

不同模式版本对长三角区域大气污染物模拟结果对比评估

卢怡, 赵雪芬, 赵瑜*

(南京大学环境学院, 污染控制与资源化研究国家重点实验室, 江苏 南京 210023)

摘要: 选取2015年1、4、7、10月(分别代表冬、春、夏、秋4季), 应用CMAQv4.7.1和CMAQv5.1模式模拟长三角区域的空气质量, 对比了NO₂、SO₂、O₃、PM_{2.5}4个常规污染物的模拟结果, 表明CMAQv5.1对NO₂、SO₂和PM_{2.5}的模拟效果优于CMAQv4.7.1, 而CMAQv4.7.1的O₃模拟效果优于CMAQv5.1; CMAQv5.1的NO₂模拟值更接近地面观测值, 比起不同版本的化学机制对NO₂模拟效果的影响, NO₂的模拟偏差受排放高估的影响更大; 2个版本SO₂的模拟值差距较小, 且都与地面观测值之间差异较小; CMAQv5.1 PM_{2.5}的模拟值比CMAQv4.7.1更接近观测值, 气溶胶模块机制的更新(例如新增细分的PM_{2.5}模式物种和部分二次有机气溶胶生成机制的改进等)对PM_{2.5}模拟效果的改善显著; CMAQv5.1的O₃模拟值比CMAQv4.7.1高, CMAQv5.1的O₃模拟值在O₃观测值的高值时段更接近观测值, 而CMAQv4.7.1的O₃模拟值在低值时段更接近观测值, CMAQv5.1在日最大8小时平均(MDA8)O₃观测浓度超标日的O₃模拟效果相比CMAQv4.7.1有一定程度的改善, 但在非超标日模拟效果变差, CMAQv5.1的O₃模拟效果总体相比CMAQv4.7.1并未得到有效提升。提出, 未来针对低值时段和低值区域的O₃模拟机制的改进将进一步提升O₃模拟效果。

关键词: 区域多尺度空气质量模型; 模式评估; 长三角地区

中图分类号: X823

文献标志码: B

文章编号: 1674-6732(2020)03-0005-10

The Comparison and Evaluation of Air Pollutant Simulation for the Yangtze River Delta Region with Different Versions of Air Quality Model

LU Yi, ZHAO Xue-fen, ZHAO Yu*

(School of the Environment, Nanjing University, State Key Laboratory of Pollution Control and Resources Reuse, Nanjing, Jiangsu 210023, China)

Abstract: CMAQ v5.1 and CMAQ v4.7.1 were applied to simulating the air quality in Yangtze River Delta (YRD) region in January, April, July and October in 2015 (representing winter, spring, summer and autumn respectively), and the simulation results of regular pollutants (NO₂, SO₂, O₃ and PM_{2.5}) were compared. The results indicated CMAQv5.1 showed a better simulation performance of NO₂, SO₂ and PM_{2.5} concentrations than CMAQv4.7.1, but worse simulation performance of O₃ concentration. The simulated NO₂ concentrations of CMAQv5.1 were closer to the observed values than that of CMAQv4.7.1. The deviations of NO₂ simulations were more affected by the overestimation of emissions instead of chemical mechanisms of different versions. No obvious difference in SO₂ between the two versions was observed and both of simulated SO₂ concentrations of two versions were close to the observed values. The simulated PM_{2.5} concentrations of CMAQv5.1 were closer to the observed values. The improvement on PM_{2.5} simulation was obvious, attributable to the newly added secondary organic aerosols and the emission subdivision species in the updated mechanisms. The simulated O₃ concentrations of CMAQv5.1 were higher than that of CMAQv4.7.1. During the period with high O₃ concentration level, the simulated O₃ concentrations of CMAQv5.1 were closer to the observed values. However, the simulated O₃ concentrations of CMAQv4.7.1 were closer to the observed values during the period with low O₃ concentration level. CMAQv5.1 performs better than CMAQv4.7.1 during the periods when observed Maximum Daily 8-hour

