王自发, 魏颖, 陈学舜, 等. 2020. 一个适用于地球系统模式(CAS-ESM)的在线气溶胶与大气化学分量模式(IAP-AACM)的发展与评估 [J]. 气候与环境研究, 25(1): 1−18. WANG Zifa, WEI Ying, CHEN Xueshun, et al. 2020. Development and Evaluation of the Online Aerosol and Atmospheric Chemistry Model for the Chinese Academy of Sciences Earth System Model [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 25(1): 1−18. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2019.19073

一个适用于地球系统模式(CAS-ESM)的在线气溶胶与大气化学分量模式(IAP-AACM)的发展与评估

王自发[1,2,3] 魏颖[1,2] 陈学舜[1,3] 陈焕盛[1] 何卷雄[4] 费可测[4]
李杰[1,3] 王威[5] 张明华[6]

1 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理与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 中国科学院城市环境研究所区域大气环境研究卓越创新中心，福建厦门361021
4 中国科学院大气物理研究所国际气候与环境科学中心，北京100029
5 中国环境监测总站，北京100012
6 纽约州立大学石溪分校，纽约11790

摘　要　地球系统模式是研究全球气候与生态环境变化问题的重要工具，气溶胶与大气化学模式负责为其中的大气环流模式提供与气候效应有关的气态化学物质和气溶胶成分。本文在全球嵌套网格空气质量预报模式系统的基础上发展了一个适用于中国科学院地球系统模式（CAS-ESM）耦合计算的气溶胶与大气化学分量模式（IAP-AACM），采用简化的气相化学机制，不仅考虑了人为气溶胶，同时考虑了海盐、沙尘和二甲基硫等自然气溶胶及其前体物的在线排放。评估结果表明，IAP-AACM氧化剂插值计算可靠，采用简化机制和碳键机制（CBM-Z）模拟的差异较小。和观测的对比表明，得益于CAS-ESM的气溶胶双向反馈作用，简化版能够较好地抓住气溶胶及其前体物的空间分布，为IAP-AGCM提供可靠的气溶胶模拟。另外，简化版能大幅提升计算效率，满足CAS-ESM耦合长期积分的需求。为了在全球气候变化的研究中提供更完善的气溶胶模拟，未来考虑在IAP-AACM中增加氮化学和臭氧平流层化学机制。

关键词　模式评估　气溶胶　化学机制　IAP-AGCM模式　IAP-AACM模式
文章编号　1006-9585(2020)01-0001-18　　**中图分类号**　PX513　　**文献标识码**　A
doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2019.19073

Development and Evaluation of the Online Aerosol and Atmospheric Chemistry Model for the Chinese Academy of Sciences Earth System Model

WANG Zifa[1,2,3], WEI Ying[1,2], CHEN Xueshun[1,3], CHEN Huansheng[1], HE Juanxiong[4], FEI Kece[4], LI Jie[1,3], WANG Wei[5], and ZHANG Minghua[6]

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

收稿日期　2019-05-15；**网络预出版日期**　2019-09-20
作者简介　王自发，男，1972年出生，博士，研究员，主要从事大气污染输送和沉降、大气化学模式研发、空气质量预报理论与方法研究。E-mail: zifawang@mail.iap.ac.cn
资助项目　国家重点研发计划高性能计算专项2016YFB0200800，国家自然科学基金国际（地区）合作与交流项目41620104008，国家自然科学基金青年科学基金项目41705108、41605104
Funded by　National Major Research High Performance Computing Program of China (Grant 2016YFB0200800), Projects of International Cooperation and Exchanges of the National Natural Science Foundation of China (Grant 41620104008), National Natural Science Foundation of China (Grants 41705108 and 41605104)

2 *University of Chinese Academy of Sciences*, *Beijing* 100049
3 *Center for Excellence in Urban Atmospheric Environment*, *Institute of Urban Environment*, *Chinese Academy of Sciences*, *Xiamen*, *Fujian Province* 361021
4 *International Center for Climate and Environment Sciences*, *Institute of Atmospheric Physics*, *Chinese Academy of Sciences*, *Beijing* 100029
5 *China National Environmental Monitoring Center*, *Beijing* 100012
6 *State University of New York at Stony Brook*, *New York*, 11790, *USA*

Abstract The earth system model (ESM) is an important tool for analyzing global climate and ecological environment changes. The Aerosol and Atmospheric Chemistry Model (AACM) enables the simulation of gases and aerosols associated with the effects of climate change for further processing using the Atmospheric General Circulation Model (AGCM). On the basis of the Global Nested Grid Air Quality Prediction Model System, a simplified version of the AACM of the Institute of Atmospheric Physics (IAP-AACM) suitable for the ESM of the Chinese Academy of Sciences (CAS-ESM) is developed using a simplified gas-phase chemical mechanism. Not only anthropogenic aerosols but also natural aerosols and its precursors (e.g., sea salt, dust, and dimethyl sulfide) are considered. The evaluation showed that the IAP-AACM with simplified gas-phase chemical mechanism can reasonably simulate the spatial distribution of aerosols and precursor gases. The difference between the simplified version and the standard version with CBM-Z mechanism is small. The comparison of the obtained values with the observations shows that the simplified version captured the spatial distribution of aerosols and its precursors well and provided a reliable aerosol simulation for the IAP-AGCM in favor of two-way feedback. Furthermore, the simplified version can significantly improve the calculation efficiency and well satisfy the need for long-range integration of the CAS-ESM. To provide a more comprehensive aerosol simulation in the research on global climate change, the mechanism of nitrogen chemistry and the stratospheric chemistry of ozone will be considered in the IAP-AACM in the future.

Keywords Model evaluation, Aerosol, Chemical mechanism, IAP-AGCM model, IAP-AACM model

1 引言

将地球上的大气圈、水圈、冰雪圈、岩石圈和生物圈看成一个有机的整体进行研究，并统一协调全球气候、生态与环境变化的有关研究，称为地球系统动力学。它是一门新兴的学科，其核心之一就是要建立地球系统动力学模式并进行模拟研究(曾庆存等, 2008)。地球系统模式由基于地球系统中的动力、物理、化学和生物过程建立起来的数学方程组（包括动力学方程组和参数化方案）来确定其各个圈层的性状，由此构成地球系统的数学物理模型(王斌等, 2008)。从2008年起，美国、英国、日本、德国、加拿大等发达国家已相继建立了各自的地球系统模式(Bodas-Salcedo et al., 2008; Bathiany et al., 2010; Chylek et al., 2011; Watanabe et al., 2011; Tilmes et al., 2015)，我国在2007年启动了地球系统模式研究，并由中国科学院(Chinese Academy of Sciences, CAS)大气物理研究所(Institute of Atmospheric Physics, IAP)于2015年发布了中国科学院地球系统模式(Earth System Model of the Chinese Academy of Sciences, CAS-ESM)1.0版本，代表了我国自主研制的地球系统模式的最前沿水平。目前中科院大气所主持完成了CAS-ESM高分辨率耦合计算研究工作，在CAS-ESM新一代的版本中，气溶胶与大气化学分量模式采用大气所自主研发的全球嵌套网格空气质量预报模式系统(Global Nested Air Quality Prediction Modeling System, GNAQPMS)(Chen et al., 2015)的框架并作了改进，更名为IAP-AACM。

IAP-AACM既可以作为CAS-ESM的分量模式为其提供大气化学和大气气溶胶模块在线计算，用于气候变化的相关研究，也可以作为独立的全球大气化学传输模式用于大气污染物分布和污染物跨区输送的研究。在气溶胶的气候环境效应(Penner, 2001)和健康效应(Pope et al., 2011; Burnett et al., 2014; Powell et al., 2015)所引起的外交、政治问题中，外交策略和污染控制政策的制定往往需要以模式分析结果为参考，因此客观认识模式模拟能力对于制定合理可靠的政策具有十分积极的意义。大气化学模式的模拟结果存在各种不确定性，这些不确

定性主要来自：1）排放清单的不确定性；2）输入气象场的不确定性；3）模式物理化学过程方案的不确定性；4）模式分辨率的不确定性。基于以上不确定性，对新构建的模式必须进行详细的评估，以了解模式模拟化学物质在实际大气中的时空变化的能力，并明确模式的适用范围以及在特定的研究问题中模式进一步的改进方向。

目前国际上主流的全球模式都做了自我评估，大气化学模式如MOZART-v4(Emmons et al., 2010)，TM5-v3(Huijnen et al., 2010)，Oslo CTM3(Søvde et al., 2012)，CAM-Chem (Lamarque et al., 2012)等，评估了模式在对流层（以及平流层）中的光化学氧化过程模拟能力。气溶胶模式如GISS-TOMAS (Lee et al., 2010)，GLOMAP(Mann et al., 2010)，IMPACT(Liu et al., 2005)，GEOS-Chem(Bey et al., 2001)等，评估了硫酸盐（ASO_4）及其前体物二氧化硫（SO_2）和二甲基硫（DMS），黑碳气溶胶（BC）和有机碳气溶胶（OC）的全球空间分布、季节特征和源汇平衡。这些评估所采用的参考数据主要包括：1）地表站点观测数据；2）卫星遥感观测数据；3）探空廓线数据。不同类型的观测数据代表性不同，采用多种观测数据可以互相弥补评估代表性不足的问题。对于IAP-AACM，Chen et al. (2015)对GNAQMS汞模块作了系统评估，结果表明其与国际主流汞模式水平相当，气态汞和湿沉降模拟介于观测的2倍之内，然而并未对模式的痕量气体和大气气溶胶模拟进行评估。

IAP-AACM中包含两套可选的气相化学机制，CBM-Z化学机制（复杂版），以及专门为CAS-ESM耦合设计的一种简化化学机制（简化版），有效提高计算效率。目前复杂版已经完成了从全球到区域尺度对气溶胶ASO_4、BC、OC、硝酸盐（ANO_3）和铵盐（ANH_4）和痕量气体SO_2、二氧化氮、一氧化氮（CO）和臭氧（O_3）的空间分布、时间变化特征、质量守恒和寿命的全面评估，评估收集利用了全球多个观测站点的数据集、卫星观测数据和多模式数据集，结果表明IAP-AACM能够较为可靠的模拟气溶胶以及大气化学主要痕量气体的时空演变特征(Wei et al., 2019)。目前CAS-ESM耦合在线模拟的版本还未进行评估，本文详细介绍了IAP-AACM气相化学的简化方案，并对简化版模拟的气溶胶和气体进行系统评估，包括对简化版和复杂版模拟结果的对比以及CAS-ESM在线模拟和观测结果的对比，以期全面了解IAP-AACM在CAS-ESM中的模拟能力，为IAP-AACM、CAS-ESM以及其他大气化学模式的发展提供参考。

2 模式介绍及设置

2.1 模式介绍

2.1.1 CAS-ESM介绍

CAS-ESM是由中科院大气物理研究所自主研发的高分辨地球系统模式，耦合了大气环流模式(Atmospheric General Circulation Model of IAP, IAP-AGCM)(Su et al., 2014)，海洋环流模式(Climate system Ocean Model of LASG/IAP, LICOM)(Liu et al., 2012)，陆面模式(Common Land Model, CoLM)(Dai et al., 2003)，海冰模式(Sea Ice Model, CICE)，植被动力学模式(the Dynamic Global Vegetation Model of IAP, IAP-DGVM)(Zhu et al., 2018)，IAP-AACM，以及陆地和海洋生物地球化学模式(Land and Ocean Biogeochemical Models of IAP, IAP-OBGCM)(Li and Xu, 2012)。在CAS-ESM中，IAP-AACM和IAP-AGCM通过耦合器实现数据交互，IAP-AACM提供气体和气溶胶质量浓度在线计算，并通过气溶胶的双向反馈提供气候效应，气象场由IAP-AGCM实时计算。

