

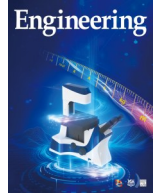


ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Engineering

journal homepage: www.elsevier.com/locate/eng



Research
Air Pollution Control—Article

小粒径和球形气溶胶对2003—2018年陆地总气溶胶光学厚度下降趋势贡献显著

桂柯^a, 车慧正^{a,*}, 李雷^a, 郑宇^a, 张磊^a, 赵胡笏^b, 仲峻霆^a, 要文瑞^a, 梁苑新^a, 王亚强^a, 张小曳^a

^a State Key Laboratory of Severe Weather & Key Laboratory of Atmospheric Chemistry of China Meteorological Administration, Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081, China

^b Institute of Atmospheric Environment, China Meteorological Administration, Shenyang 110166, China

ARTICLE INFO

Article history:

Received 20 January 2021

Revised 15 March 2021

Accepted 6 May 2021

Available online 12 August 2021

关键词

气溶胶光学厚度
多角度成像光谱辐射计
气溶胶污染等级
气溶胶类型
粒径和粒形

摘要

气溶胶光学和微物理特性是估计大气气溶胶气候强迫最大的不确定性之一。尽管气溶胶光学厚度(AOD)在全球及区域尺度上的演变趋势已经得到了广泛的研究,但对与气溶胶粒子特性相关的类型依赖AOD的变化趋势仍然知之甚少。在此,本研究利用多角度成像光谱辐射计(MISR)反演的气溶胶光学特性数据集,研究了2003—2018年期间陆地总AOD(TAOD)及其按粒径大小和粒形分离的类型依赖AOD的10年尺度趋势,分析了TAOD趋势和不同类型AOD演变之间的关系,并量化了不同类型AOD对TAOD趋势的相对贡献。通过将TAOD值分别按0.15、0.40和0.80的阈值划分为4个不同的气溶胶污染等级(APL),进一步探讨了TAOD演变与APL发生频率年际变化之间的关系。研究结果表明,2003—2018年期间,除南亚地区外,大多数陆地地区的空气质量都有明显改善,表现为从轻度污染转变为清洁状态。然而,不同的APL对TAOD变化的影响及其相关程度具有显著的区域性差异。此外,自2003年以来,陆地上的年均TAOD下降趋势达到 $0.47\% \cdot a^{-1}$ (通过95%置信度检验)。这种显著减少主要归因于小粒径(直径小于0.7 μm)AOD(SAOD)和球形AOD(SPAOD)的持续减少(分别为 $-0.74\% \cdot a^{-1}$ 和 $-0.46\% \cdot a^{-1}$)。统计分析表明,SAOD和SPAOD分别占TAOD的57.5%和89.6%,但对TAOD的趋势贡献可达82.6%和90.4%。最后,研究表明由硫酸盐、有机物和黑碳气溶胶组成的小粒径和球形气溶胶在驱动陆地TAOD年际变化中起主导作用。

© 2021 THE AUTHORS. Published by Elsevier LTD on behalf of Chinese Academy of Engineering and Higher Education Press Limited Company. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

1. 引言

人为或自然来源的大气气溶胶作为地球气候系统的关键扰动量之一,已被证明可通过气溶胶-辐射和气溶胶-云的相互作用等机制在全球到区域范围上不同程度地影响着天气、气候和环境[1–11]。此外,大气气溶胶[尤其是近地表细颗粒物($PM_{2.5}$)]在吸入人体后会对健康产生不利影

响,因为它们含有影响呼吸和循环系统的有毒物质,可能会增加发病率和死亡率[12–15]。

气溶胶光学厚度(AOD)是指大气气溶胶消光系数沿整个大气柱的积分,表征了大气气溶胶对太阳辐射的总体削减作用。作为衡量大气气溶胶负荷的关键指标之一,AOD已被广泛应用于城市、区域和全球尺度上的大气污染特征研究,并用来评估气溶胶对辐射、降水和云的影响

* Corresponding author.

E-mail address: chehz@cma.gov.cn (H. Che).

[1,16–19]。目前,已有多项研究基于地基观测、卫星遥感和数值模拟,研究了全球至区域尺度上AOD的年际和年内变化,并探讨了这些变化与人为排放、气象因素和气候强迫之间的关系[20–23]。然而,针对不同气溶胶负荷等级发生频率(FoO)的年际变化及该变化对总气溶胶负荷变化的影响却很少被关注。不同的气溶胶负荷与不同的气溶胶污染等级(APL)密切相关,其变化可以有效地反映空气质量的改善或恶化程度。因此,气溶胶造成的不良健康影响程度不仅是由气溶胶浓度的年际变化引起的,而且在很大程度上还取决于人类与不同气溶胶污染负荷接触的频率。

受地理位置、地形、下垫面特征、人口密度、污染源的临近程度、气象条件等多种因素的共同影响,区域气溶胶颗粒的浓度、粒径分布、粒形、化学组分和光学特性等方面存在较大差异[23–24]。即使AOD值相同,不同类型气溶胶由于具有粒径分布范围广、粒形复杂等特点,因此对气溶胶辐射强迫影响的量级和符号也不尽相同[18,25]。因此,除总AOD(TAOD)外,对全球和区域尺度上不同类型气溶胶类型AOD的年际变化进行系统分析,对于提高对气溶胶气候和环境效应的认识至关重要,这也将有助于更好地区分自然和人为气溶胶在驱动气溶胶总负荷年际变化中的作用。

本研究利用最新的多角度成像光谱辐射计(Multi-angle Imaging SpectroRadiometer, MISR) V23气溶胶光学特性产品,研究了2003—2018年期间陆地总气溶胶负荷及其按粒径大小和粒形分离的类型依赖AOD的年际变化和趋势,并探索了不同类型AOD对TAOD年际变化的影响和相对贡献。此外,通过将TAOD值分别按0.15、0.40和0.80的阈值划分为4个不同的APL,进一步研究了不同APL的FoO的气候学特征和演变趋势。本研究的目的是:①从气溶胶微物理特性(即粒径大小和粒形)的角度揭示驱动陆地和区域尺度上TAOD年际变化的主导气溶胶类型;②理解不同APL发生频率的时空分布演变特征。

2. 数据和方法

2.1. MISR气溶胶特性产品

搭载在Terra卫星上的MISR传感器,每9天可提供一次近全球覆盖的观测[26]。MISR沿着9个轨道观测角度,在4个可见光或近红外光谱波段观测地球大气层,这使MISR可以按颗粒类型对气溶胶负荷进行分类,并提供详细的气溶胶粒子特性信息[27]。在本研究中,使用了2003—2018年期间发布的最新版本F15_0032的三级(网格化)逐

月全球气溶胶特性产品(MIL3MAEN)。MISR三级气溶胶特性数据的空间分辨率为 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$,以分辨率更高(4.4 km)的二级(条带)气溶胶产品创建。与前一版算法(V22)相比,基于最新算法(V23)的MISR数据产品在精度和分辨率方面都有显著提升[28]。V23数据集由两个独立的反演算法生成——适用于陆地表面的异质地表(Het Surf)算法和适用于海洋或内陆深水的暗目标水域算法[29]。

本研究使用的参数为550 nm处的TAOD及其按三种粒径[小粒径(直径小于 $0.7 \mu\text{m}$)、中粒径(直径为 $0.7\sim 1.4 \mu\text{m}$)和大粒径(直径大于 $1.4 \mu\text{m}$)]以及两种粒形(球形和非球形)分离的类型依赖的AOD。以下将小粒径、中粒径、大粒径、球形和非球形AOD分别简写为SAOD、MAOD、LAOD、SPAOD和NSPAOD。注意,由于MISR V23版本产品不直接提供SPAOD,本文的SPAOD通过TAOD和NSPAOD的差值间接获得。MISR的粒径分类是以由对数正态分布描述的预定义粒子类型为基础,并由其特征宽度参数和半径来表征[30]。这些三模式的分类不同于大多数气溶胶光学特性研究中只区分细粒径和粗粒径的双模式描述。利用粒子特性反演算法,MISR将NSPAOD从TAOD分离出来。利用气溶胶地基遥感观测网络(Aerosol Robotic Network, AERONET)的地基观测数据评估MISR V23二级AOD产品,表明二者在陆地上的显著的一致性[相关系数(R)为0.81,均方根误差为0.154][28]。进一步的统计分析表明,在MISR反演的AOD值中,66.1%的匹配样本误差值处于AERONET AOD的0.03或10%的预期误差范围内[28]。更重要的是,MISR V23 AOD产品即使在低AOD范围内(即 $\text{AOD} < 0.1$)也可达到可接受的精度,因为MISR V23 AOD产品已基本消除了V22中对低AOD的不真实量化[28]。与TAOD不同,对气溶胶粒子特性精度的评估更具挑战性,部分原因是有关MISR粒子特性的地面和飞机验证数据非常稀少,同时遥感对粒子特性的敏感性相比AOD更依赖于反演条件。尽管如此,Kahn和Gaitley [31]通过对粒径和粒形进行约束反演分析在很大程度上证实了前期和后期理论敏感性研究的结果[32]。此外,个案研究表明,在现场观测中,MISR反演的非球形沙尘和球形粒子之间的区别十分显著。

2.2. MODIS、MERRA-2和CAMS AOD产品

利用MODIS/Terra和MODIS/Aqua反演的空间分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$ 的550 nm逐月网格化AOD数据(基于合并暗目标和深蓝算法反演,MOD08_M3和MYD08_M3),分析