收稿日期: 2020-03-20; 修订日期: 2020-03-23

基金项目: 国家自然科学基金委重大联合研究计划重点支持基金资助项目(0211-13001049)

作者简介: 卢怡(1995—)女, 硕士研究生, 从事大气污染研究工作。

* 通讯作者: 赵瑜 E-mail: yuzhao@nju.edu.cn

Average (MDA8) O_3 concentrations exceed the standard, while CMAQv4.7.1 performs better during the periods when concentrations do not exceed the standard. In general, the O_3 simulation has not been effectively improved. It is recommended that, in the future, the modification of O_3 simulation in relatively low-level period and region will be helpful for the improvement of O_3 simulation.

Key words: CMAQ; Model evaluation; Yangtze River Delta Region

0 引言

区域多尺度空气质量模型(Community Multiscale Air Quality, CMAQ)是由美国国家环境保护局(Environmental Protection Agency, EPA)开发的第三代空气质量预报和评估系统,被广泛地应用于区域环境质量评估、污染成因分析、决策研究和空气质量预报等。CMAQ在模拟过程中能将天气系统中、小尺度气象过程对污染物的输送、扩散、转化和迁移过程的影响融为一体考虑,同时兼顾了区域与城市尺度之间大气污染物的相互影响以及污染物在大气中的各种化学过程,包括液相化学过程、非均相化学过程、气溶胶过程和干湿沉积过程对浓度分布的影响^[1]。为了改进以往模式版本中的空气动力学和化学机制问题,减少模式模拟中的系统偏差,CMAQ在过去的15 a中不断更新版本^[2]。不同模式版本内在机制的差异可能会直接影响污染成因认识的客观性、管理决策的有效性和预报的准确性,因此模式对比评估工作一直是模式研发和应用的重要内容^[3]。

不同区域的气象条件和污染物实际排放情况不尽相同,这些差异导致不同区域对不同化学机制的适应性也不尽相同。除了EPA官方发布的针对美国地区的各个版本的评估结果,全世界各个地区也有相关的评估工作^[2,4-10]。在中国有不同研究者开展了CMAQ模式研究。黄晓波等^[3]比较了CMAQv4.7.1和CMAQv5.0.2 2个版本对2013年12月珠三角区域细颗粒物($PM_{2.5}$)的模拟结果,发现2个版本模式效果类似,但CMAQv4.7.1对颗粒物的模拟效果更好。李莉等^[11]结合大气污染物排放清单^[12],利用CMAQ模型的综合过程速率法计算了高污染期不同大气过程的贡献,分析了2010年8月上海的臭氧(O_3)污染事件成因。袁良等^[13]分析了2007年客观源清单^[14]在CMAQv4.6中的模拟结果,发现CMAQv4.6模拟的底层大气污染物的日变化特征符合化学机理,二氧化氮(NO_2)、一氧化氮(NO)、二氧化硫(SO_2)、 O_3 的模拟浓度的空间分布也较为合理。吴小芳等^[15]利用

CMAQv4.7.1模拟了杭州2010年5月的 NO_2 、 SO_2 和可吸入颗粒物(PM_{10}),结果表明模拟效果良好,平均值偏差均 $<10\%$ 。Zhou等^[16]利用CMAQv4.7.1比较了2012年10月中国多尺度排放清单模型(Multi-resolution Emission Inventory for China, MEIC; <http://www.meicmodel.org/>)和更加本地化的区域排放清单在长三角的 NO_2 、 SO_2 、 O_3 和 $PM_{2.5}$ 的模拟结果,发现本地化的排放清单的模拟值与地面观测的污染物值更为接近。