2.1.2 IAP-AACM简介和发展

IAP-AACM模式(Atmospheric Aerosol Chemistry Model)是由中国科学院大气物理研究所自主研制开发的气溶胶和大气化学模式，模式基于大气所自主研发的全球多尺度大气化学输送模式GNAQPMS(Global Nested Air Quality Prediction Modeling System)(Chen et al., 2015)发展而来，该模式可从全球到区域进行多尺度嵌套，描述全球到区域的大气化学和大气气溶胶过程。GNAQPMS已用于全球重金属汞的分布模拟及全球和区域尺度空气质量的模拟与预报。在GNAQPMS中，未考虑二甲基硫(DMS)的动态排放过程。考虑到DMS对全球尺度硫酸盐气溶胶的重要贡献，我们在IAP-AACM中增加了DMS排放通量在线计算模块。此外，为了适应地球系统模式CAS-ESM耦合模拟对计算时间效率的要求，我们对IAP-AACM的气相化学反应进行了简化，主要计算具有重要气候效应

气溶胶的产生、输送和清除过程。

IAP-AACM 垂直坐标采用地形追随坐标，水平方向采用等经纬度网格，描述气态污染物和气溶胶的质量守恒方程为

$$\frac{\partial}{\partial t}(\Delta H\cdot C_i)+\frac{\partial}{R\partial\phi}(u\cdot\Delta H\cdot C_i)+\frac{\partial}{R\cos\theta\partial\theta}(v\cos\theta\cdot\Delta H\cdot C_i)+\frac{\partial}{\partial\sigma}(W\cdot C_i)=\frac{k_\phi\partial}{R^2\cos^2\theta\partial\phi}\left(\Delta H\cdot\frac{\partial C_i}{\partial\phi}\right)+\frac{k_\theta\partial}{R^2\cos^2\theta\partial\theta}\left(\Delta H\cdot\cos\theta\frac{\partial C_i}{\partial\theta}\right)+\frac{\partial}{\partial\sigma}\left(\frac{K_\sigma\partial C_i}{\Delta H\partial\sigma}\right)+S\cdot\Delta H+P\cdot\Delta H-R_d\cdot\Delta H-W_{\text{ash}}\cdot\Delta H\ ,\quad(1)$$

其中，C_i为第i种污染物浓度，t为时间，ΔH为模式顶高度与地形高度之差，θ、ϕ分别为纬度、经度，R为地球半径，K_θ、K_ϕ、K_σ分别为经向、纬向、垂直湍流扩散系数，（u，v）为水平风速，P为化学转化项，S为源排放速率，R_d为干沉降项，W为等效垂直运动速度，W_{ash}为湿清除项，σ为地形坐标。

在 IAP-AACM 中，平流输送采用高精度正定质量守恒差分格式方案计算(Walcek and Aleksic, 1998)。IAP-AACM 中垂直扩散系数K_z采用 Byun and Dennis(1995) 方案计算，该方案也应用于 CMAQ 和 RAQM 等对流层大气化学模式中。在 IAP-AACM 中，平流和扩散的计算时间步长基于 CFL 条件$\left(\frac{c\Delta t}{\Delta x}\le 1\right)$实时调整，从而保持近极地的计算稳定性。

模式中海盐和沙尘采用动态排放方案。其中起沙方案源于 Wang et al.(2000)开发的风蚀模型，后经罗淦改进(罗淦和王自发, 2006)，形成以摩擦速度与理查逊数作为主要起沙判据的边界层不稳定层结起沙机制。海盐的模拟采用 Athanasopoulou et al.(2008)的方案。IAP-AACM 的干沉降过程基于阻力模型处理，采用 Zhang et al.(2003)的方案。气相反应模块依研究目的可选择使用 CBM-Z(Zaveri and Peters, 1999)或简化机制。AACM 中，云对流、液相化学、云内云下湿清除过程基于 RADM2 机制处理(Stockwell et al., 1997)。气溶胶过程中，采用热力学平衡模块 ISORROPIA 计算无机气溶胶的气粒分配和气溶胶含水量(Nenes et al., 1999)，二次有机气溶胶模块则基于 Strader et al.(1999)发展的机制（IAP-AACM 模式框架见图 1）。

2.2 DMS 在线排放模块

DMS 是海洋中最主要的挥发性有机硫化物，由海洋中的海底和浮游生物产生。由于海气之间存在 DMS 浓度梯度，海洋中 DMS 浓度远大于与大气相平衡的值，海水中的 DMS 会向大气排放，并被 OH、NO_3等自由基氧化生成SO_2，并最终被氧化为硫酸盐。DMS 对全球硫的源汇平衡有重要贡献，约占全球天然硫排放的 50% 左右，全球海洋中的

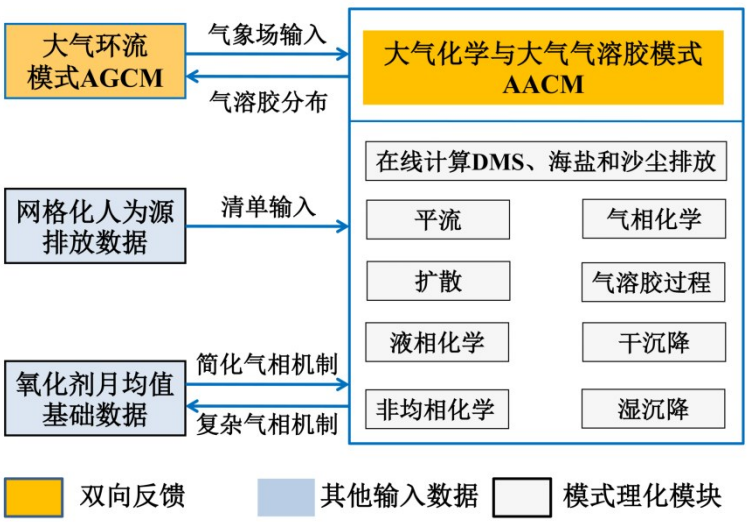

图 1 IAP-AACM 模式框架示意图

Fig. 1 Sketch map of the framework of the IAP-AACM model

DMS排放量估计为13～36 Tg(S)/a。

在GNAQPMS中没有考虑DMS排放，这会使得海洋上SO_2和ASO_4模拟偏低。在IAP-AACM模式中我们增加了DMS排放通量在线计算模块，采用Lana et al.(2011)的方案，具体计算方法为

$$F = K_T C_w - C_g \alpha \approx K_T \cdot C_w, \quad (2)$$

其中，C_w是海水中的DMS浓度；C_g是大气中的DMS浓度；α为DMS溶解度，K_T是总DMS气体传输系数，为大气/海洋界面两侧总的气体交换阻力的倒数，采用公式（3）计算：

$$K_T = K_w (1 - \gamma_\alpha), \quad (3)$$

其中，γ_α表示大气中DMS梯度分数，γ_α为海表温度和10 m高度风速的函数；K_w为施密特数。海水中的DMS浓度采用全球海表二甲基硫数据库(Global Surface Seawater DMS Database)(http://saga.pmel.noaa.gov/dms/[2019-06-14])的47313个观测数据以及南太平洋额外63个观测点的结果(Lee et al., 2010)，全球海水中的DMS浓度分布和IAP-AACM中计算的DMS排放通量分别见图2a、2b和图2c、2d：海水中DMS浓度具有明显的季节变化（如图2a、2b所示），冬季高值区位于30°S～60°S地区，可超过8 nmol/L，夏季DMS高值区北移至60°N附近，为5～8 nmol/L。模式计算的DMS通量季节变化和海水中的DMS浓度一致，冬季30°S～60°S区域的排放通量在0.01～0.05 μg m^{-2} s^{-1}之间，夏季排放通量比冬季偏小，由于海温的影响，赤道地区和60°N附近的排放通量均在0.005～0.02 μg m^{-2} s^{-1}之间。

2.3　模式简化方案

在IAP-AACM中，CBM-Z化学机制描述的化学反应方程组成的微分方程组高度刚性，需要迭代求解，并使用较小的积分步长，是模式物理化学过

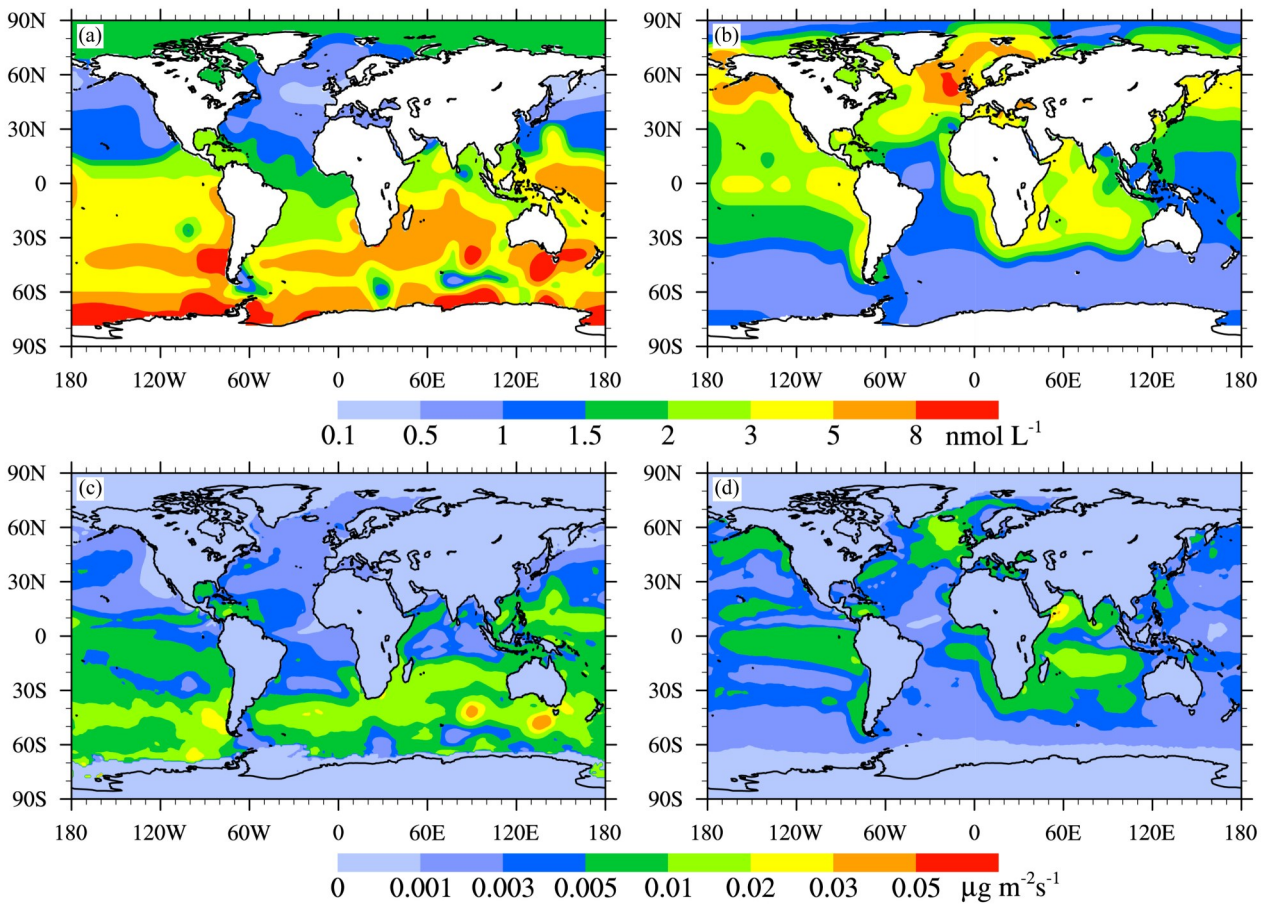

图2　（a、b）模式读入的近30年海水DMS浓度月均分布；（c、d）模式计算的2014年DMS排放通量。左列为1月，右列为7月

Fig. 2　(a, b) Monthly mean concentration of dimethyl sulfide (DMS) in sea water; (c, d) monthly mean flux of DMS in seawater calculated by the IAP-AACM. The left and right columns indicate the monthly mean flux for Jan and Jul, respectively