了与MISR数据重叠期间陆地总气溶胶负荷的年际变化趋势。此外，本研究还使用了哥白尼大气监测局（Copernicus Atmosphere Monitoring Service, CAMS）和现代研究与应用回顾性分析第2版（Modern-Era Retrospective Analysis for Research and Applications, version 2, MERRA-2）气溶胶再分析产品开展了类似分析。CAMS的数据是由欧洲中期天气预报中心（European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF）制作的最新全球大气成分再分析数据集，其要素涵盖主要气体前体物、化学物种和气溶胶等[33]。MERRA-2是新现代卫星时代（1980年后）的第二代大气气溶胶再分析产品，该产品同化了气象观测和来自各种地面和卫星观测的AOD[34]。CAMS和MERRA-2 AOD数据的空间分辨率分别为 $0.75^\circ \times 0.75^\circ$ 和 $0.5^\circ \times 0.625^\circ$ 。就陆地平均值而言（见附录A中的图S1），MISR与其他4个数据集显示出较高的一致性， R 范围为0.60~0.83。

为了探究人为和自然气溶胶在驱动气溶胶总负荷年际变化中的作用，利用CAMS再分析中5种气溶胶组分的AOD，包括硫酸盐（SU）、沙尘（DU）、黑碳（BC）、有机物（OM）和海盐（SS）。在本研究中，将SU、BC和OM定义为人为细模态气溶胶（SU + BC + OM），而DU和SS被定义为自然粗模态气溶胶（DU + SS）。为了便于开展空间分析，将高空间分辨率（ $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ ）的MISR数据双线性插值到 $0.75^\circ \times 0.75^\circ$ 的CAMS分辨率。

2.3. 气溶胶污染等级发生频率的定义

通过统计每个 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ 网格像元内每日可用的二级AOD反演样本量，MISR的三级月AOD产品存储了8个不同AOD数值范围出现的月累计样本量。通常来说，不同的TAOD值对应着不同的APL。在本研究中，APL被划分为4个等级，包括清洁（APL 1）、轻度污染（APL 2）、中度污染（APL 3）和重度污染（APL 4），分别对应TAOD的范围为 < 0.15 、 $0.15\sim 0.40$ 、 $0.40\sim 0.80$ 和 > 0.80 。通过量化这4个不同APL的FoO，能够探讨其气候学特征、趋势以及与TAOD演变的联系。每个APL的FoO（%）定义如下：

$$\text{FoO} = \frac{N_{\text{APL}}}{N_{\text{all APLs}}} \times 100\% \quad (1)$$

式中， N_{APL} 和 $N_{\text{all APLs}}$ 分别代表特定APL和所有APL发生时的累积样本量。总的来说，TAOD的时空演变能够反映柱气溶胶浓度的变化，但却很难刻画不同气溶胶浓度等级的区域特征。因此，本研究量化了每个网格像元上不同APL的FoO，这将有助于深入地探索全球范围内不同APL

的分布特征，因为气溶胶造成的不良健康影响程度通常与人类接触不同气溶胶污染负荷的频率密切相关。

2.4. 相关性和趋势分析

在本研究中，采用Pearson's R 来研究TAOD趋势与类型依赖AOD和不同APL发生频率年际变化之间的关系。采用双尾 t 检验评估相关性的鲁棒性，统计显著性设置为95%的置信水平（即 $P < 0.05$ ）。利用Mann-Kendall（M-K） τ 检验[35–36]和Sen斜率法对全球和区域尺度上TAOD及不同气溶胶类型AOD进行趋势分析。为了确保趋势估计的鲁棒性，在进行趋势计算之前，需要确保每个年时间序列中至少有60%的数据是有效的。M-K趋势检验是一种非参数检验方法，其优点是不需要样本遵从一定的分布，也不受少数“异常值”的干扰。本研究应用Sen斜率来评估趋势值的强度，采用M-K统计检验来检验趋势是否显著（有兴趣的读者可以参考附录A中的文本S1，了解趋势估计的详细步骤和M-K统计检验）。

2.5. 分离类型依赖AOD的相对贡献

在MISR反演算法中，TAOD可以表示为：

$$\text{TAOD} = \sum_{i=1}^3 \beta_i \times \text{AOD}_{\text{size}}^i = \sum_{i=1}^2 \partial_i \times \text{AOD}_{\text{shape}}^i \quad (2)$$

式中， $\text{AOD}_{\text{size}}^i$ 和 $\text{AOD}_{\text{shape}}^i$ 分别代表每个按气溶胶粒径分离的AOD（即大、中、小粒径AOD）和每个按气溶胶粒形分离的AOD（即球形和非球形AOD）； β_i 和 ∂_i 是加权系数（均等于1）。通过与TAOD变化进行比较，量化不同粒径（粒形）AOD对TAOD趋势的相对贡献（RC，%）：

$$\text{RC}^i = \frac{\Delta^i}{\Delta_{\text{TAOD}}} \times 100\% \quad (3)$$

式中， Δ^i 和 Δ_{TAOD} 分别代表每个粒径分离或粒形分离AOD和TAOD的线性趋势。线性趋势由最小二乘法回归斜率确定，双尾 t 检验用于检测斜率在95%置信水平下是否显著。对于RC，其正（负）表明类型依赖AOD趋势对TAOD趋势表现出促进（抵消）作用。此外，利用下面的公式（4）和公式（5），可分别获得不同粒径和粒形AOD的非负RC（NRC）。

$$\text{NRC}_{\text{size}}^i = \frac{|\text{RC}_{\text{size}}^i|}{\sum_{i=1}^3 |\text{RC}_{\text{size}}^i|} \times 100\% \quad (4)$$

$$\text{NRC}_{\text{shape}}^i = \frac{|\text{RC}_{\text{shape}}^i|}{\sum_{i=1}^2 |\text{RC}_{\text{shape}}^i|} \times 100\% \quad (5)$$

在本研究中，只有当TAOD和类型依赖AOD的趋势值在95%置信水平下均显著时，RC或NRC才被认为是显

著的。利用公式 (3) ~ (5)，分别计算了2003—2018年期间每个 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ 网格上不同粒径或粒形 AOD 的年 RC 和 NRC。同样，应用上述方法，分离出 CAMS 再分析数据的不同组分 AOD (即 SU、BC、OM、DU 和 SS) 的 RC。

2.6. 子区域

由于大气气溶胶分布具有较高时空变异性，有必要研究气溶胶空间分布的不均匀性及其局部效应。因此，除关注全球陆地分布外，本研究还特别关注了 14 个子区域 (SR) 中类型依赖 AOD 的区域性分布和变化特征。这 14 个子区域包括北美 (NAM)、中美 (CAM)、南美 (SAM)、欧洲 (EUR)、北非 (NAF)、南非 (SAF)、中东 (MDE)、俄罗斯 (RUS)、中亚 (CAS)、南亚 (SAS)、东亚 (EAS)、中南半岛 (ICP)、东南亚 (SEA) 和澳大利亚 (AUS)。由于 Het Surf 算法在被大面积冰或雪覆盖的区域上性能表现不佳，因此南极洲和格陵兰地区的反演结果被排除在外[28]。这些 SR 的地理边界在附录 A 的图 S2 中用不同的色块表示。总的来说，与全球陆地平均值相比 (见附录 A 中的图 S1)，MISR 与其他产品在刻画所有 SR 上 AOD 的年际变化方面表现出良好的一致性，尽管在量级上略有差异 (见附录 A 中的图 S3)。具体而言，在 14 个 SR 中，MISR 与 MODIS/Terra、MODIS/Aqua、MERRA-2 和 CAMS 之间的 *R* 值分别为 0.28~0.99、0.40~0.98、0.44~0.95 和 0.45~0.98。

3. 结果和讨论

3.1. 不同类型 AOD 的全球分布

图 1 (a) 显示了按粒径 (大、中、小) 和粒形 (球形和非球形) 分离的多年 (2003—2018) 平均类型依赖 AOD 的分布情况。总的来说，在按粒径分离的气溶胶中，小粒径气溶胶对陆地气溶胶消光贡献最大，多年平均 SAOD 为 0.093；其次是大粒径和中粒径气溶胶，其陆地平均 AOD 值分别为 0.057 和 0.023。从空间分布来看，LAOD 主要分布在北半球的低纬度地区 ($0\sim 30^\circ\text{N}$)，其高值 (0.2~0.3) 多分布于沙尘源区 (包括撒哈拉沙漠、沙特阿拉伯沙漠和塔克拉玛干沙漠) 和高人为排放的地区，如印度北部和中国东部 (EC)。MAOD 的分布特征与 LAOD 相似，但其量级仅为 LAOD 的一半左右。相比之下，SAOD 的高值广泛存在于世界大部分陆地地区，其来源较为复杂，包括沙漠源区的细小矿物沙尘气溶胶、典型生物质燃烧排放区域的强吸收性细小或超细模态的气溶胶，以及来

自人为排放量较高地区的城市 and 工业气溶胶等。在按粒径分离的气溶胶中，球形气溶胶完全主导了全球陆地总气溶胶消光，全球平均 SPAOD 值 (0.149) 比 NSPAOD 值 (0.024) 高约 6 倍。一般来说，海盐、烟尘气溶胶和空气污染产生的二次气溶胶近乎球形，而沙尘气溶胶和生物碎片 (如花粉) 等粗颗粒物是非球形气溶胶。因此，NSPAOD 的全球分布规律与 LAOD 和 MAOD 非常相似，尤其是在沙尘源区。

进一步对多年平均类型依赖 AOD 占 TAOD 的比例的年平均 [图 1 (b)] 进行计算发现，从全球平均值来看，小粒径气溶胶在多年平均 TAOD 中所占比例最大 (57.5%)，其次是大粒径气溶胶 (32.2%)，而中粒径气溶胶的比例最小 (10.3%)。从气溶胶粒形来看，球形和非球形气溶胶分别贡献了 TAOD 的 89.6% 和 10.4%。如图 1 (b) ~ (i) 所示，除撒哈拉沙漠、阿拉伯半岛东部、伊朗高原、中国西北部和青藏高原 (TP) 东南部外，其他陆地地区的 LAOD 占 TAOD 的比例 (P_{LAOD}) 普遍小于 50%。值得注意的是，TP 多年平均 P_{LAOD} 为 40%~60%，这主要归因于来自沙源地的沙尘气溶胶的远距离传输[37]。受粒径范围窄 (直径为 $0.7\sim 1.4\ \mu\text{m}$) 以及气溶胶来源有限等影响，除了 NAF 地区 MAOD 占 TAOD 的比例 (P_{MAOD}) 在 30%~40% 外，其他陆地地区的 P_{MAOD} 变化不明显。对于小粒径气溶胶而言，SAOD 占 TAOD 比例 (P_{SAOD}) 的高值 (> 70%) 主要位于 CAM、NAM、SAM、SAF 和东西伯利亚等典型生物质燃烧区域。与按粒径分离的 AOD 分布不同，球形气溶胶在除 NAF、MDE 和 TP 以外的陆地地区的气溶胶消光总量的贡献几乎达到 90%。相比之下，撒哈拉沙漠是陆地非球形气溶胶的最主要源区，区域 NSPAOD 贡献可达 30%~60%。

