chemical Transport Model Simulations[J]. Journal of Geophysical Research, 2010, 115: 288-303.
- [46] LI B, GASSER T, CIAIS P, et al. The Contribution of China's Emissions to Global Climate Forcing[J]. Nature, 2018, 561: 357-361.
- [47] DING A, WANG T. Influence of Stratosphere-to-Troposphere Exchange on the Seasonal Cycle of Surface Ozone at Mount Waliguan in Western China[J]. Geophysical Research Letters, 2006, 33: L03803.
- [48] EARL N, SIMMONDS I. Spatial and Temporal Variability and Trends in 2001—2016 Global Fire Activity[J]. Journal of Geophysical Research, 2018, 123: 2524-2536.
- [49] GIGLIO L, RANDERSON J T, VAN DER WERF G R. Analysis of Daily, Monthly, and Annual Burned Area Using the Fourth-generation Global Fire Emissions Database (GFED4)[J]. Journal of Geophysical Research, 2013, 118: 317-328.
- [50] 蒋美青, 陆克定, 苏榕, 等. 我国典型城市群 O₃ 污染成因和关键 VOCs 活性解析[J]. 科学通报, 2018, 63(12): 1130-1141.