程中耗时最长的模块。为了提高运算速度，并合理描述二次气溶胶组分硫酸盐的生成过程，我们开发了一个简化化学机制并将其耦合到IAP-AACM中。在简化化学机制中，主要考虑DMS、SO_2的氧化反应，氧化剂由CBM-Z化学机制模拟的月均值经时间插值得到。

2.3.1 氧化剂插值方案

IAP-AACM简化版中涉及的氧化剂共包括OH、HO_2、过氧化氢（H_2O_2）、NO_3、O_3等5种，其中OH、HO_2、H_2O_2、NO_3均为大气中的活性自由基。其在大气中的浓度受光照影响，具有明显的日变化特征，OH、HO_2在光照条件下生成，主要出现在白天，而NO_3主要在夜间形成，白天在光照下即分解。以上5种氧化剂中，OH、HO_2、NO_3、O_3的浓度采用离线读入再经插值计算后的结果，H_2O_2则根据气相化学反应在线计算。在全球模式中，氧化剂采用离线读入时间插值结果的方案较常见，例如气候化学模式CAM-Chem模式也采用了该方法(Lamarque et al., 2012)。具体插值方法为：首先读入IAP-AACM模式月均值作为每月15日的结果，将其插值到日均值；再以太阳天顶角余弦值考虑OH、HO_2、O_3、NO_3浓度日变化，其中NO_3日变化与OH、HO_2和O_3相反。

2.3.2 简化的气相化学机制

为了提高运算速度以满足地球系统模式进行全球的高精度、长时间的模拟运算要求，同时尽可能合理描述大气成分在辐射气候效应中的作用，IAP-AACM简化版对气相氧化反应进行了简化处理，不考虑氮化学。IPCC第二次报告指出，气溶胶粒子在云雾降水、大气辐射等大气物理过程中具有重要作用(IPCC, 1995)。大量研究表明，在硫酸盐、铵盐和硝酸盐等二次无机粒子当中，以硫酸盐的气候效应最为显著。人为硫酸盐由于吸收散射辐射带来的直接效应在－0.3～－0.9 W/m^{2}之间(Taylor and Penner, 1994; Kiehl and Rodhe, 1995; Chuang et al., 1997)。因此，在专为CAS-ESM设计的IAP-AACM模式中，包含了一套简化的气相化学机制，仅保留和硫酸盐生成相关的硫的氧化反应，而去掉气候效应较小的硝酸盐相关的氮的氧化反应，文中称为IAP-AACM简化版。与之相对应的，本文将使用CBM-Z气相化学机制的版本称为IAP-AACM复杂版。

IAP-AACM简化版化学机制考虑了DMS、SO_2的气相氧化和SO_2的液相氧化。以上简化方案在气候化学模式中应用较广泛，例如IMPACT模式(Liu et al., 2005)。模式中气相化学主要包括OH和NO_3对DMS的氧化、OH对SO_2的氧化、H_2O_2的生成和消耗。气相化学共涉及如下8个反应，反应方程和其相应的气相化学反应速率系数见表1 (Lamarque et al., 2012)。

由于AACM简化版不考虑氮化学，模式中二次无机气溶胶仅保留硫酸盐，另外，铵盐可以通过硫酸盐的比例间接计算，简化版和复杂版模拟变量对比见表2。

表1 IAP-AACM中的气相氧化反应

Table 1 Reaction equations in the simplified gas-phase chemistry module of the IAP-AACM

化学反应	反应速率
$HO_2 + HO_2 \rightarrow H_2O_2 + O_2$	$[2.3\times10^{-13}\exp(600.0/T)+1.7\times10^{-33}[M]\exp(1000.0/T)]\times[1+1.4\times10^{-21}[H_2O]\exp(2200/T)]$
$H_2O_2 + OH \rightarrow H_2O + HO_2$	$2.9\times10^{-12}\exp(-160/T)$
$H_2O_2 \rightarrow 2OH$	和太阳高度角有关
$SO_2 + OH \rightarrow H_2SO_4$	多步反应（略）
$DMS + OH \rightarrow SO_2$	$9.6\times10^{-12}\exp(-234/T)$
$DMS + OH \rightarrow 0.5\ SO_2 + 0.5\ HO_2$	$1.7\times10^{-42}\exp(7810/T)[M]0.21/[1+5.5\times10^{-31}\exp(7460/T)[M]0.21]$
$DMS + NO_3 \rightarrow SO_2 + HNO_3$	$1.9\times10^{-13}\exp(529/T)$
$NH_3 + OH \rightarrow H_2O$	$1.7\times10^{-12}\exp(-710/T)$

注：T—环境气温；[M]—物质浓度。

表2 IAP-AACM模式简化版和复杂版模拟变量对比

Table 2 Comparison of variables in the simplified and CBM-Z versions of the IAP-AACM

模拟变量类型	简化版	复杂版
气体	SO_2、DMS、NH_3、H_2O_2、H_2SO_4(g)	SO_2、NO_2、NO、CO、O_3、N_2O_5、HONO、OH、HO_2、CH_4、C_2H_6、O1D、O_3P、PAN、DMS、NH_3、H_2O_2、H_2SO_4(g)等共76项
一次气溶胶	一次PM10、一次PM2.5、BC、一次有机碳(POC)、海盐、沙尘	一次PM10、一次PM2.5、BC、POC、海盐、沙尘
二次气溶胶	ASO_4	ASO_4、ANO_3、ANH_4、二次有机气溶胶（SOA）

2.4 模式输入和模拟设置

2.4.1 模拟区域设置

模拟区域设置一层，覆盖全球[1°（纬度）×1°（经度），约111 km]，垂直方向上，模式不均匀地分为20层，最低层约50 m而顶层为20 km，其中约有10层位于3 km以下，同时也有部分模式层位于平流层中。模拟时段为2013年12月1日00:00（协调世界时，下同）至2015年1月1日00:00，前一个月为预热时间。IAP-AACM中未考虑平流层化学，复杂版O_3、NO_x、CO等上边界浓度由MOZART模拟结果提供，而其他物种不设定上边界条件。

2.4.2 气象场

在CAS-EMS中，IAP-AACM的气象场由IAP-AGCM在线提供。IAP-AGCM是由中科院大气所自主研发的全球大气环流模式，20世纪80年代，大气所研制了第一代IAP-AGCM，这是我国第一个全球大气环流模式。随着物理过程的不断改进和模式分辨率的提高，大气所先后发展了第二代的IAP九层大气环流模式(毕训强, 1993; Liang, 1996)和第三代的IAP-AGCM v3(左瑞亭等, 2004)，并在此基础上研制了第四代IAP-AGCM (张贺, 2009)，引入了可允许替代、高纬灵活性跳点、时间分解算法及半拉格朗日水汽输送方案等(孙泓川等, 2012)。IAP-AGCM水平分辨率为1.4°（纬度）×1.4°（经度），垂直方向共有26层。水平网格和垂直层均通过插值和IAP-AACM实现匹配。

2.4.3 排放源

模式采用以2010年为基准年的全球排放源数据，其中，中国地区人为源采用清华大学发布的2014年MEIC源清单对HTAP清单进行了替换。排放源包括甲烷、CO、SO_2、氮氧化物（NO_x）、挥发性有机物（VOCs）、氨、BC和OC在内的共29个物种，分辨率为0.1°（纬度）×0.1°（经度），通过插值匹配，可适用于不同尺度的应用。本研究中排放源的网格分辨率匹配从0.1°（纬度）×0.1°（经度）插值为1°（纬度）×1°（经度）。排放源清单详见表3。

2.5 观测数据

本文利用美国国家环境预报中心的再分析资料NCEP-R1和全球降水气候计划资料(the Global Precipitation Climatology Project, GPCP)对IAP-AGCM进行气象要素评估。

气体和气溶胶地面站点观测数据来自全球多个观测网络，其站点分布覆盖全球。SO_2气体观测数据来自世界温室气体数据中心(World Data Center for Greenhouse Gas, WDCGG)、美国环境保护局(the United States Environmental Protection Agency, EPA)、东亚酸沉降监测网(Acid Deposition Monitoring Network in East Asia, EANET)和中国环境监测总站(China National Environmental Monitoring Center, CNEMC)。ASO_4和BC气溶胶数据来自EANET、美国能见度观测网(Interagency Monitoring of Protected Visual Environments, IMPROVE)、欧洲监测和评估计划(European Monitoring and Evaluation Program, EMEP)。另外BC的观测还使用了中国大气成分观测网(China Atmosphere Watch Network, CAWNET)(Zhang et al., 2008)的数据，除CAWNET以外所有数据采样时间均为2014年。

表3 IAP-AACM使用的排放源清单

Table 3 Emission inventory used in the IAP-AACM

排放清单缩写	基准年	排放源类别	分辨率	参考文献
HTAP-v2	2010*	人为源	0.1°(纬度)×0.1°(经度)	Janssens-Maenhout et al.(2015)
GFED-v4	2010	生物质燃烧	0.25°(纬度)×0.25°(经度)	Randerson et al.(2015)
MEGAN- MACC	2010	生物源	0.5°(纬度)×0.5°(经度)	Sindelarova et al.(2014)
REAS	2001	土壤(NO_x)	0.5°(纬度)×0.5°(经度)	Yan et al.(2005)
POET	2000	海洋(VOCs)	1°(纬度)×1°(经度)	Granier et al.(2005)
GEIA	1983 ～ 1990平均	闪电(NO_x)	1°(纬度)×1°(经度)	Price et al.(1997)

*HTAP-v2 2010年人为源的中国地区采用清华大学MEIC 2014进行了替换。

3 简化版模式评估

3.1 输入数据评估

3.1.1 插值氧化剂评估

氧化是大气化学的基本特征。IAP-AACM简化版中的氢氧自由基（OH）、过氧化羟基自由基（HO_2）、硝基自由基（NO_3）、O_3的浓度通过读入复杂版模拟月均值再进行时间插值获得。模式入读的OH和NO_3空间分布如图3所示，冬季（1月）OH在北半球热带地区有带状高值区，浓度约为0.05～0.15 ppt（ppt为10^{-12}），模式OH最大值出现在印度洋海面上，为0.2～0.3 ppt，另外30°S人为源区附近OH浓度高于南半球其他区域。对流层中OH的形成主要是由于O_3光解反应$O_3 + h\nu$（λ≤320 nm）+ $H_2O \rightarrow 2OH + O_2$，由于$NO_x$-$O_3$-VOCs光化学反应的影响，OH浓度在人为源区及其附近的洋面往往高于其他区域。夏季（7月）OH浓度高值带北移至30°N～60°N，且由于太阳辐射增强，浓度达到0.2～0.4 ppt。NO_3是大气化学过程中的重要中间体，是夜间污染物的主要清除剂，其来源主要是$NO_2 + O_3 \rightarrow NO_3 + O_2$，在夜间也能发生，因此$NO_3$在污染区及其下游一般浓度较高(唐孝炎等, 2006)。NO_3冬季在人为源区浓度在2.5～20 ppt，夏季为1～30 ppt。

另外，考虑到自由基OH是大气中最重要的氧化剂，我们在IAP-AACM复杂版的评估中对OH浓度垂直剖面和其他模式作了详细比较(Wei et al., 2019)，对流层（模式表层到200 hPa）的平均OH浓度为13.0×10^5 mol/cm^3，OH半球平均浓度比率（N/S）为1.26，和ACCMIP多模式2000年的模拟结果提供的参考范围1.28±0.1(Naik et al., 2013)相一致，说明IAP-AACM中OH的南北半球分布较为合理。综上所述，简化版中读入的氧化剂时空分布合理，可以为简化版大气化学计算提供可靠的基础。插值得到的OH和NO_3浓度日变化见图4。