3.2. 不同气溶胶污染等级发生频率的气候学特征与趋势

图 2 (a) 清晰地展示出不同 APL 的 FoO 的气候学分布有明显不同的陆地分布特征。总体上，随着陆地气溶胶负荷的增加，FoO 逐渐减少。从 APL 1 至 APL 4，陆地平均 FoO 分别为 63.1%、26.9%、8.5% 和 1.6%。对于 APL 1 (TAOD < 0.15，视为清洁条件)，高 FoO 主要分布在远离自然和人为气溶胶污染的地区，量级可达 80%~100%。值得注意的是，在非洲中北部、MDE、SAS 北部和中国中东部地区，APL 1 的 FoO 均低于 5%，表明这些地区的人群常年暴露在不同程度的气溶胶污染中。对于 APL 2 ($0.15 < \text{TAOD} < 0.40$ ，视为轻度污染)，多年平均 FoO 的高值 (50%~70%) 主要分布在 SAM 北部、NAF、MDE、CAS、SAS、SEA 和除 TP 外的中国大陆地区。值得注意

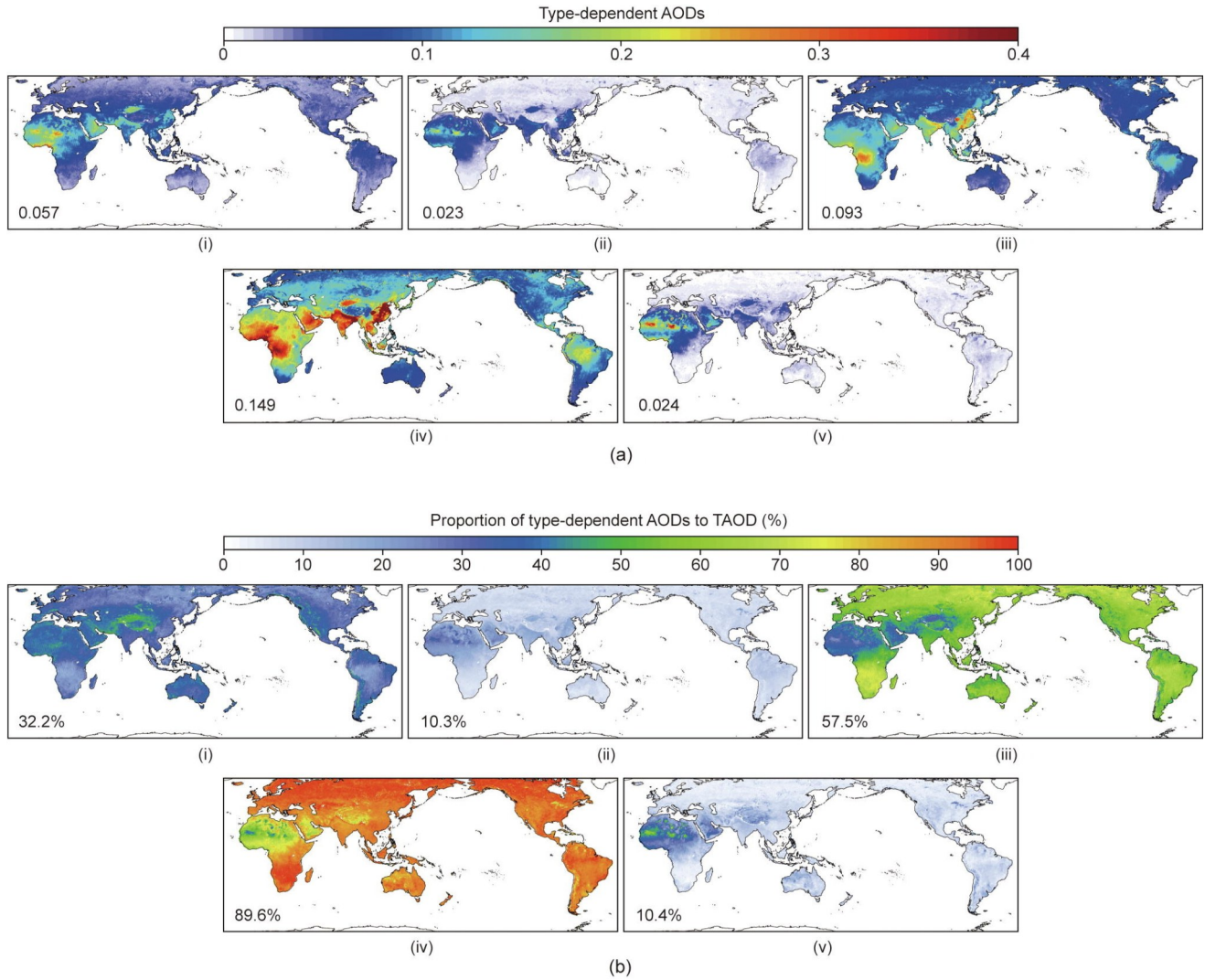


图1. 2003—2018年期间类型依赖AOD (a) 和类型依赖AOD占TAOD比例 (b) 的气候学分布。(i) 大粒径；(ii) 中粒径；(iii) 小粒径；(iv) 球形；(v) 非球形。每张图左下方给出的比例代表各变量的陆地平均值。

的是，APL 2 的 FoO 在 TP 为 0~30%，说明该地区也容易受到不同程度的气溶胶污染。以往的研究表明，TP 上空的气溶胶主要来自周边地区的输送，包括塔克拉玛干沙漠的春季沙尘气溶胶和 SAS 地区的人为气溶胶[37–38]。已经证实这些气溶胶通过气溶胶-辐射和气溶胶-云相互作用对 TP 的天气和气候系统产生重要影响[39]。

与 APL 2 的 FoO 空间分布模态相比，APL3 ($0.40 < \text{TAOD} < 0.80$ ，视为中度污染) 的 FoO 呈现出类似的分布特征，但强度有所减弱，其高值区的范围明显减少甚至偏移。例如，最高的 FoO ($> 60\%$) 主要分布在中非和印度北部，前者大多归因于夏季至冬季频发的生物质燃烧事件[40]，后者则与持续增强的人为排放有关[41]。同时，FoO 次高值 (20%~50%) 出现在 NAF、MDE、印度南部、中国东部和西北部以及 ICP 地区，而第三高的 FoO (10%~20%) 出现在 SAM 中部等地区，主要受到森林野

火的影响[42]。相比之下，APL 4 ($\text{TAOD} > 0.80$ ，视为重度污染) 的 FoO 表现出清晰而明显的空间分布，成功捕捉到了由不同气溶胶类型主导的几个世界著名高气溶胶污染地区[23]。例如，NAF 和 MDE 的主导气溶胶类型为沙尘气溶胶，中国华北和四川盆地人为气溶胶贡献最大，而中非、SAM 中部、ICP 和 SEA 则以生物质燃烧气溶胶为主导类型。这些结果表明，在 2003—2018 年期间，以上区域的人群在 10%~20% 的日子里经历着世界上最糟糕的大气环境条件。这些污染热点的空间分布与从卫星反演 AOD 估算的地表 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度高值相一致[43]。

量化不同 APL 的长期变化有助于揭示人们暴露于不同 APL 时 FoO 的历史演变情况。因此，进一步估计了不同 APL 的 FoO 变化趋势，如图 2 (b) 所示。趋势结果表明，不同 APL 的趋势分布模态截然不同。在全球范围内，陆地上 APL 1 的 FoO 在 2003—2018 年期间增加了 $0.238\% \cdot \text{a}^{-1}$

($P < 0.05$)。换言之, 在研究期间, 气溶胶状态达到清洁状态的天数增加了3.8%, 表明陆地上大多数地区的空气质量有显著改善, 尽管少数地区(如SAS和非洲中东部)呈现下降趋势。空间上, APL 1的FoO呈现出显著的增加趋势($2\% \cdot a^{-1} \sim 8\% \cdot a^{-1}$), 主要发生在NAF、整个EUR、NAM东部、SAM中部和EAS。然而, SAS和非洲中东部上APL 1的显著下降趋势意味着当地空气质量在研究期间呈现逐渐恶化的态势。

与APL 1的趋势分布相比, APL 2的趋势符号除在SAS和EAS没有明显变化外, 其他区域的趋势特征均出现了明显的逆转。普遍的负趋势导致APL 2的陆地平均FoO下降了 $0.209\% \cdot a^{-1}$ ($P < 0.05$)。

与APL 1和APL 2不同, APL 3的FoO呈现出完全相反的区域性趋势, 在SAS、MDE和NAF东部显著增加, 而在NAM东部、EUR中南部和EC显著减少。上述区域性正负趋势的相互抵消导致全球范围内陆地上的下降并不显著($-0.017\% \cdot a^{-1}$)。