目前针对长三角区域的不同版本CMAQ模式的模拟评估工作还未见报道。在CMAQv4.7.1到CMAQv5.1的各个版本的更新过程中,气溶胶化学机制由AERO5更新至AERO6,与 O_3 密切相关的光化学机制也有了较大的改进。在EPA发布的评估结果中,不同版本的 $PM_{2.5}$ 和 O_3 的模拟结果都有较为明显的差异,CMAQv5.1的模拟结果与地面观测结果的相关性更高。但黄晓波等^[3]针对珠三角区域的模式评估结果与EPA针对美国区域的评估结果不同,认为CMAQv4.7.1的 $PM_{2.5}$ 模拟效果优于CMAQv5.0.2。因此,不同版本的空气质量模式在我国经济发达、污染物排放强度较高的典型地区(如长三角)的应用有何种差异,在未来的区域空气质量研究中,针对不同的关注问题采用何种版本更为适合成为值得探索的问题。在长三角地区,对多种版本空气质量模式进行评估的需求也日益迫切,现选取2015年1、4、7、10月(分别代表冬、春、夏、秋4季),采用CMAQv4.7.1和CMAQv5.1模拟长三角区域的空气质量,对比了 NO_2 、 SO_2 、 O_3 、 $PM_{2.5}$ 4个常规污染物的模拟结果,为未来长三角区域的CMAQ应用提供参考。

1 研究方法

1.1 模式设置

1.1.1 模拟区域

CMAQv4.7.1和CMAQv5.1的模拟区域一致,采用2层嵌套网格,见图1。第1层网格区域(D1)覆盖大部分中国,网格分辨率为 $27\text{ km} \times 27\text{ km}$;第

2层网格区域(D2)覆盖长三角地区,主要包括江苏、浙江、上海、安徽及周边省份的部分地区,网格分辨率为 $9\text{ km}\times 9\text{ km}$ 。整个模拟区域均采用兰伯特投影坐标系(Lambert Conformal Conic Projection) 2条真纬度分别为 40°N 和 25°N ,网格坐标系原点坐标为(110°E , 34°N)。

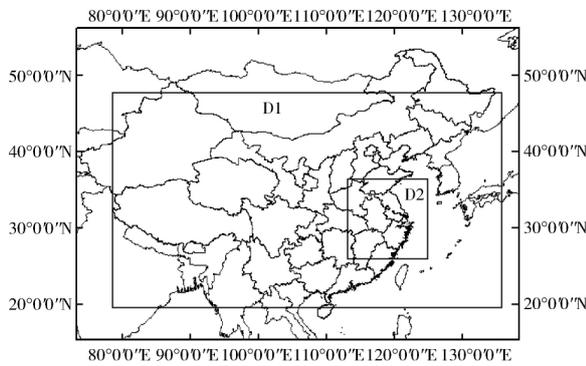


图1 CMAQ 2层嵌套模拟区域

1.1.2 模拟时间

2个版本的模拟时间为2015年1、4、7、10月,分别代表冬、春、夏、秋4季。为减少初始条件对模拟结果的影响,将每月前7d作为CMAQ模型的“spin-up”时段,重点探究每个月7d之后的空气质量模拟情况。

1.1.3 模拟参数

2个版本的平流、垂直对流、垂直扩散、水平扩散、干沉降方案所用模组均一致,分别为hyamo、vyamo、acm2、Multiscale和Aero_dep2,气象化学机理均采用CB05,垂直分层均为27层,对应垂直层的eta设置也一致,唯一不同的参数是CMAQv4.7.1的气溶胶化学机理为AERO5,而CMAQv5.1的是AERO6。

1.1.4 版本机制差异

2个版本在化学反应机制上的差异主要集中在:CMAQv5.1调整了与 NO_2 和 SO_2 相关的化学反应,新增了 SO_2 的催化氧化途径,调整了光解和云模型处理模块,在新的AERO6的气溶胶化学机制中新增了和长链烃和萘有关的二次有机气溶胶物种,修改了异戊二烯氧化的高 HO_x 生成路径,并在排放输入中进一步细分了 $\text{PM}_{2.5}$ 物种等方面。