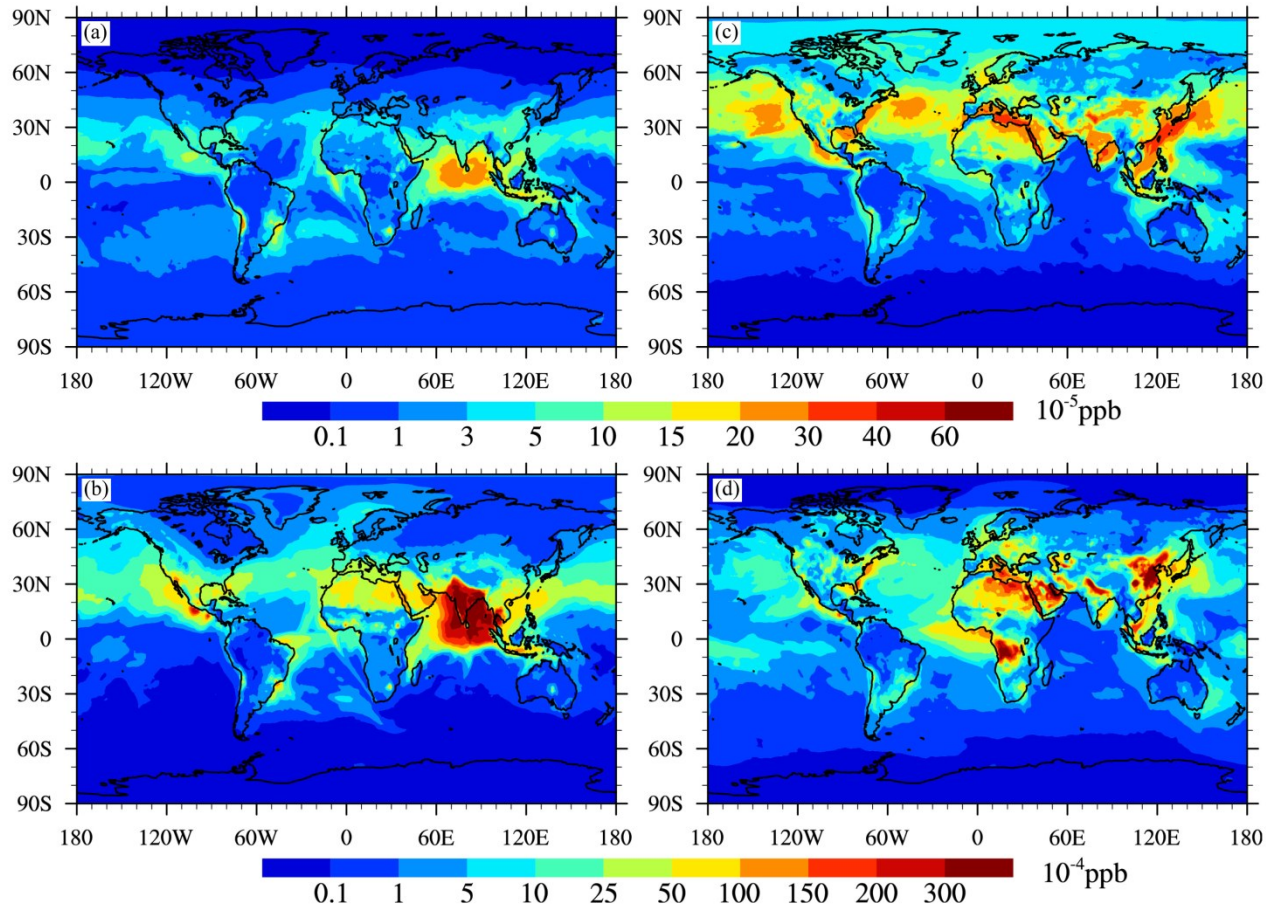

图3 简化版读入的氧化剂OH浓度（左列）和NO_3浓度（右列）水平分布（上排为1月，下排为7月，ppb为10^{-9}）

Fig. 3 Surface distribution of OH (left column) and NO_3 (right column) interpolated in the simplified version of the IAP-AACM (top and bottom rows denote the simulation in Jan and Jul, respectively; ppb denote 10^{-9})

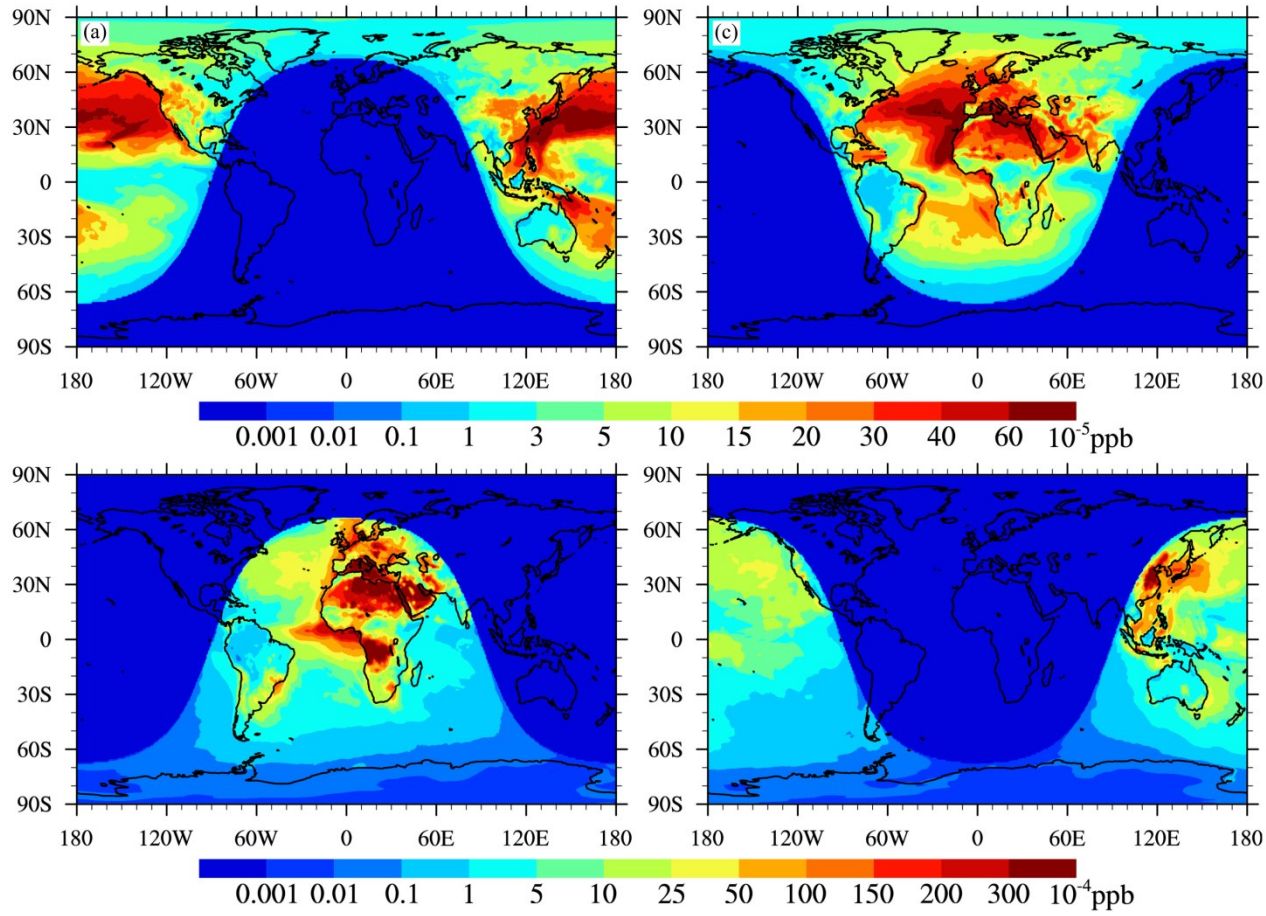

图4　插值后氧化剂OH（左列）和NO_3（右列）在00:00（协调世界时，下同；上排）、12:00（下排）的水平浓度分布

Fig. 4　Interpolated surface concentrations of OH (left column) and NO_3 (right column) at 0000 UTC (top row) and 1200 UTC (bottom row)

3.1.2　IAP-AGCM气象场评估

在IAP-AGCM发展的过程中，孙泓川等(2012)曾对第四代IAP-AGCM的模拟性能进行了评估，评估结果显示模式能够较为真实地模拟出大气、海洋、陆面、海冰等主要变量的气候平均态，再现了包括赤道SST、海冰分布、东亚季风雨带在内的季节循环，但是对南极底层水汽输送偏大，并且存在“双ITCZ”的热带偏差，由此提出了改进方案。在新构建的CAS-ESM中，我们对IAP-AGCM也进行了评估，其模拟的气象要素年均值和NCEP-R1再分析数据的比较如图5所示。模式很好地抓住了T2从赤道向两极逐渐减小的空间分布特征，在大部分区域模拟偏差小于±2 ℃。模式在全球大部分地区模拟偏低，其中南北两极和北半球陆地模拟低估较为明显，美国西部、俄罗斯和非洲北部低估超过4 ℃。IAP-AGCM较好地模拟了不同纬度的风带的风速和风向，在大部分区域W10模拟偏差在±1 m/s以内。总体而言模式在洋面上模拟偏差较陆地上更大，在西太平洋赤道地区模拟偏高2～4 m/s，在南半球西风带偏低3～4 m/s。IAP-AGCM模拟的RH2在大部分地区模拟偏差在±10%以内，模式相对湿度的模拟在中低纬比在高纬地区更好，在洋面上比大陆上更好。模式在北美、澳大利亚和欧洲模拟偏差较小，在南美、中非地区和中国东部模拟偏低20%～30%，在美国东部、非洲北部、中亚和中国西部模拟偏高10%～30%。和WRF离线模拟类似的(Wei et al., 2019)，IAP-AGCM在两极地区也存在较为明显的温度模拟偏低的问题，可能是由于现有模式中的冰盖表面物理方案对夏季表面反照率和冬季表面感热通量的模拟能力有限(Yao et al., 2016)。