类似于APL 3, APL 4同样显示了相反的区域趋势(与APL 1和APL 2相比), 但影响程度有所降低。具体而言, 与APL 3的趋势模态相比, APL 4在NAF的上升趋势更强、更广泛, 而在EC的下降幅度更剧烈、更集中。相比之下, 与APL 3在整个SAS上均呈现增加趋势不同, APL 4的增加趋势的覆盖范围明显减少。同样, 在MDE也观察到类似的转变。此外, APL 4在SAM中部呈现出异常显著的下降趋势。这些区域性的显著趋势共同导致APL 4在全球范围内出现不显著的轻微下降($-0.007\% \cdot a^{-1}$)。值得注意的是, 在EC区域, 本研究获得的关于APL 3和APL 4的减少和APL 2增加的结论与Zhang等[44]利用长期地基观测得到的结果一致, 即在EC区域, 中/重度雾霾事件的出现频率明显减少, 而轻/中度雾霾事件的出现频率并未呈现出减少趋势。Zhang等[44]指出, 重度雾霾事件出现频率的下降主要归因于二氧化硫(SO_2)的大幅减少[45–49]。然而, 在低 SO_2 条件下, 特定的化学反应机制(即BC表面的催化反应)阻碍了轻/中度雾霾事件出现频率的减少。为了进一步减少轻/中度雾霾事件的出现频率, 需要采取协同措施, 如同时控制 SO_2 和一次BC排放, 并持续减少其他气态前体物和气溶胶排放[44], 以显著降低区域总气溶胶负荷水平。

对陆地上不同APL的FoO具有显著变化趋势的所有网格像元进行概率密度函数(PDF)分析发现, APL 1和APL 2的演变趋势呈现出两个相反的单峰分布模态(峰值分别为 $2.06\% \cdot a^{-1}$ 和 $-2.77\% \cdot a^{-1}$), 表明全球陆地空气质量从轻度污染向清洁条件过渡[图3(a)]。不同APL的FoO

的年际变化也详细呈现了这一过渡过程(见附录A中的图S4)。相比之下, APL 3和APL 4类似的双峰(对应于左峰和右峰)分布在一定程度上促进和抵消了清洁条件的改善程度。通过比较不同APL在污染热点地区的趋势分布特点, 进一步将APL的区域演变特征归纳如下: ①在EC地区, APL 3和APL 4的FoO减少促进了APL 1和APL 2的FoO增加; ②在SAS地区, APL 3和APL 4的FoO增加导致APL 1和APL 2的FoO降低; ③在EUR和NAM东部, APL 2和APL 3的FoO降低促进了APL 1的FoO增加; ④在NAF和MDE地区, APL 2的FoO降低促进了APL 1、APL 3和APL 4的FoO增加。

为了确定是哪一个APL主导了区域TAOD的年际变化, 本研究通过相关分析探讨了APL和TAOD之间的关系, 结果图2(c)所示。总体上, 发现了两种相反的关系模态。具体而言, 除“沙尘带”(从NAF西海岸延伸并穿过MDE和SAS到中国西北)上方的TAOD和APL 1呈现出不显著相关外, TAOD和APL 1在几乎所有的陆地区域均呈现显著负相关。而在TAOD和APL 2之间, 这些显著的负相关(不显著的相关)完全相反, 呈现显著的正(负)相关。同时, 相比TAOD与APL 1和APL 2之间的相关分布, TAOD与APL 3和APL 4之间在全球几乎所有地区均呈现显著正相关。以上结果表明, 不同APL的FoO变化对TAOD年际演变的影响是复杂的, 且具有很强的区域依赖性。综合来看, 这些影响可简单概括为: ①APL 1的变化对沙尘源区和高人为排放地区的TAOD的年际变化的影响可以忽略不计, 主要受APL 2~APL 4变化的影响。②不同APL的FoO对TAOD的影响存在明显的区域差异。例如, 在TP, TAOD的变化主要由APL 1~APL 3调节。NAF则主要由APL 2~APL 4控制。在SAM中部, 主要以APL 1、APL 3和APL 4为主导。③APL 2~APL 4在自然或人为污染源区及其邻近地区表现出不同程度的主导驱动作用。

3.3. 类型依赖AOD的长期趋势

不同类型AOD的区域变化通常与受人类活动强度驱动的当地人为气溶胶和受气象条件驱动的自然气溶胶(如DU和SS)的变化密切相关。因此, 量化不同类型AOD的年际演变可以为评估全球和区域人为和自然气溶胶的趋势提供有用的参考。图4(a)和附录A中的图S5描绘了全球TAOD和按不同粒径分离的AOD的年际变化趋势。从图中观察到, 在2003—2018年期间, TAOD下降了 $0.47\% \cdot a^{-1}$ (即在研究的16年中下降了7.5%)。空间上, TAOD出现明显下降趋势($1\% \cdot a^{-1} \sim 5\% \cdot a^{-1}$)的区域主要

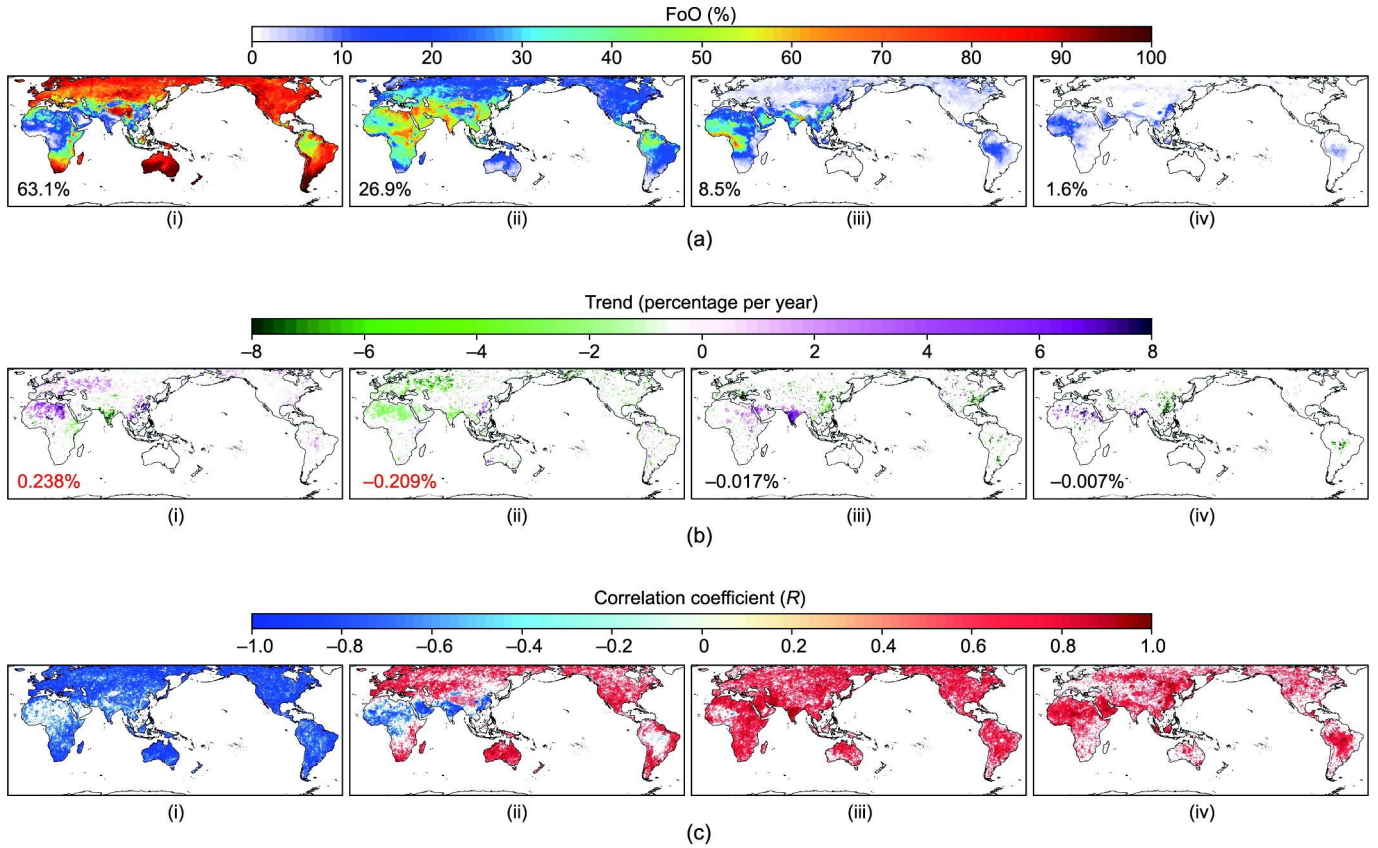


图2. (a) 2003—2018年期间不同APL的FoO的气候学分布特征。每张图左下角的数字代表FoO的陆地平均值。(b) FoO的年变化趋势,以百分比变化表示,即 $\frac{\text{Slope}}{\bar{y}} \times 100\%$,其中斜率代表Sen斜率, \bar{y} 代表年平均值。每张图左下角的数字代表从年平均时间序列计算出的百分比趋势值。注意,红色标记的数字表示趋势值通过M-K检验的95%显著性水平。(c) TAOD与不同APL的FoO年际变化之间的相关系数(R) (注意,只显示 R 通过95%显著性水平的网格像元)。(i) APL 1; (ii) APL 2; (iii) APL 3; (iv) APL 4。