1.2 数据来源

1.2.1 气象输入

模式所使用的气象场均为中尺度气象预报和

资料同化系统WRFv3.4(<http://www.wrf-model.org/index.php>)模拟的气象场。虽然EPA建议将改进了空气动力学模块的CMAQv5.1与WRFv3.7联用,但本研究主要聚焦在不同版本的不同化学机制对模拟效果带来的影响问题,并且WRFv3.4与WRFv3.7的气象模拟结果差异较小^[2],因此选择了相同的气象场作为2个版本的CMAQ的气象输入。地形和地表类型采用美国地质调查局(United States Geological Survey, USGS)的全球数据,以 $1.0^{\circ}\times 1.0^{\circ}$ 的6h NCEP再分析数据作为气象模拟的初始场和边界场(Final Operational Global Analysis, <https://rda.ucar.edu/datasets/ds083.2/index.html#!access>)。

1.2.2 排放输入

采用2015年MEIC作为2个模式的排放输入,借助Arcgis等工具,以国内生产总值(GDP)和人口为权重因子对其进行空间再分配,将 $0.25^{\circ}\times 0.25^{\circ}$ 的网格化清单处理为更精细的 9 km 网格,其中氮氧化物(NO_x)、 SO_2 、挥发性有机物(VOC)、 $\text{PM}_{2.5}$ 的排放空间分布见图2(a)(b)(c)(d)。针对CMAQv5.1中AERO6机制强制要求新增的13个 $\text{PM}_{2.5}$ 模式物种(PCL,PNH4,PNA,PMG,PK,PCA,PNCOM,PFE,PAL,PSI,PTI,PMN,PH2O),利用根据本地 $\text{PM}_{2.5}$ 源谱文献调研结果^[17-19]获得其质量分数,将MEIC中 $\text{PM}_{2.5}$ 总排放量减去MEIC中已有成分的有机碳(POC)、无机碳(PEC)排放量后再进行分配,得到最终的CMAQv5.1排放输入。

1.2.3 观测数据

用于评估模拟效果的大气污染物逐时观测数据来自长三角地区274个地面国控站点(数据抓取结果平台:<http://beijingair.sinaapp.com/>,数据来源于中国环境监测总站的全国城市空气质量实时发布平台,<http://106.37.208.233:20035/>)。

1.3 模式评估和比较方法

污染物的模拟值与地面观测值越接近,代表模拟效果越优。采用统计分析参数标准平均偏差(Normalized Mean Bias, NMB)、标准平均误差(Normalized Mean Error, NME)和皮尔森相关系数(Pearson coefficient, R)表征模拟效果, R 越高,表明模拟值与地面观测值的变化趋势更为接近,模拟效果越好;NMB和NME值越接近0,表明模拟与观测之间总的偏差越小,模拟效果越好。NMB和NME用以下公式计算。