如图5所示，IAP-AGCM较好地再现了赤道多雨带和副热带干旱区，模拟的年平均降水量和

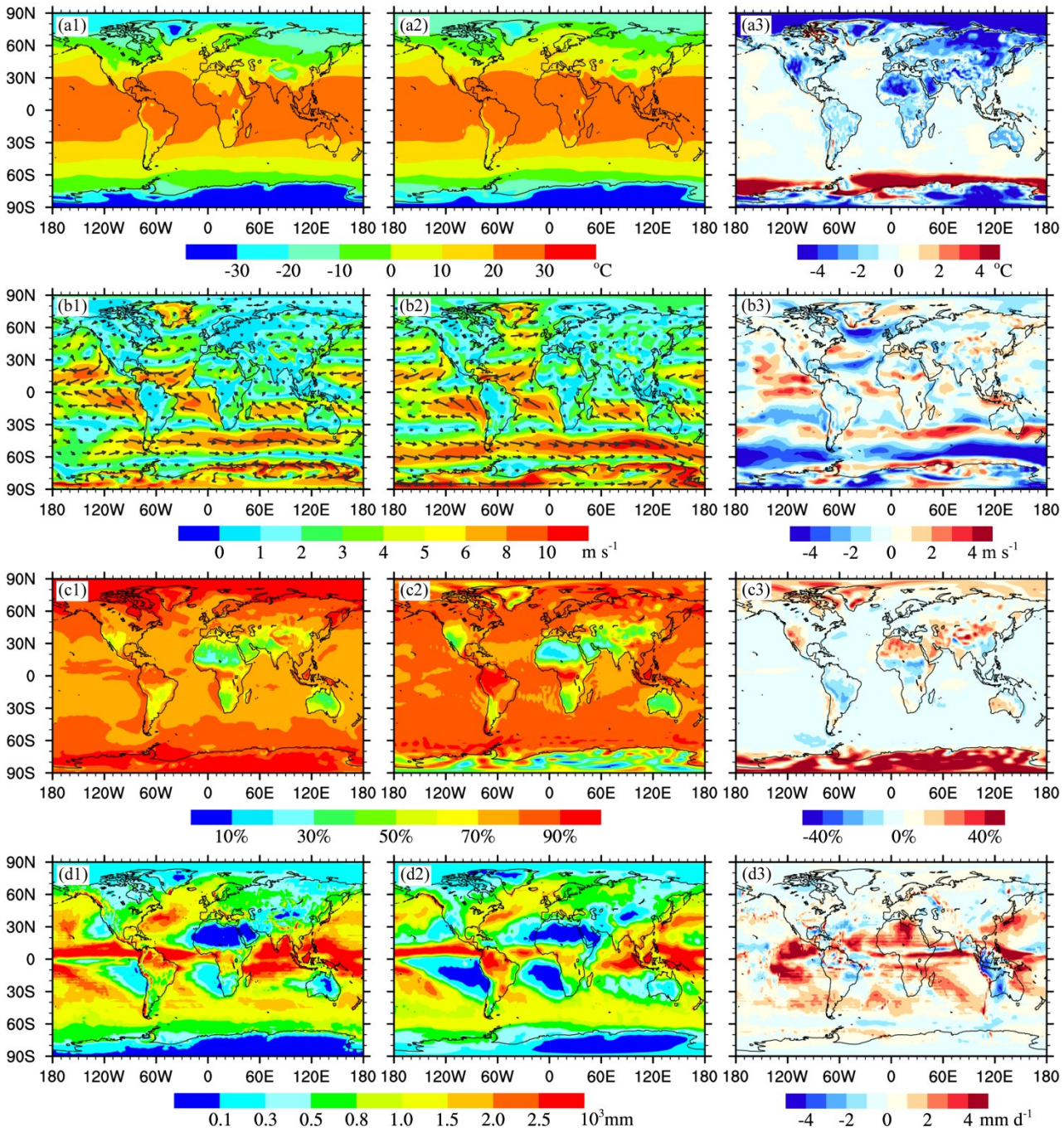

图5 IAP-AGCM模拟的（a1–a3）2 m高度气温、（b1–b3）10 m高度风速、（c1–c3）2 m高度相对湿度和（d1–d3）降水量）年平均值（左列）、再分析资料（中列）及两者之差（右列）

Fig. 5 Comparisons of the annual mean values of meteorological factors (a1–a3) air temperature at 2-m height, (b1–b3) wind speed at 10-m height, (c1–c3) relative humidity at 2-m height, and (d1–d3) precipitation of the IAP-AGCM simulations (left panel), reanalysis data (middle panel), and their differences (right panel)

GPCP再分析数据的差异较小，大部分地区降水偏差在±2 mm/d以内，孙泓川等(2012)提到的“双ITCZ”现象得到有效改善。IAP-AGCM在热带地区降水偏高在2～4 mm/d之间，东亚海洋地区超过4 mm/d。热带地区主要是对流性降水，模拟的准确性有赖于海洋热通量、对流过程和云物理过程的模拟准确性，东亚季风区的降水可能和水汽模拟不准有较大的关系。这说明ITCZ和东亚季风区的对流过程、水汽条件模拟不够准确是气象/气候模式共同的问题。

3.2　简化版模拟评估

3.2.1　和复杂版模拟对比

在CAS-ESM中，IAP-AGCM为IAP-AACM提供在线气象场输入从而实现气溶胶双向反馈。图6和图7分别列出了IAP-AGCM在线驱动简化版模拟DMS、SO_2、ASO_4和BC地面层浓度以及SO_2、ASO_4和BC的纬向平均垂直分布。如图所示，海洋上30°S～60°S区域IAP-AGCM在线驱动的模拟结果DMS为0.5～1 ppb，SO_2在北美东部、欧洲和东亚浓度较高，约5～20 ppb。受人为源排放的前体物影响，ASO_4浓度高值区也位于北半球，陆地大致为3～20 μg/m³，中国东部超过20 μg/m³。垂直方向上，SO_2和ASO_4的高值区主要位于10°N～60°N之间的上空2 km以内，区域内SO_2和ASO_4的纬向平均浓度分别为0.5～2 ppb和2～3 μg/m³，BC高值区位于20°S～30°N的上空，纬向平均浓度为0.1～0.3 μg/m³。

图8中展示了简化版和复杂版地面层的SO_2、ASO_4和BC水平浓度差。总体来说，简化版和复杂版(Wei et al., 2019)模拟的SO_2和ASO_4较为一致。如图8所示，简化版的ASO_4比复杂版高0～1 μg/m³。在北美、欧洲和东亚等人为源区，简化版ASO_4浓度比复杂版低0～3 μg/m³，这应该是人为源区氧化剂浓度差异决定的。简化版和复杂版模拟的BC浓度在全球差异小于0.1 μg/m³，由于BC的化学惰性，其浓度分布主要由排放、输送和沉降等物理过程决定，因此BC浓度的差异主要和气象场有关。通过比较，简化版和复杂版模拟结果差别不大，简化版的机制能够合理的抓大气化学和气溶胶过程，较好地再现气溶胶的空间分布特征。

3.2.2　和观测对比

过去有不少研究利用全球观测网络的数据对不同大气化学模式进行了评估，Brown-Steiner et al. (2018)曾对简化化学机制和MOZART-4机制在CESM1.2 CAM-chem中的模拟进行评估，对美国地区臭氧及其相关物种的评估结果表明，不同的气相化学机制之间的模拟差异小于模式—观测本身的偏差。本文利用主流地面观测网数据对在线驱动的IAP-AACM模拟结果进行了评估，模式地面层年均值对比如图9a所示，SO_2在欧洲和北美地区分别模拟略有偏高，东亚地区模拟和观测总体一致。在欧洲和北美SO_2模拟偏高应该和使用的排放源（基准年为2010年）偏高所致。ASO_4在北美、欧洲和东亚地区和观测具有很好的一致性。BC的模拟在北美和欧洲和观测非常一致，

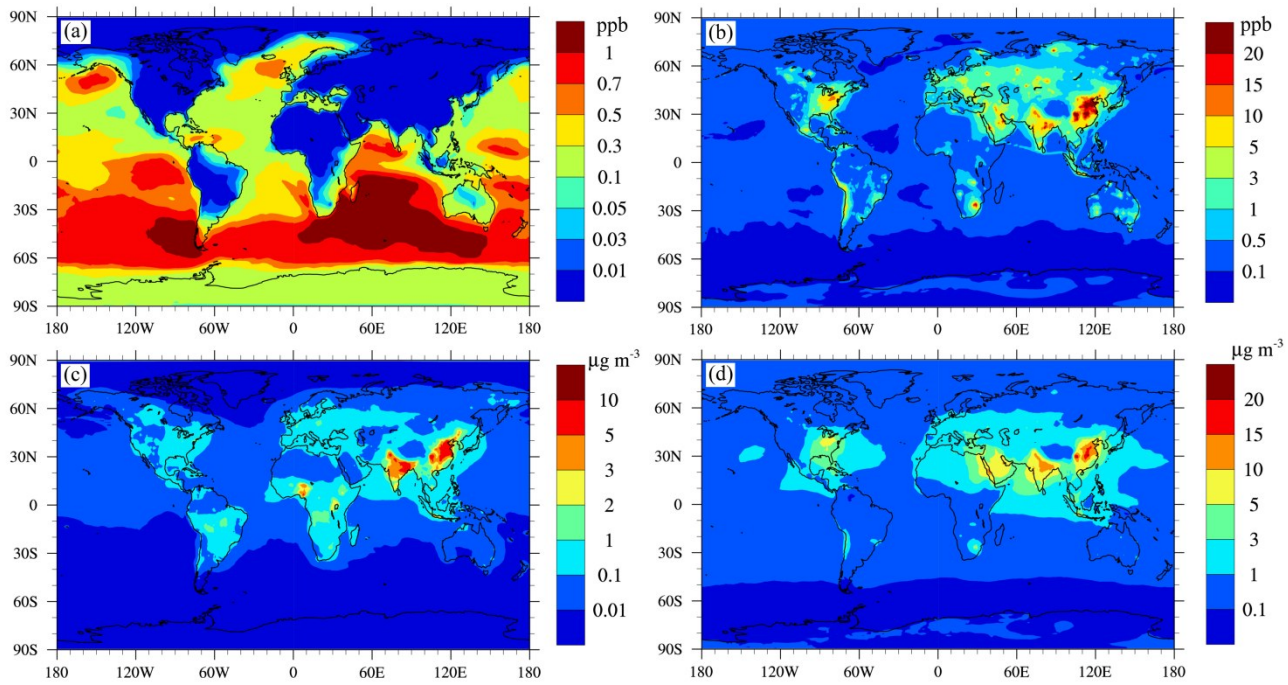

图6　IAP-AGCM驱动的IAP-AACM简化版2014年年平均浓度水平分布：（a）DMS；（b）SO_2；（c）BC；（d）ASO_4

Fig. 6　Annual mean surface concentration in 2014 simulated by the IAP-AACM using the IAP-AGCM: (a) DMS; (b) SO_2; (c) BC; (d) ASO_4

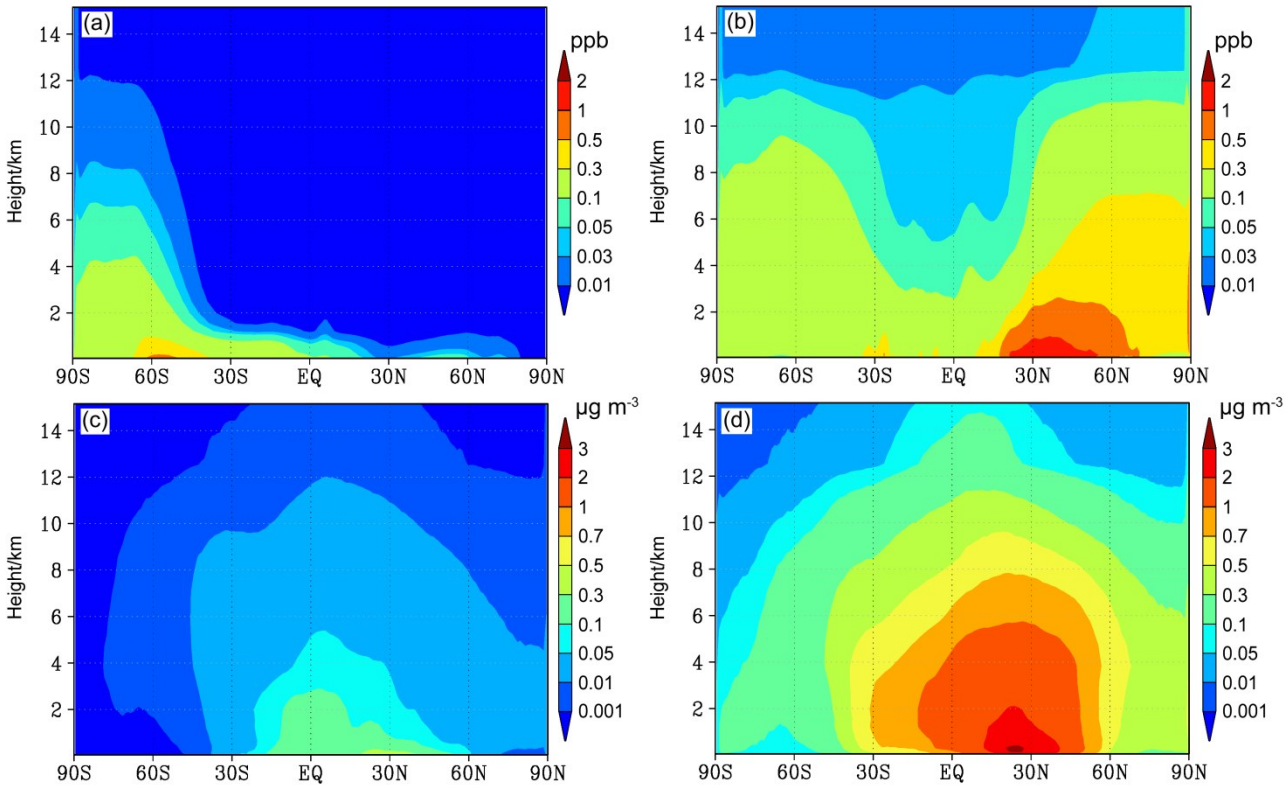

图7 IAP-AACM简化版2014年纬向平均浓度分布：（a）DMS；（b）SO_2；（c）BC；（d）ASO_4

Fig. 7 Zonal annual mean concentration of 2014 from the simplified version of the IAP-AACM: (a) DMS; (b) SO_2; (c) BC; (d) ASO_4