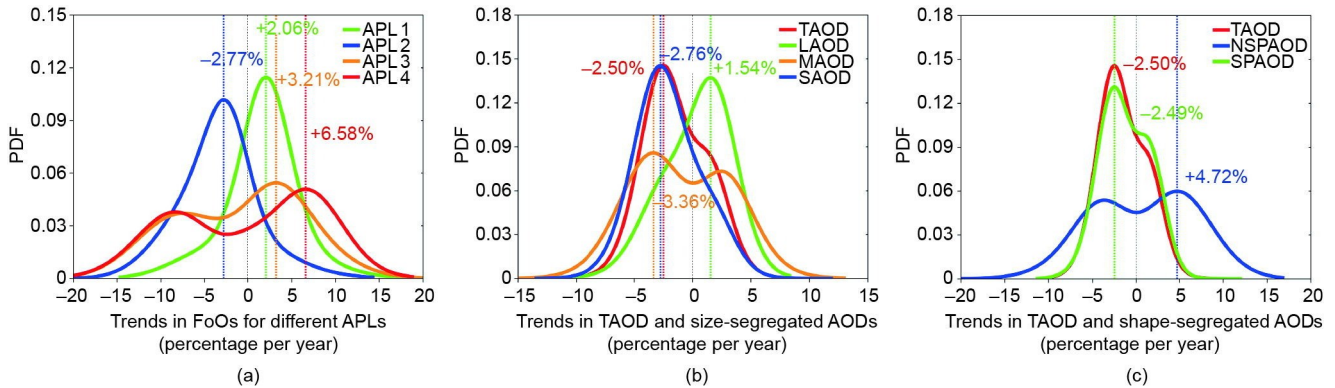


图3. APL (a)、TAOD和不同粒径AOD (b),以及TAOD和不同粒形AOD (c)趋势的概率密度函数(PDF)。彩色虚线表示每个独立变量的PDF峰值位置,而PDF峰值的位置和量级则分别用虚线和对应颜色的数字表示。注意,在这些统计中只应用了通过95%显著性水平检验的网格像元。

位于NAM西北部和东部、SAM中部、EUR和EC,而在SAS、MDE以及NAF中部和东部则观测到明显的上升趋势($2\% \cdot a^{-1} \sim 4\% \cdot a^{-1}$),这和以往对TAOD趋势的研究一致[23,50–51]。4个不同的AOD数据集(包括两个基于卫星反演的数据集——MODIS/Terra和MODIS/Aqua,以及两个气溶胶再分析数据集——MERRA-2和CAMS)的趋势值之间的相互比较也证实了这些显著的区域趋势(见附录

A中的图S6)。MISR与4种不同数据集之间的高 R 值进一步验证了不同AOD数据集之间的一致性(见附录A中的图S7)。

不同粒径AOD的趋势显示出类似的分布特征,但这些趋势的量级并不完全一致。总体而言,所有按粒径分离的AOD的下降均对TAOD的下降做出了贡献[图4(a)],其中SAOD的下降最明显,其陆地平均下降趋势值达到

$-0.74\% \cdot a^{-1}$ ($P < 0.05$) [见附录 A 中的图 S8 (a)]。对不同粒径 AOD 的趋势估计结果表明, 这些具有主导驱动作用的小粒径气溶胶往往趋向于球形, 两者 (SAOD 和 SPAOD) 在趋势中表现出高度相似的空间分布模态 [见附录 A 图 S9 (a) 中的 (i)]。此外, 陆地 NSPAOD 的年际变化不显著也间接印证了这一发现 [见附录 A 图 S9 (a) 中的 (ii)]。对于 LAOD, 具有上升趋势的地区主要位于 NAF 中部和东部、MDE、SAS、NAM 西部以及 RUS 北部和中部。沙尘源区的 TAOD 和 LAOD 呈相似的上升趋势, 说明大粒径气溶胶是主导这些区域总气溶胶负荷演变的主要气溶胶类型。这些地区的 TAOD、LAOD 和 NSPAOD 之间的高 R 值 (0.8~0.9) 也支持这一发现 [见图 4 (b) 中的 (i) 和附录 A 图 S9 (b) 中的 (ii)]。与 LAOD 相比, 除中非和 MDE 之外, MAOD 在所有地区的趋势都呈现出类

似的分布模态, 但其强度大大加强, 特别是在 SAS。相关分析表明, 与大粒径气溶胶相比, 中粒径气溶胶对 TAOD 年际变化的主导作用在空间上明显较分散。与之相反, SAOD 的趋势在空间分布和量级上均与 TAOD 保持高度一致 [见图 4 (a) 中的 (iii) 和附录 A 中的图 S5], 特别是在人为气溶胶主导的地区。这表明人为活动排放的小粒径气溶胶是驱动陆地 TAOD 变化的最主要气溶胶类型。TAOD、SAOD 和 SPAOD 的 PDF 几乎完全重叠, 表明小粒径和球形气溶胶颗粒是造成 2003—2018 年期间陆地上 TAOD 显著下降的主要气溶胶类型, 而不是与 NSPAOD、LAOD 和 MAOD 相关的自然矿物沙尘等气溶胶类型 [图 3 (b)、(c)]。此外, 由于大多数沙尘源区排放的沙尘气溶胶增加, 导致 LAOD 趋势的 PDF 右移, 削弱了 TAOD 的下降。小粒径球形气溶胶呈现不同程度的显著下降趋势,

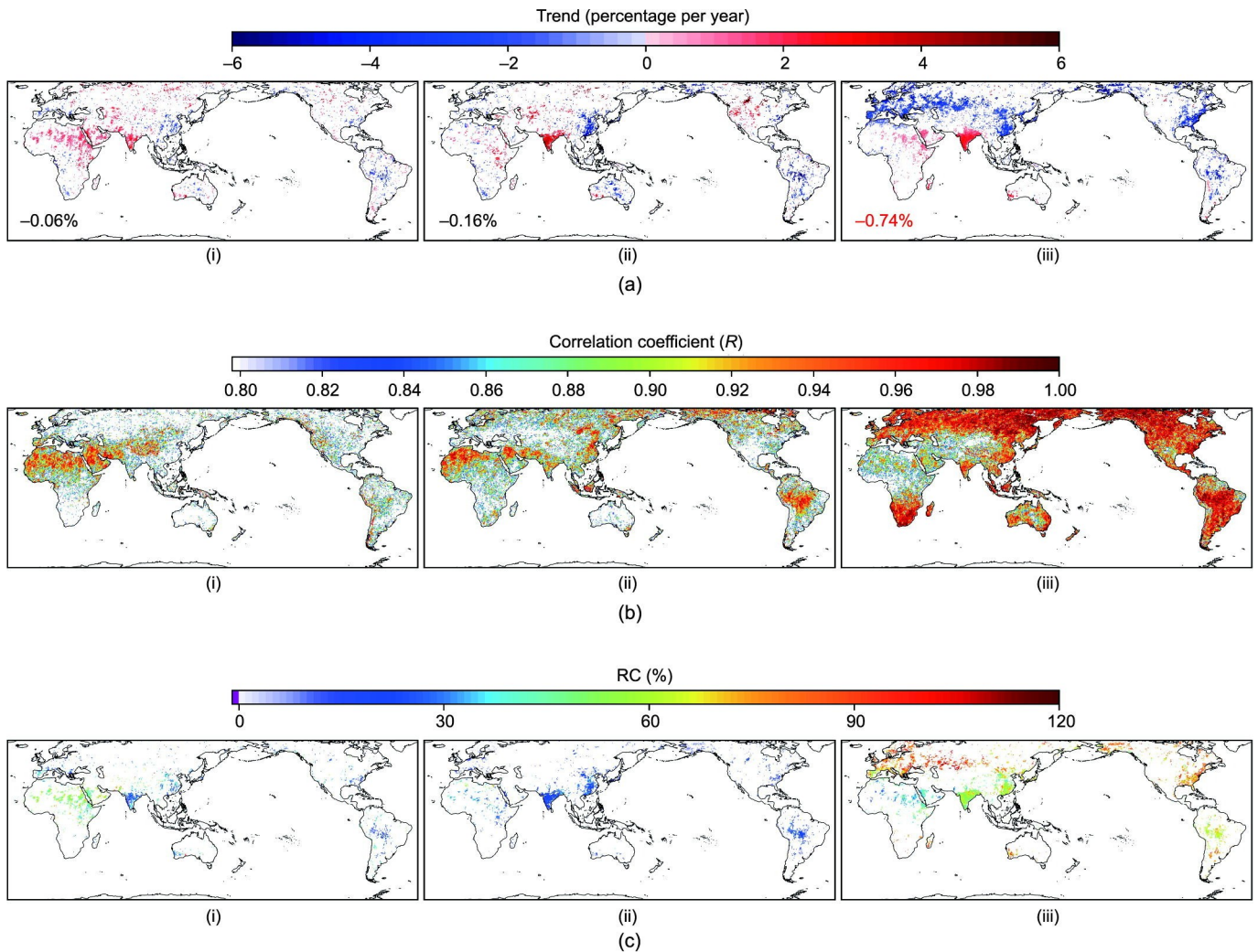


图 4. (a) 不同粒径 AOD 的年变化趋势。注意, 所有趋势都用百分比变化表示, 即 $\frac{\text{Slope}}{\bar{y}} \times 100\%$, 其中斜率代表 Sen 斜率, \bar{y} 代表年平均值。图中仅显示趋势值通过 95% 显著性水平的网格。每张图左下角的数字代表根据陆地年平均时间序列计算出的趋势值。红色标记的数字表示趋势值通过 M-K 检验的 95% 显著性水平。(b) 不同粒径 AOD 与 TAOD 年际变化之间的 R 值。(c) 不同粒径 AOD 对 TAOD 演变趋势的 RC。注意, 只有当 TAOD 和不同粒径 AOD 的演变趋势均显著时, 才会显示 RC。(i) LAOD; (ii) MAOD; (iii) SAOD。

这主要与过去十年来中上游地区的人为气溶胶（来自EAS、NAM东部和EUR）[22–23,47,52]和自然沙尘气溶胶（来自塔克拉玛干沙漠和戈壁沙漠）的持续减少有关[53–55]。

3.4. 类型依赖AOD对TAOD趋势的相对贡献

3.4.1. 陆地相对贡献图

根据式（3），本研究计算了2003—2018年期间每个 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ 网格像元内不同类型AOD的多年平均RC，结果如图4（c）和附录A中的图S9（c）所示。2003—2018年期间，LAOD和MAOD的RC空间分布基本一致，均在10%~30%，除了NAF（LAOD和MAOD的RC分别为50%~60%和20%~40%）。相比之下，SAOD的RC在NAM和EUR达到最大，为80%~90%；其次是SAS、EC和SAM，为50%~70%；NAF和MDE最低，为30%~40%。在SAS和EC，按粒径分离的AOD的RC分布相似，表明这两个地区的TAOD趋势受复杂的气溶胶来源控制[56–57]，人为气溶胶和自然气溶胶都发挥了不同的作用，但前者占主导地位。MISR反演的TAOD与CAMS再分析的人为和自然气溶胶之间存在的显著正相关关系（见附录A中的图S10）进一步证实了这一看法。不同粒形AOD的RC表明，TAOD的趋势主要受SPAOD变化控制，而NSPAOD的贡献几乎可以忽略不计，甚至起到抵消作用，如在SAS和RUS中部[见附录A中的图S9（c）]。按形状区分的AOD的RC表明，TAOD的趋势主要是由SPAOD推动的，而NSPAOD的贡献几乎可以忽略，甚至起到负向作用，如SAS和RUS中部[见附录A中的图S9（c）]。

3.4.2. 区域趋势和非负相对贡献

图5显示了全球陆地和14个SR上TAOD和不同类型AOD的变化趋势，以及这些不同类型AOD与TAOD趋势的NRC统计结果。从全球来看，陆地TAOD的大幅下降主要归因于小粒径和球形气溶胶颗粒的减少，其NRC分别为82.6%和90.4%。这一发现表明，小粒径和球形气溶胶的驱动作用占主导地位，因为这些NRS明显高于其在TAOD多年平均值中的比例[图1（b）]。SAOD、SPAOD与人为细模态AOD（ANT_FM_AOD）之间的 R 与TAOD和ANT_FM_AOD之间的 R 在空间上高度相似[见附录A中的图S10（a）]，表明小粒径和球形气溶胶主要由人为排放和生物质燃烧产生的SU、OM和BC组成。为了阐明气溶胶组分的作用，进一步分离出CAMS再分析中5个组分AOD的区域NRC，见附录A中的图S11。结果显示，SU和OM共同贡献了全球陆地TAOD变化的近74.0%，而

自然气溶胶（DU和SS）所占比例略低于20.0%。从区域来看，OM的NRC在EAS、SAS和SAM中占压倒性优势，分别为58.8%、50.4%和77.9%。相比之下，SU的主导作用在NAM（63.9%）和EUR（52.0%）更普遍。前人的研究也广泛证实了人为气溶胶在区域TAOD年际变化中的主导驱动作用。例如，Che等[23]基于统计模型指出，SU前体物（ SO_2 ）和碳质气溶胶是典型人为气溶胶主导地区和生物质燃烧主导地区TAOD年代际变化的主要排放驱动因子。Che等[23]揭示了气象因素对区域气溶胶负荷年代际变化的贡献不可忽略。探索气象因素影响气溶胶类型的复杂机制无疑是至关重要的，但这超出了本研究的范围。

在14个SR中，TAOD仅在SAS显示出显著的增加趋势（ $0.96\% \cdot \text{a}^{-1}$, $P < 0.05$ ）[图5（a）]，这主要归因于不同粒径AOD和SPAOD的显著增加。区域NRC表明，LAOD、MAOD、SAOD和SPAOD分别解释了SAS的TAOD趋势的28.8%、20.5%、50.8%和88.3%。相反，TAOD在EAS、EUR和CAS中表现出显著的减少趋势，趋势值分别为 $-1.49\% \cdot \text{a}^{-1}$ 、 $-1.65\% \cdot \text{a}^{-1}$ 和 $-0.69\% \cdot \text{a}^{-1}$ 。其中，EUR（CAS）中TAOD的下降与MAOD（SAOD）、SAOD（SPAOD）和SPAOD（NSPAOD）的下降密切相关，NRC分别为3.9%（77.8%）、88.9%（84.8%）和96.4%（15.2%）。相比之下，所有按类型分离的AOD的显著下降明显促进了EAS中TAOD的下降。就不同粒径AOD的NRC而言，最大的NRC出现在SAOD（68.2%），MAOD次之（17.4%），LAOD最少（14.4%）。就不同粒形AOD的NRC而言，SPAOD和NSPAOD分别贡献了EAS中TAOD下降趋势的89.7%和10.3%。

4. 结论

本研究利用MISR反演的长期（2003—2018年）气溶胶光学特性数据集，研究了全球陆地和14个子区域上与气溶胶粒子特性相关的类型依赖AOD的10年尺度趋势。随后，进一步分析了TAOD趋势和类型依赖AOD变化之间的关系，并量化了每个类型依赖AOD对TAOD趋势的RC。研究结果表明，就陆地平均而言，LAOD、MAOD、SAOD、SPAOD和NSPAOD对陆地TAOD的贡献分别为32.2%、10.3%、57.5%、89.6%和10.4%。趋势分析表明，2003—2018年，TAOD在全球陆地上经历了 $0.47\% \cdot \text{a}^{-1}$ 的下降（ $P < 0.05$ ）。空间上，这些显著的下降趋势主要位于NAM西北和东部、SAM中部、EUR、EC及其邻近海域，这与以往对于TAOD趋势的研究一致。对不同粒径AOD趋势的分析进一步表明，这种显著减少主要归因于SAOD

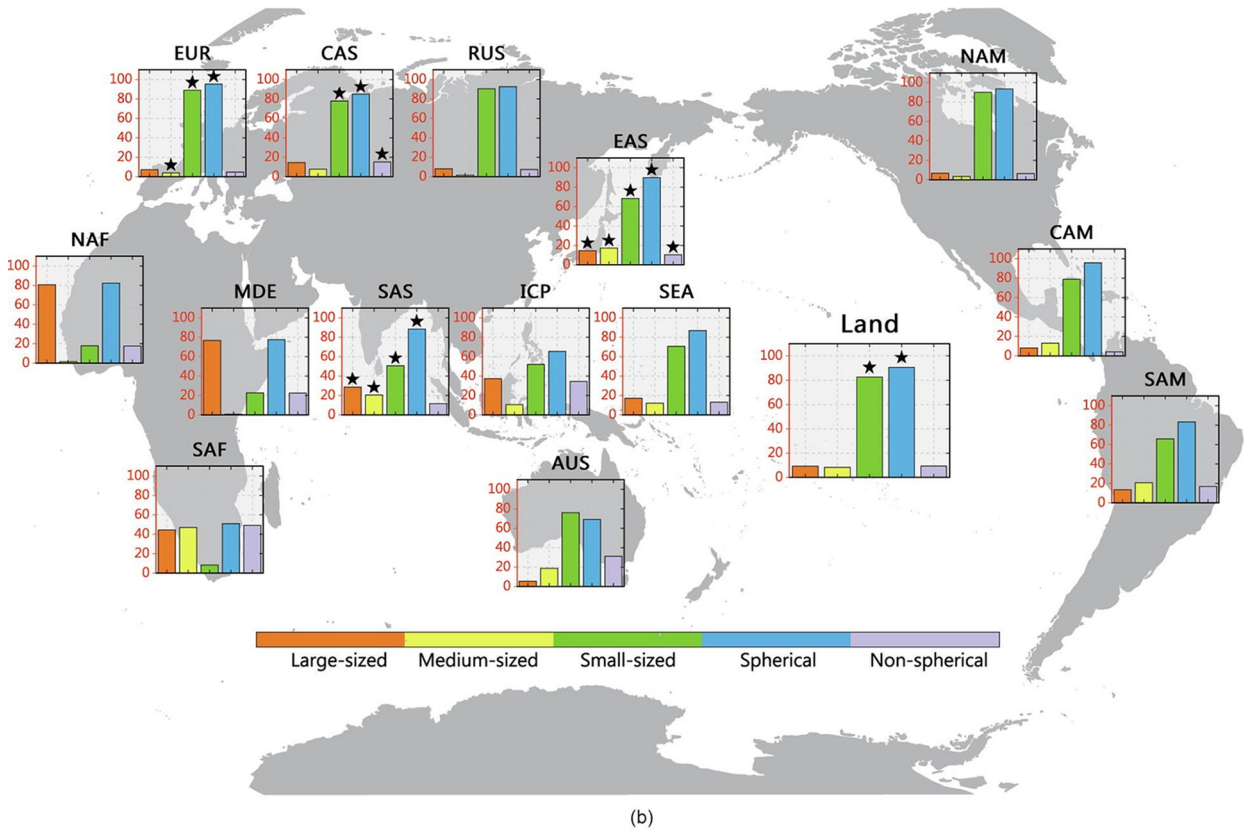
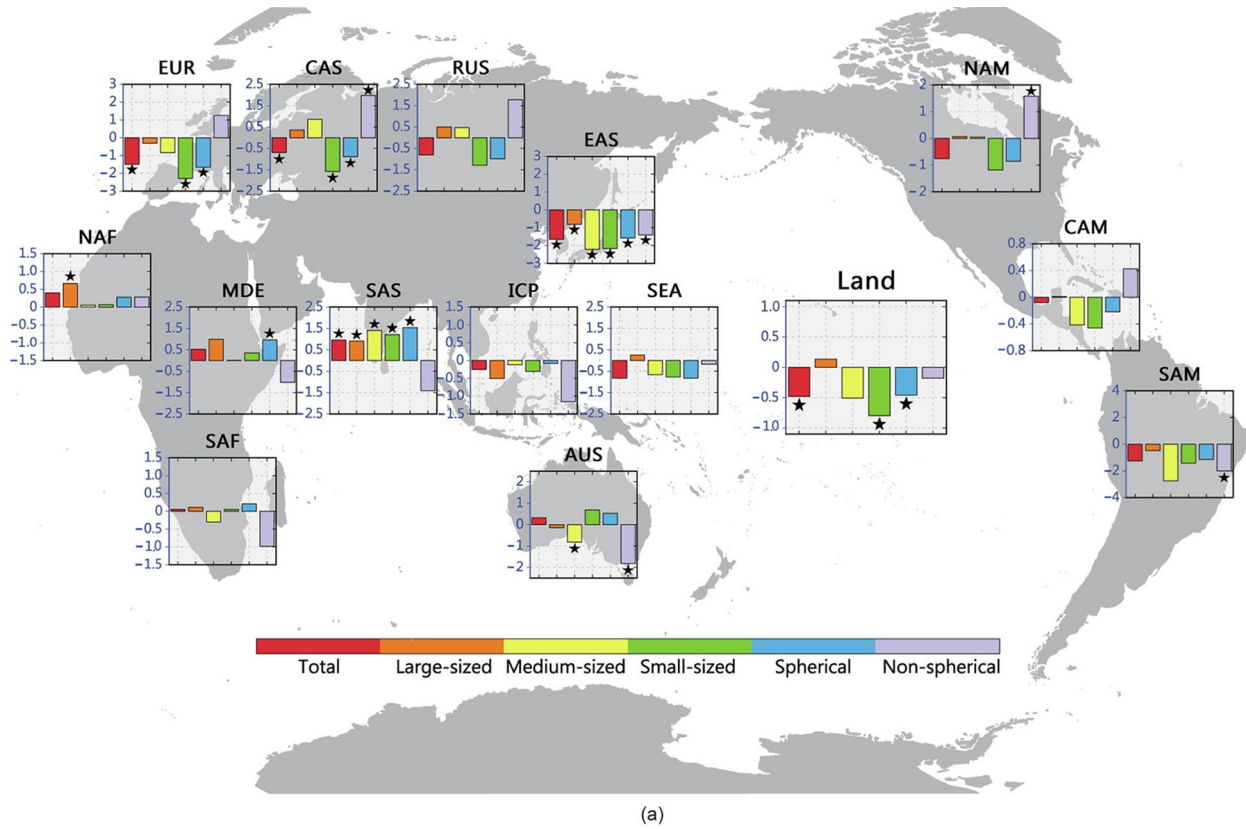