在中国西北和华北模拟偏低。由于中国地区使用的CAWNET数据观测时间为2006年，可能和2014年的气象场和排放源存在偏差。对中国排放源变化的研究表明，2006～2014年间BC经历了先上升再下降的变化，2014年BC全国排放总量的变化量相较2006年小于0.1 Tg(Lu et al., 2011; Zheng et al., 2018)。

图9b进一步展示了上述区域的站点模拟与观测平均偏差，从散点图分布来看，模式的粗网格能大致抓住SO_2和ASO_4、BC的区域分布特征，且模式对一次和二次气溶胶的模拟能力优于气体，大部分站点气溶胶模拟年均值在观测的2倍范围内。Kaiser et al.(2019)对EMAC气溶胶模拟的评估中，模拟ASO4和EMEP、EANET和IMPROVE观测网的对比分别有73.2%、57.6%和39.7%的站点在观测值2倍（FAC）以内，如图9b所示，IAP-AACM在线模拟的ASO4在以上区域FAC均达到66%以上。EMAC模拟BC的FAC（与IMPROVE观测网对比）为69.5%，而IAP-AACM在线模拟的FAC为69.6%。在欧洲、东亚和美国等人为源区，ASO_4模拟值的标准化平均偏差（NMB）均在±0.5以内，BC模拟值NMB在±0.65以内。SO_2在美国和欧洲高估，NMB分别为2.05和3.89。Liu et al.(2005)利用美国EMEFS和欧洲EMEP观测网络对IMPACT模拟性能的评估表明，模式在上述地区容易高估SO_2，分别有1/3和1/2的站点超出观测2倍范围，但ASO_4模拟和观测有较好的一致性。这和本模式的评估结果也相吻合，这一现象是由于在污染地区硫酸盐的生成量主要受控于云中H_2O_2浓度，而非SO_2浓度。总体来说，由于在线模拟考虑了气溶胶的双向反馈效应，由IAP-AGCM驱动的IAP-AACM简化版能够较好的抓住气溶胶空间分布的特征。

大陆地区SO_2和ASO_4浓度的季节变化与人为排放源变化关系密切，如图10所示，东亚呈冬高夏低的趋势，美国和欧洲整体处于较低水平，没有明显季节变化。模式基本能够反映不同区域SO_2和ASO_4的浓度的季节变化特征，SO_2在东亚的模拟和

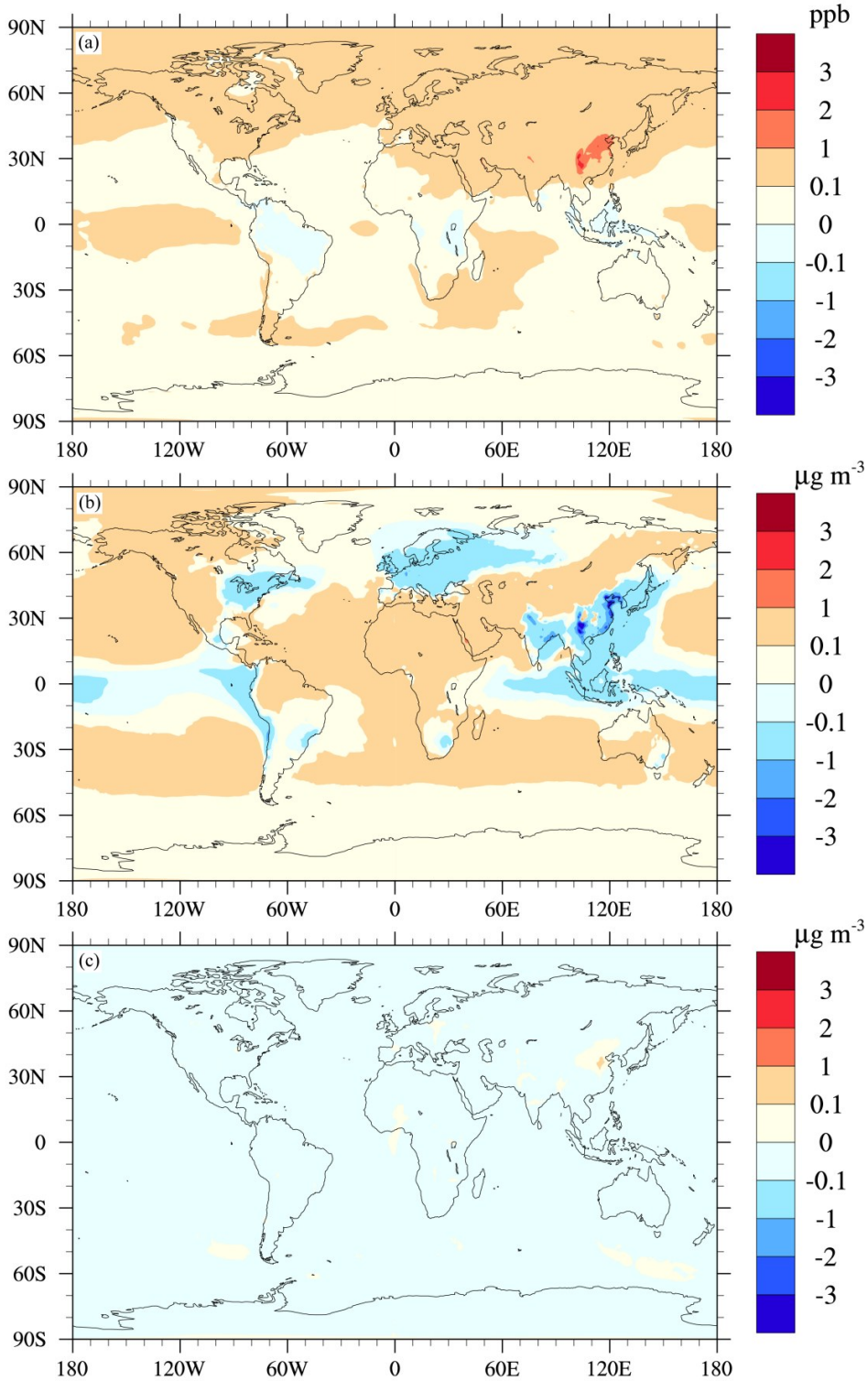

图8　简化版（SMP）和复杂版（CBM-Z）IAP-AACM模拟的（a）SO_2、（b）ASO_4和（c）BC浓度差

Fig. 8　Differences between the surface annual mean concentrations simulated by the simplified and CBM-Z versions of the IAP-AACM: (a) SO_2; (b) ASO_4; (c) BC

观测较为一致，欧洲和美国模拟偏高。ASO_4在不同区域都存在不同程度的夏秋季偏高的问题，这可能和模式湿沉降较弱有关。

3.3　模式计算效率

为检验模式简化对计算效率的提升作用，对AACM简化版和复杂版的运算速率进行了测试，

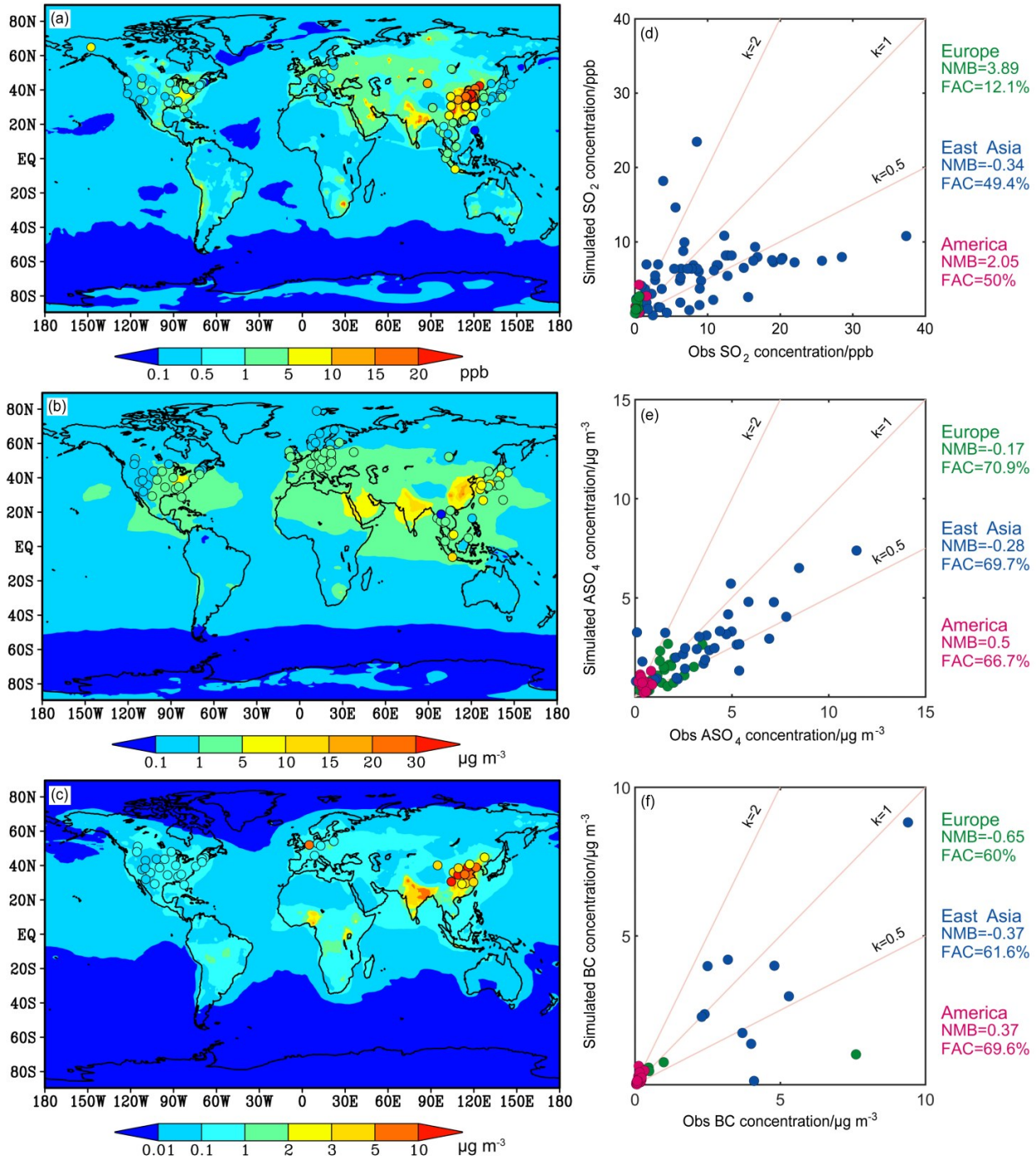

图9 模式第一层（a）SO_2、（b）ASO_4和（c）BC年均浓度与观测对比（圆点代表站点观测值）；（d）（e）（f）不同区域观测和模拟年均浓度散点图及其模拟偏差（NMB为标准化平均偏差，FAC为模拟在观测两倍以内的占比）