图5. (a) 2003—2018年期间, 根据区域年平均时间序列计算的TAOD和类型依赖AOD的区域性年际趋势(即Sen斜率, 百分比/年)的统计结果。注意, 每个柱子上方的星号表示趋势值通过M-K检验的95%显著性水平。(b) 类型依赖AOD对TAOD变化的区域NRC(%)。每个柱子上方的星号表示NRC通过双尾 t 检验的95%显著性水平。

($-0.74\% \cdot a^{-1}$) 和 SPAOD ($-0.46\% \cdot a^{-1}$) 的持续减少。除对演变趋势进行评估外, 本研究还独立量化了每个类型依赖 AOD 对 TAOD 趋势的 RC。结果表明, 陆地 TAOD 的年际变化主要受 SAOD 和 SPAOD 变化的控制, 两者对 2003—2018 年期间陆地 TAOD 年际变化的贡献为 82.6% 和 90.4%, 表明小粒径和球形气溶胶在陆地气溶胶年际变化中的主导驱动作用不容忽视。CAMS 再分析表明, 这些占主导驱动作用的气溶胶类型主要由人类活动和生物质燃烧排放的 SU、OM 和 BC 组成。

当 TAOD 被划分为 4 个不同的 APL 时, 它们的 FoO 往往会随着气溶胶负荷的增加而逐渐减少。从全球来看, 陆地 APL 1~APL 4 的多年平均 FoO 分别为 63.1%、26.9%、8.5% 和 1.6%。在 2003—2018 年期间, 全球陆地上 APL 1 (APL 2) 的 FoO 增加 (减少) 了 $0.238\% \cdot a^{-1}$ ($0.209\% \cdot a^{-1}$) ($P < 0.05$)。此外, 不同 APL 的 FoO 的 PDF 分布显示, 除 SAS 外, 大多数陆地地区的空气质量都有明显改善。总体而言, APL 经历了从轻度污染到清洁状态的转变。研究还发现不同 APL 的 FoO 对 TAOD 年际变化的影响是复杂的, 且具有强烈的区域依赖性。通常而言, 沙尘源区和高人为排放地区的 TAOD 年际变化主要受 APL 2~APL 4 的 FoO 变化的影响, 而 APL 1 变化的影响可忽略不计。

本研究表明, 由人为气溶胶组成的小粒径和球形气溶胶在陆地 TAOD 的年际变化中起主导作用。但本研究也存在一定的局限性。例如, MISR 传感器反演的气溶胶类型的不确定性对量化结果的影响尚不明确。由于受到时空采样率的限制, MISR 尚不具备每日全球覆盖的能力, 这可能会导致 MISR 反演的日平均 AOD 代表性不足, 因为大气气溶胶通常具有显著的日内变化特征[58–59]。为了解决这一局限性, 未来的工作需要进一步依靠地球静止卫星来约束区域 TAOD 的日内变化规律。此外, 小粒径和球形气溶胶对陆地 TAOD 下降趋势的显著贡献是归因于气溶胶浓度还是气溶胶消光程度还有待进一步研究。尽管如此, 卫星反演不同类型气溶胶的光学特性有助于更系统和深入地理解全球和区域尺度上的气溶胶变化, 特别是其粒径和粒形, 因为这些特性往往与人为和自然气溶胶的变化密切相关。更重要的是, 与以往大多数研究只关注 TAOD 趋势不同, 本研究揭示的小粒径和球形气溶胶的主导驱动作用能够为人们加深全球气溶胶演变规律的认识提供新的见解。鉴于人为气溶胶在 TAOD 变化中的主导驱动作用, 未来的研究应更多关注人为气溶胶化学组分及其微物理特性的变化对 TAOD 年代际变化的影响。

致谢

本研究得到了国家重点研发计划项目(2016YFA06019 01)、国家杰出青年科学基金项目(41825011)、国家自然科学基金项目(42030608、41590874 和 41941011)的资助。感谢 NASA 的 MISR 团队提供气溶胶特性反演产品。F15_0032 版本的 MISR 三级全球逐月气溶胶特性数据集 (MIL3MAEN) 可通过如下网站获取: <https://10dup05.larc.nasa.gov/L3Web/download>。MODIS 的逐月 AOD 产品 (MOD08_M3 和 MYD08_M3) 可通过 Giovanni 网站(<https://giovanni.gsfc.nasa.gov/giovanni/>) 获取。MERRA-2 全球逐月 AOD 场可通过戈达德地球科学数据和信息服务中心 (<https://disc.sci.gsfc.nasa.gov>) 获取。CAMS 全球逐月 AOD 场可通过哥白尼大气数据存储 (<https://ads.atmosphere.copernicus.eu/cdsapp#!/home>) 获取。

Compliance with ethics guidelines

Ke Gui, Huizheng Che, Lei Li, Yu Zheng, Lei Zhang, Hujia Zhao, Junting Zhong, Wenrui Yao, Yuanxin Liang, Yaqiang Wang, and Xiaoye Zhang declare that they have no conflict of interest or financial conflicts to disclose.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.eng.2021.05.017>.

References

- [1] Kaufman YJ, Koren I. Smoke and pollution aerosol effect on cloud cover. *Science* 2006;313:655–8.
- [2] Ramanathan V, Carmichael G. Global and regional climate changes due to black carbon. *Nat Geosci* 2008;1(4):221–7.
- [3] Koren I, Altaratz O, Remer LA, Feingold G, Martins JV, Heiblum RH. Aerosol-induced intensification of rain from the tropics to the mid-latitudes. *Nat Geosci* 2012;5(2):118–22.
- [4] Li Z, Lau WKM, Ramanathan V, Wu G, Ding Y, Manoj MG, et al. Aerosol and monsoon climate interactions over Asia. *Rev Geophys* 2016;54(4):866–929.
- [5] Yang Y, Russell LM, Lou S, Liao H, Guo J, Liu Y, et al. Dust–wind interactions can intensify aerosol pollution over eastern China. *Nat Commun* 2017; 8(1): 15333.
- [6] Jiang JH, Su H, Huang L, Wang Y, Massie S, Zhao B, et al. Contrasting effects on deep convective clouds by different types of aerosols. *Nat Commun* 2018; 9(1):3874.
- [7] Huang X, Ding A, Wang Z, Ding K, Gao J, Chai F, et al. Amplified transboundary transport of haze by aerosol–boundary layer interaction in China. *Nat Geosci* 2020;13(6):428–34.
- [8] Xu Y, Liu Y, Han Z, Zhou B, Ding Y, Wu J, et al. Influence of human activities on wintertime haze-related meteorological conditions over the Jing–Jin–Ji

- region. *Engineering* 2021;7(8):1185–92.
- [9] Ding Y, Wu P, Liu Y, Song Y. Environmental and dynamic conditions for the occurrence of persistent haze events in north China. *Engineering* 2017;3(2):266–71.
- [10] Liu C, Gao M, Hu Q, Brasseur GP, Carmichael GR. Stereoscopic monitoring: a promising strategy to advance diagnostic and prediction of air pollution. *Bull Am Meteorol Soc* 2021;102(4):1–19.
- [11] Xing C, Liu C, Wang S, Chan KL, Gao Y, Huang X, et al. Observations of the vertical distributions of summertime atmospheric pollutants and the corresponding ozone production in Shanghai, China. *Atmos Chem Phys* 2017;17(23):14275–89.
- [12] Xue T, Zhu T, Zheng Y, Zhang Q. Declines in mental health associated with air pollution and temperature variability in China. *Nat Commun* 2019;10:2165.
- [13] Lelieveld J, Evans JS, Fnais M, Giannadaki D, Pozzer A. The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale. *Nature* 2015;525(7569):367–71.
- [14] Liu H, Long Z, Duan Z, Shi H. A new model using multiple feature clustering and neural networks for forecasting hourly $PM_{2.5}$ concentrations, and its applications in China. *Engineering* 2020;6(8):944–56.
- [15] Hu J, Huang L, Chen M, Liao H, Zhang H, Wang S, et al. Premature mortality attributable to particulate matter in China: source contributions and responses to reductions. *Environ Sci Technol* 2017;51(17):9950–9.
- [16] Gui K, Che H, Chen Q, Zeng Z, Zheng Yu, Long Q, et al. Water vapor variation and the effect of aerosols in China. *Atmos Environ* 2017;165:322–35.
- [17] Koren I, Martins JV, Remer LA, Afargan H. Smoke invigoration versus inhibition of clouds over the amazon. *Science* 2008;321(5891):946–9.
- [18] Zhao B, Jiang JH, Diner DJ, Su H, Gu Yu, Liou KN, et al. Intra-annual variations of regional aerosol optical depth, vertical distribution, and particle types from multiple satellite and ground-based observational datasets. *Atmos Chem Phys* 2018;18(15):11247–60.
- [19] Liu Y, Hua S, Jia R, Huang J. Effect of aerosols on the ice cloud properties over the Tibetan Plateau. *J Geophys Res Atmos* 2019;124(16):9594–608.
- [20] Pozzer A, de Meij A, Yoon J, Tost H, Georgoulas AK, Astitha M. AOD trends during 2001–2010 from observations and model simulations. *Atmos Chem Phys* 2015;15(10):5521–35.
- [21] Zhao B, Jiang JH, Gu Y, Diner D, Worden J, Liou KN, et al. Decadal-scale trends in regional aerosol particle properties and their linkage to emission changes. *Environ Res Lett* 2017;12(5):054021.
- [22] Hammer MS, Martin RV, Li C, Torres O, Manning M, Boys BL. Insight into global vtrends in aerosol composition from 2005 to 2015 inferred from the OMI ultraviolet aerosol index. *Atmos Chem Phys* 2018;18(11):8097–112.
- [23] Che H, Gui K, Xia X, Wang Y, Holben BN, Goloub P, et al. Large contribution of meteorological factors to inter-decadal changes in regional aerosol optical depth. *Atmos Chem Phys* 2019;19(16):10497–523.
- [24] Li L, Che H, Derimian Y, Dubovik O, Luan Q, Li Q, et al. Climatology of fine and coarse mode aerosol optical thickness over East and South Asia derived from POLDER/PARASOL satellite. *J Geophys Res Atmos* 2020;125(16):e2020JD032665.
- [25] Stocker TF, Qin D, Plattner GK, Tignor MMB, Allen SK, Boschung J, editors. Climate change 2013 the physical science basis. Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge: Cambridge University Press; 2013.
- [26] Diner DJ, Beckert JC, Reilly TH, Bruegge CJ, Conel JE, Kahn RA, et al. Multi-Angle Imaging Spectroradiometer (MISR) instrument description and experiment overview. *IEEE Trans Geosci Remote Sens* 1998;36(4):1072–87.
- [27] Kahn R, Banerjee P, McDonald D. Sensitivity of multiangle imaging to natural mixtures of aerosols over ocean. *J Geophys Res Atmos* 2001;106(D16):18219–38.
- [28] Garay MJ, Witek ML, Kahn RA, Seidel FC, Limbacher JA, Bull MA, et al. Introducing the 4.4 km spatial resolution multi-angle imaging spectroradiometer (MISR) aerosol product. *Atmos Meas Tech* 2020;13(2):593–628.
- [29] Diner DJ, Martonchik JV, Kahn RA, Pinty B, Gobron N, Nelson DL, et al. Using angular and spectral shape similarity constraints to improve MISR aerosol and surface retrievals over land. *Remote Sens Environ* 2005;94(2):155–71.
- [30] Kahn RA, Gaitley BJ, Garay MJ, Diner DJ, Eck TF, Smirnov A, et al. Multiangle imaging spectroradiometer global aerosol product assessment by comparison with the aerosol robotic network. *J Geophys Res Atmos* 2010;115:D23209.
- [31] Kahn RA, Gaitley BJ. An analysis of global aerosol type as retrieved by MISR. *J Geophys Res* 2015;120(9):4248–81.
- [32] Kahn R, Petzold A, Wendisch M, Bierwirth E, Dinter T, Esselborn M, et al. Desert dust aerosol air mass mapping in the western Sahara, using particle properties derived from space-based multi-angle imaging. *Tellus B Chem Phys Meteorol* 2009;61(1):239–51.
- [33] Inness A, Ades M, Agustí-Panareda A, Barré J, Benedictow A, Blechschmidt AM, et al. The CAMS reanalysis of atmospheric composition. *Atmos Chem Phys* 2019;19(6):3515–56.
- [34] Buchard V, Randles CA, da Silva AM, Darmenov A, Colarco PR, Govindaraju R, et al. The MERRA-2 aerosol reanalysis, 1980-onward, part I: system description and data assimilation evaluation. *J Clim* 2017;30:6851–72.
- [35] Mann HB. Nonparametric tests against trend. *Econometrica* 1945;13(3):245–59.
- [36] Kendall MG. Rank correlation methods. 4th ed. London: Charles Griffin; 1975.
- [37] Xu C, Ma Y, Yang K, You C. Tibetan Plateau impacts on global dust transport in the upper troposphere. *J Clim* 2018;31(12):4745–56.
- [38] Zhu J, Xia X, Che H, Wang J, Cong Z, Zhao T, et al. Spatiotemporal variation of aerosol and potential long-range transport impact over the Tibetan Plateau, China. *Atmos Chem Phys* 2019;19(23):14637–56.
- [39] Zhao C, Yang Y, Fan H, Huang J, Fu Y, Zhang X, et al. Aerosol characteristics and impacts on weather and climate over the Tibetan Plateau. *Natl Sci Rev* 2020;7(3):492–5.
- [40] Zubkova M, Boschetti L, Abatzoglou JT, Giglio L. Changes in fire activity in Africa from 2002 to 2016 and their potential drivers. *Geophys Res Lett* 2019;46(13):7643–53.
- [41] David LM, Ravishankara AR, Kodros JK, Venkataraman C, Sadavarte P, Pierce JR, et al. Aerosol optical depth over India. *J Geophys Res Atmos* 2018;123(7):3688–703.
- [42] Koren I, Remer LA, Longo K. Reversal of trend of biomass burning in the Amazon. *Geophys Res Lett* 2007;34(20):2–5.
- [43] Hammer MS, van Donkelaar A, Li C, Lyapustin A, Sayer AM, Hsu NC, et al. Global estimates and long-term trends of fine particulate matter concentrations (1998–2018). *Environ Sci Technol* 2020;54(13):7879–90.
- [44] Zhang F, Wang Y, Peng J, Chen L, Sun Y, Duan L, et al. An unexpected catalyst dominates formation and radiative forcing of regional haze. *Proc Natl Acad Sci USA* 2020;117(8):3960–6.
- [45] Zhang C, Liu C, Hu Q, Cai Z, Su W, Xia C, et al. Satellite UV–Vis spectroscopy: implications for air quality trends and their driving forces in China during 2005–2017. *Light Sci Appl* 2019;8(1):100.
- [46] Zhang C, Liu C, Chan KL, Hu Q, Liu H, Li B, et al. First observation of tropospheric nitrogen dioxide from the environmental trace gases monitoring instrument onboard the GaoFen-5 satellite. *Light Sci Appl* 2020;9(1):66.
- [47] Zhang Q, Zheng Y, Tong D, Shao M, Wang S, Zhang Y, et al. Drivers of improved $PM_{2.5}$ air quality in China from 2013 to 2017. *Proc Natl Acad Sci USA* 2019;116(49):24463–9.
- [48] Xie M, Duan H, Kang P, Qiao Q, Bai L. Toward an ecological civilization: China’s progress as documented by the second national general survey of pollution sources. *Engineering* 2021;7(9):1336–41.
- [49] Lu X, Zhang S, Xing J, Wang Y, Chen W, Ding D, et al. Progress of air pollution control in China and its challenges and opportunities in the ecological civilization era. *Engineering* 2020;6(12):1423–31.
- [50] Klingmüller K, Pozzer A, Metzger S, Stenichkov GL, Lelieveld J. Aerosol optical depth trend over the Middle East. *Atmos Chem Phys* 2016;16(8):5063–73.
- [51] Jin Q, Pryor SC. Long-term trends of high aerosol pollution events and their climatic impacts in north America using multiple satellite retrievals and modern-era retrospective analysis for research and applications version 2. *J Geophys Res Atmos* 2020;125(4):e2019JD031137.
- [52] Zheng B, Tong D, Li M, Liu F, Hong C, Geng G, et al. Trends in China’s anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions. *Atmos Chem Phys* 2018;18(19):14095–111.
- [53] Wang X, Liu J, Che H, Ji F, Liu J. Spatial and temporal evolution of natural and anthropogenic dust events over northern China. *Sci Rep* 2018;8(1):2141.
- [54] Liu J, Wu D, Liu G, Mao R, Chen S, Ji M, et al. Impact of Arctic amplification on declining spring dust events in East Asia. *Clim Dyn* 2020;54(3–4):1913–35.
- [55] Yao W, Gui K, Wang Y, Che H, Zhang X. Identifying the dominant local factors of 2000–2019 changes in dust loading over East Asia. *Sci Total Environ* 2021;777:146064.
- [56] Zhou D, Ding K, Huang X, Liu L, Liu Q, Xu Z, et al. Transport, mixing and feedback of dust, biomass burning and anthropogenic pollutants in eastern Asia: a case study. *Atmos Chem Phys* 2018;18(22):16345–61.
- [57] Sun T, Che H, Qi B, Wang Y, Dong Y, Xia X, et al. Aerosol optical characteristics and their vertical distributions under enhanced haze pollution events: effect of the regional transport of different aerosol types over eastern China. *Atmos Chem Phys* 2018;18(4):2949–71.
- [58] Wang J, Xia X, Wang P, Christopher SA. Diurnal variability of dust aerosol

optical thickness and Angström exponent over dust source regions in China. Geophys Res Lett 2004;31(8):L08107.
[59] Christopher SA, Wang J. Intercomparison between Multi-Angle Imaging

Spectroradiometer (MISR) and sunphotometer aerosol optical thickness in dust source regions over China: implications for satellite aerosol retrievals and radiative forcing calculations. Tellus B Chem Phys Meterol 2004;56(5):451–6.