Fig. 9 Surface annual mean concentrations of (a) SO_2, (b) ASO_4, and (c) BC simulated by the simplified version of the IAP-AACM (circles indicate site observations); scatter plots of the same sites for (d) SO_2, (e) ASO_4, and (f) BC (NMB: Normalized mean bias; FAC: Percentage of simulated values within a factor of 2 of the corresponding observational values)

以LAPC/IO服务器为例，120个核MPI并行运算条件下（水平网格二维剖分360×180×20）各个模块的运算时间见表4所示，其中气相化学模块运算时间大大缩减，下降了将近100倍。IAP-AACM复杂版积分1年需要28 h，经过简化后，积分1年只需要2 h，模式运算时间较复杂版大幅提高，可以满足CAS-ESM耦合模式长期模拟的需求。

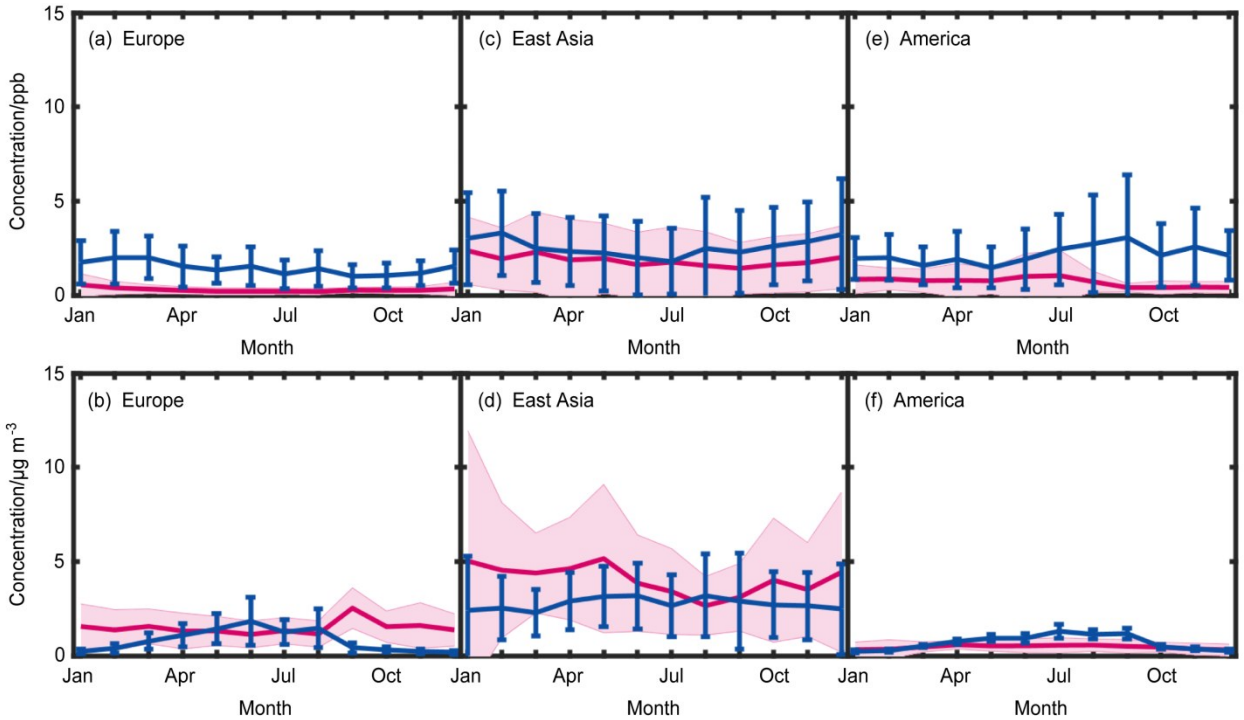

图 10　全球不同区域 SO_2（上排）和 ASO_4（下排）浓度月变化与观测对比[红色实线为观测平均值，阴影为 1 倍标准差；蓝色实线分别代表模拟平均值和标准差。为使 SO_2 和 ASO_4 的对比区域保持总体一致，此处东亚地区仅使用 EANET 数据，不含 CNEMC 数据（无 ASO_4 观测）]

Fig. 10　Mean seasonal cycle of SO_2 (top row) and ASO_4 (bottom row) concentrations in different regions. The red and blue lines represent the regional averaged observations and simulations, respectively. The rose shaded areas and blue vertical bars show a standard deviation of 1 over the sites for observations and simulations, respectively

表 4　IAP-AACM 模式简化版和复杂版模块运算时间对比

Table 4 Comparison of the computation time of simplified and CBM-Z versions of IAP-AACM　s

模块名称	运算时间	
	简化版	复杂版
水平和垂直平流	0.1167	0.2034
水平扩散	0.0103	0.0189
垂直扩散	0.0773	0.1024
气相化学	0.0121	0.9567
液相化学	0.0001	0.0002
ISORROPIA	–	0.0027
湿沉降	0.0005	0.0469
二次有机气溶胶模块	–	0.0028

4　总结

本文对 CAS-ESM 中的气溶胶和大气化学分量模式 IAP-AACM 简化版的模式发展进行了全面介绍，并对 CAS-ESM 在线驱动的简化版作了评估，有如下结论：

（1）IAP-AGCM 的气象场总体上和再分析气象场一致，在中低纬地区模拟效果优于两极。IAP-AGCM 在中低纬地区年平均 2 m 气温偏差小于 ±2 ℃，10 m 风速偏差小于±1 m/s，2 m 相对湿度偏差小于±10%，在大部分陆地年均降水量偏差小于 ±1 mm/d。IAP-AGCM 的 2 m 气温偏低较为明显，两极和中低纬部分陆地偏低超出 4 ℃。总体来说 IAP-AGCM 能够为大气化学模式的模拟提供可靠的气象场。

（2）IAP-AACM 简化版离线读入的氧化剂空间分布合理，插值后的氧化剂和在线计算的结果总体一致，能够较好的反应氧化剂的空间分布特征。简化版的 DMS 氧化比例更高，从而导致海面上 SO_2 更高。由于氧化剂的差异，简化版的 ASO_4 模拟在人为源地区比复杂版的偏低 0.1～3 μg/m^3，SO_2 则比复杂版偏高 0.1～2 ppb。和观测的对比表明，简化的气相化学机制能够较好地抓住大气中的氧化过程，合理地再现污染物的空间分布特征。

（3）CAS-ESM 中在线驱动 IAP-AACM 考虑了

气溶胶的双向反馈，有助于更合理准确地模拟气溶胶分布，在北美、欧洲和东亚等人为源区的观测对比表明IAP-AACM简化版能较为准确地抓住BC和ASO_4的空间分布特征。

（4）IAP-AACM简化版有效提高计算效率，相同计算任务的耗时可提升14倍。

为了提高计算效率，目前模式没有考虑氮的气相化学，虽然能基本满足地球系统模式计算气候效应的需求，但硝酸盐等其他气溶胶也有气候效应的影响，目前有的地区观测到的硝酸盐在气溶胶成分中的比例已经超过了硫酸盐(Hu et al., 2017)，未来可以考虑在IAP-AACM简化版中将氮化学的主要反应一并考虑。另外IAP-AACM暂时没有考虑平流层化学，在下一步模式发展中可以考虑加入臭氧平流层化学模块。

致谢 感谢CNEMC（http：//www.cnemc.cn），WDCGG（https：//gaw.kishou.go.jp/），EMEP（http：//www.emep.int/），EANET（http：//www.eanet.asia/product/index.html#datarep），EPA（http：//aqsdr1.epa.gov/aqsweb/aqstmp/airdata/download_files.html#Daily），IMPROVE（http：//vista.cira.colostate.edu/improve/）和CAWNET等观测网络提供的数据。感谢审稿专家和编辑为论文改进提出有益意见和建议。

参考文献（References）

Athanasopoulou E, Tombrou M, Pandis S N, et al. 2008. The role of sea-salt emissions and heterogeneous chemistry in the air quality of polluted coastal areas [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 8 (19): 5755−5769. doi:10.5194/acp-8-5755-2008

Bathiany S, Claussen M, Brovkin V, et al. 2010. Combined biogeophysical and biogeochemical effects of large-scale forest cover changes in the MPI Earth system model [J]. Biogeosciences, 7 (5): 1383−1399. doi:10.5194/bg-7-1383-2010

Bey I, Jacob D J, Yantosca R M, et al. 2001. Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation [J]. J. Geophys. Res. Atmos., 106(D19): 23073−23095. doi:10.1029/2001JD000807

毕训强. 1993. IAP九层大气环流模式及气候数值模拟 [D]. 中国科学院大气物理研究所博士学位论文, 210pp. Bi Xunqiang. 1993. IAP nine-layer atmospheric circulation model and climate numerical simulation [D]. Ph. D. dissertation (in Chinese), Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, 210pp.

Bodas-Salcedo A, Ringer M A, Jones A. 2008. Evaluation of the surface radiation budget in the atmospheric component of the Hadley Centre global environmental model (HadGEM1) [J]. J. Climate, 21 (18): 4723−4748. doi:10.1175/2008JCLI2097.1

Brown-Steiner B, Selin N E, Prinn R, et al. 2018. Evaluating simplified chemical mechanisms within present-day simulations of the Community Earth System Model version 1.2 with CAM4 (CESM1.2 CAM-chem): MOZART-4 vs. Reduced Hydrocarbon vs. Super-Fast chemistry [J]. Geoscientific Model Development, 11(10): 4155−4174. doi:10.5194/gmd-11-4155-2018

Burnett R T, Arden Pope III C, Ezzati M, et al. 2014. An integrated risk function for estimating the global burden of disease attributable to ambient fine particulate matter exposure [J]. Environ. Health Perspect., 122(4): 397−403. doi:10.1289/ehp.1307049

Byun D W, Dennis R. 1995. Design artifacts in eulerian air quality models: Evaluation of the effects of layer thickness and vertical profile correction on surface ozone concentrations [J]. Atmos. Environ., 29(1): 105−126. doi:10.1016/1352-2310(94)00225-A

Chen H S, Wang Z F, Li J, et al. 2015. GNAQPMS-HG v1.0, a global nested atmospheric mercury transport model: Model description, evaluation and application to trans-boundary transport of Chinese anthropogenic emissions [J]. Geoscientific Model Development, 8 (9): 2857−2876. doi:10.5194/gmd-8-2857-2015

Chuang C C, Penner J E, Taylor K E, et al. 1997. An assessment of the radiative effects of anthropogenic sulfate [J]. J. Geophys. Res. Atmos., 102(D3): 3761−3778. doi:10.1029/96JD03087

Chylek P, Li J, Dubey M K, et al. 2011. Observed and model simulated 20th century Arctic temperature variability: Canadian Earth System Model CanESM2 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 11(8): 22893−22907. doi:10.5194/acpd-11-22893-2011

Dai Y J, Zeng X B, Dickinson R E, et al. 2003. The common land model [J]. Bull. Amer. Meteor. Soc., 84(8): 1013−1024. doi:10.1175/BAMS-84-8-1013

Emmons L K, Walters S, Hess P G, et al. 2010. Description and evaluation of the Model for Ozone and Related Chemical Tracers, version 4 (MOZART-4) [J]. Geoscientific Model Development, 3(1): 43−67. doi:10.5194/gmd-3-43-2010

Granier C, Lamarque J F, Mieville A, et al. 2005. A database of surface emissions of ozone precursors, tech [EB/OL]. http://www.aero.jussieu.fr/projet/ACCENT/POET.php.

Hu W, Hu M, Hu W W, et al. 2017. Seasonal variations in high time-resolved chemical compositions, sources, and evolution of atmospheric submicron aerosols in the megacity Beijing [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 17(16): 9979−10000. doi: 10.5194/acp-17-9979-2017

Huijnen V, Williams J, van Weele M, et al. 2010. The global chemistry transport model TM5: Description and evaluation of the tropospheric chemistry version 3.0 [J]. Geoscientific Model Development, 3(2): 445−473. doi:10.5194/gmd-3-445-2010

IPCC. 1995. Climate Change, The IPCC Scientific Assessment [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 572pp.

Janssens-Maenhout G, Crippa M, Guizzardi D, et al. 2015. HTAP_v2.2: A mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 15(19): 11411−11432. doi: 10.5194/acp-15-

11411-2015

Kaiser J C, Hendricks J, Righi M, et al. 2019. Global aerosol modeling with MADE3 (v3.0) in EMAC (based on v2.53) model description and evaluation [J]. Geoscientific Model Development, 12(1): 541−579. doi:10.5194/gmd-12-541-2019

Kiehl J T, Rodhe H. 1995. Modeling geographical and seasonal forcing due to aerosols [M]//Charlson R J, Heintzenberg J. Aerosol Forcing of Climate. Chichester: John Wiley and Sons, 281−296.

Lamarque J F, Emmons L K, Hess P G, et al. 2012. CAM-chem: Description and evaluation of interactive atmospheric chemistry in the Community Earth System Model [J]. Geoscientific Model Development, 5(2): 369−411. doi:10.5194/gmd-5-369-2012

Lana A, Bell T G, Simó R, et al. 2011. An updated climatology of surface dimethlysulfide concentrations and emission fluxes in the global ocean [J]. Global Biogeochemical Cycles, 25(1): GB1004. doi:10.1029/2010GB003850

Lee G, Park J, Jang Y, et al. 2010. Vertical variability of seawater DMS in the South Pacific Ocean and its implication for atmospheric and surface seawater DMS [J]. Chemosphere, 78(8): 1063−1070. doi:10.1016/j.chemosphere.2009.10.054

Li Y C, Xu Y F. 2012. Uptake and storage of anthropogenic CO_2 in the pacific ocean estimated using two modeling approaches [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 29(4): 795−809. doi: 10.1007/s00376-012-1170-4

Liang X Z. 1996. Description of a nine-level grid point atmospheric general circulation model [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 13(3): 269−298. doi:10.1007/BF02656847

Liu X H, Penner J E, Herzog M. 2005. Global modeling of aerosol dynamics: Model description, evaluation, and interactions between sulfate and nonsulfate aerosols [J]. J. Geophys. Res. Atmos., 110(D18): D18206. doi:10.1029/2004JD005674

Liu H L, Lin P F, Yu Y Q, et al. 2012. The baseline evaluation of LASG/IAP climate system ocean model (LICOM) version 2 [J]. Acta Meteor. Sinica, 26(3): 318−329. doi: 10.1007/s13351-012-0305-y

Lu Z, Zhang Q, Streets D G. 2011. Sulfur dioxide and primary carbonaceous aerosol emissions in China and India, 1996−2010 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 11(18): 9839−9864. doi: 10.5194/acp-11-9839-2011

罗淦, 王自发. 2006. 全球环境大气输送模式(GEATM)的建立及其验证 [J]. 大气科学, 30(3): 504−518. Luo Gan, Wang Zifa. 2006. A Global Environmental Atmospheric Transport Model (GEATM): Model description and validation [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 30(3): 504−518. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2006.03.13

Mann G W, Carslaw K S, Spracklen D V, et al. 2010. Description and evaluation of GLOMAP-mode: A modal global aerosol microphysics model for the UKCA composition-climate model [J]. Geoscientific Model Development, 3(2): 519−551. doi:10.5194/gmd-3-519-2010

Naik V, Voulgarakis A, Fiore A M, et al. 2013. Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 13(10): 5277−5298. doi:10.5194/acp-13-5277-2013

Nenes A, Pandis S N, Pilinis C. 1999. Continued development and testing of a new thermodynamic aerosol module for urban and regional air quality models [J]. Atmos. Environ., 33(10): 1553−1560. doi:10.1016/S1352-2310(98)00352-5

Penner J E. 2001. Aerosols, their direct and indirect effects [M]//Houghton J T, Ding Y, Griggs D J, et al. Climate Change 2001. The Scientific Basis. Cambridge: Cambridge University Press, 289−348.

Pope III C A, Burnett R T, Turner M C, et al. 2011. Lung cancer and cardiovascular disease mortality associated with ambient air pollution and cigarette smoke: Shape of the exposure-response relationships [J]. Environmental Health Perspectives, 119(11): 1616−1621. doi:10.1289/ehp.1103639

Powell H, Krall J R, Wang Y, et al. 2015. Ambient coarse particulate matter and hospital admissions in the medicare cohort air pollution study, 1999−2010 [J]. Environmental Health Perspectives, 123(11): 1152−1158. doi:10.1289/ehp.1408720

Price C, Penner J, Prather M. 1997. NO_x from lightning: 1. Global distribution based on lightning physics [J]. J. Geophys. Res. Atmos., 102(D5): 5929−5941. doi:10.1029/96JD03504

Randerson J T, van der Werf G R, Giglio L, et al. 2015. Global Fire Emissions Database, Version 4.1 (GFEDv4) [M]. Oak Ridge, Tennessee, USA: ORNL DAAC.

Sindelarova K, Granier C, Bouarar I, et al. 2014. Global data set of biogenic VOC emissions calculated by the MEGAN model over the last 30 years [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 14(17): 9317−9341. doi:10.5194/acp-14-9317-2014

Søvde O A, Prather M J, Isaksen I S A, et al. 2012. The chemical transport model Oslo CTM3 [J]. Geoscientific Model Development, 5(2): 1561−1626. doi:10.5194/gmd-5-1441-2012

Stockwell W R, Kirchner F, Kuhn M, et al. 1997. A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling [J]. J. Geophys. Res. Atmos., 102(D22): 25847−25879. doi:10.1029/97JD00849

Strader R, Lurmann F, Pandis S N. 1999. Evaluation of secondary organic aerosol formation in winter [J]. Atmos. Environ., 33(29): 4849−4863. doi:10.1016/S1352-2310(99)00310-6

Su T H, Xue F, Zhang H. 2014. Simulating the intraseasonal variation of the East Asian summer monsoon by IAP AGCM4.0 [J]. Adv. Atmos. Sci., 31(3): 570−580. doi:10.1007/s00376-013-3029-8

孙泓川, 周广庆, 曾庆存. 2012. IAP第四代大气环流模式的耦合气候系统模式模拟性能评估 [J]. 大气科学, 36(2): 215−233. Sun Hongchuan, Zhou Guangqing, Zeng Qingcun. 2012. Assessments of the climate system model (CAS-ESM-C) using IAP AGCM4 as its atmospheric component [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 36(2): 215−233. doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2011.11062

唐孝炎, 张远航, 邵敏. 2006. 大气环境化学 [M]. 北京: 高等教育出版社, 232−234. Tang X Y, Zhang Y H, Shao M. 2006. Atmospheric Environmental Chemistry (in Chinese) [M]. Beijing: Higher

Education Press, 232−234.

Taylor K E, Penner J E. 1994. Response of the climate system to atmospheric aerosols and greenhouse gases [J]. Nature, 369(6483): 734−737. doi:10.1038/369734a0

Tilmes S, Lamarque J F, Emmons L K, et al. 2015. Description and evaluation of tropospheric chemistry and aerosols in the Community Earth System Model (CESM1.2) [J]. Geoscientific Model Development, 8(5): 1395−1426. doi:10.5194/gmd-8-1395-2015

Walcek C J, Aleksic N M. 1998. A simple but accurate mass conservative, peak-preserving, mixing ratio bounded advection algorithm with FORTRAN code [J]. Atmos. Environ., 32(22): 3863−3880. doi:10.1016/S1352-2310(98)00099-5

王斌, 周天军, 俞永强, 等. 2008. 地球系统模式发展展望 [J]. 气象学报, 66(6): 857−869. Wang Bin, Zhou Tianjun, Yu Yongqiang, et al. 2008. A perspective on earth system model development [J]. Acta Meteor. Sinica (in Chinese), 66(6): 857−869. doi: 10.11676/qxxb2008.078

Wang Z F, Ueda H, Huang M Y. 2000. A deflation module for use in modeling long-range transport of yellow sand over East Asia [J]. J. Geophys. Res. Atmos., 105(D22): 26947−26959. doi: 10.1029/2000JD900370

Watanabe S, Hajima T, Sudo K, et al. 2011. MIROC-ESM 2010: Model description and basic results of CMIP5-20c3m experiments [J]. Geoscientific Model Development, 4(4): 845−872. doi:10.5194/gmd-4-845-2011

Wei Y, Chen X S, Chen H S, et al. 2019. IAP-AACM v1.0: A global to regional evaluation of the atmospheric chemistry model in CAS-ESM [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 19(12): 8269−8296. doi:10.5194/acp-19-8269-2019

Yan X Y, Ohara T, Akimoto H. 2005. Statistical modeling of global soil NO_x emissions [J]. Global Biogeochemical Cycles, 19(3): GB3019. doi:10.1029/2004GB002276

Yao Y, Huang J, Luo Y, et al. 2016. An upgraded scheme of surface physics for Antarctic ice sheet and its implementation in the WRF model [J]. Science Bulletin, 61(7): 576−584.

Zaveri R A, Peters L K. 1999. A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications [J]. J. Geophys. Res. Atmos., 104(D23): 30387−30415. doi:10.1029/1999JD900876

曾庆存, 周广庆, 浦一芬, 等. 2008. 地球系统动力学模式及模拟研究 [J]. 大气科学, 21(4): 653−690. Zeng Qingcun, Zhou Guangqing, Pu Yifen, et al. 2008. Research on the earth system dynamic model and some related numerical simulations [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 32(4): 653−690. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2008.04.01

张贺. 2009. 大气环流模式IAP-AGCM4.0的设计及其数值模拟 [D]. 中国科学院大气物理研究所博士学位论文, 194pp. Zhang He. 2009. Development of IAP atmospheric general circulation model version 4.0 and its climate simulations [D]. Ph. D. dissertation (in Chinese), Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, 194pp.

Zhang L M, Brook J R, Vet R. 2003. A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 3(6): 2067−2082. doi: 10.5194/acp-3-2067-2003

Zhang X Y, Wang Y Q, Zhang X C, et al. 2008. Carbonaceous aerosol composition over various regions of China during 2006 [J]. J. Geophys. Res. Atmos., 113(D14): D14111. doi: 10.1029/2007JD009525

Zheng B, Tong D, Li M, et al. 2018. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 18(19): 14095−14111. doi: 10.5194/acp-18-14095-2018

Zhu J W, Zeng X D, Zhang M H, et al. 2018. Evaluation of the new dynamic global vegetation model in CAS-ESM [J]. Adv. Atmos. Sci., 35(6): 659−670.

左瑞亭, 张铭, 张东凌, 等. 2004. 21层大气环流模式IAP AGCM-III的设计及气候数值模拟I. 动力框架 [J]. 大气科学, 28(5): 659−674. Zuo Ruiting, Zhang Ming, Zhang Dongling, et al. 2004. Designing and climatic numerical modeling of 21-Level AGCM (IAP AGCM-III) Part I. Dynamical framework [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 28(5): 659−674. doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2004.05.02