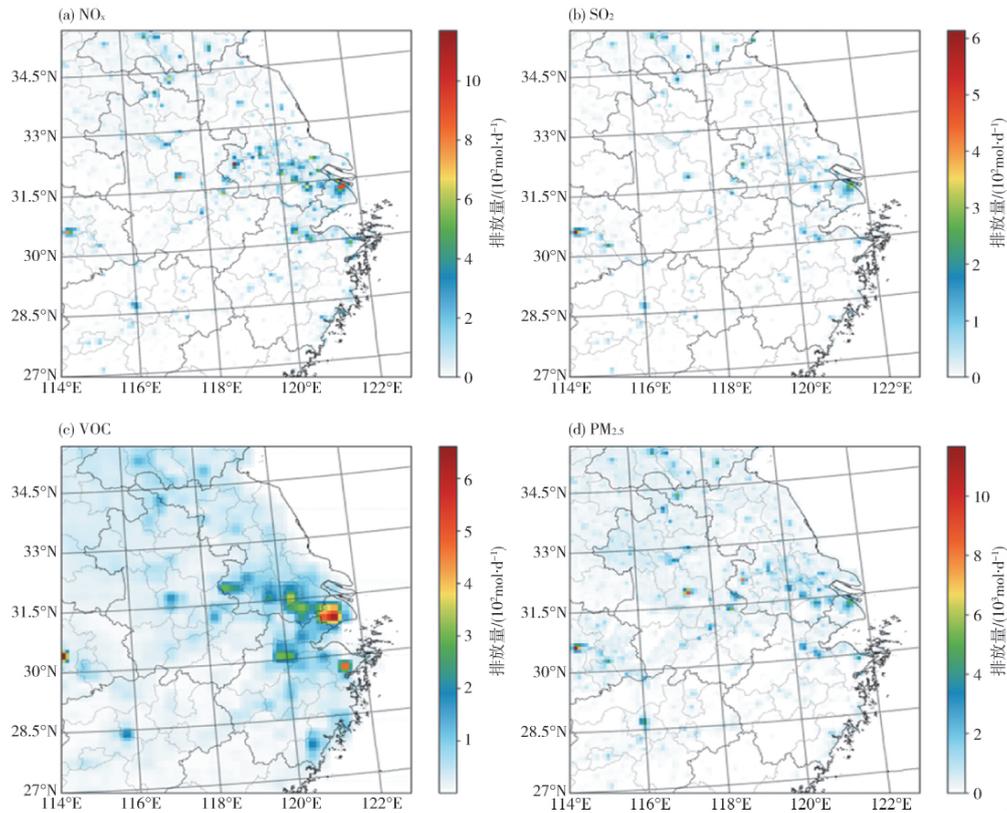


图 2 2015 年 NO_x 、 SO_2 、VOC、 $\text{PM}_{2.5}$ 排放空间分布 (数据来源于 MEIC)

$$\text{NMB} = \frac{\sum_{i=1}^n (P_i - O_i)}{\sum_{i=1}^n O_i} \quad (1)$$

$$\text{NME} = \frac{\sum_{i=1}^n |P_i - O_i|}{\sum_{i=1}^n O_i} \quad (2)$$

式中: P_i 和 O_i 分别代表模拟值和地面观测值。

2 结果与讨论

2.1 时间序列对比

图 3(a) (b) (c) (d) — 6(a) (b) (c) (d) 为 2015 年 1、4、7、10 月 (分别代表冬、春、夏、秋 4 季) 的 4 种常规污染物的模拟结果。从 4 个月的模拟时间序列看, CMAQv5.1 的 NO_2 模拟值低于 CMAQv4.7.1, O_3 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的模拟值高于 CMAQv4.7.1, 2 个版本的 SO_2 模拟值与其他 3 个污染物 (NO_2 、 O_3 、 $\text{PM}_{2.5}$) 相比差异最小。

与观测相比 2 个版本的 NO_2 模拟值均存在较大的高估, 4 个季节相比, 夏季 NO_2 模拟值与观测值之间的差异最大, 冬季差异最小。一方面 2 个

版本相比, NO_2 模拟值相对较低的 CMAQv5.1 模拟效果更优; 另一方面 2 个版本都存在较大高估的情况表明, 偏差更可能来源于对 NO_x 排放的高估。除了 2015 年的 1 月 (冬季) CMAQv4.7.1 的 O_3 模拟效果明显更优以外, 其他 3 个季节都是 CMAQv5.1 的 O_3 模拟值在地面观测的高值时段更接近地面观测值, 而 CMAQv4.7.1 的 O_3 模拟值在地面观测的低值时段更接近地面观测值。

CMAQv5.1 的 NO_2 、 SO_2 模拟值都略低于 CMAQv4.7.1, 表明 CMAQv5.1 版本中与 NO_2 、 SO_2 有关的化学反应的调整总体是朝降低 NO_2 、 SO_2 的模拟值的方向进行改进。CMAQv5.1 的 O_3 模拟值相比 CMAQv4.7.1 更高的原因较为复杂, 该版本的光解模块和云模型处理的变化导致 O_3 值增加了; 气象计算的变化导致模式中下午和傍晚混合的增强, 由于减少了 NO 滴定作用, 这种增强导致平均 $\rho(\text{O}_3)$ 混合比更高^[2]。大部分改进的机制都是 $\rho(\text{O}_3)$ 增高的原因, 虽然 O_3 的模拟值增加有利于 CMAQv5.1 在 O_3 高值时段的模拟效果, 但是这种增加导致 O_3 在低值时段时的模拟值与地面观测值相差更大。

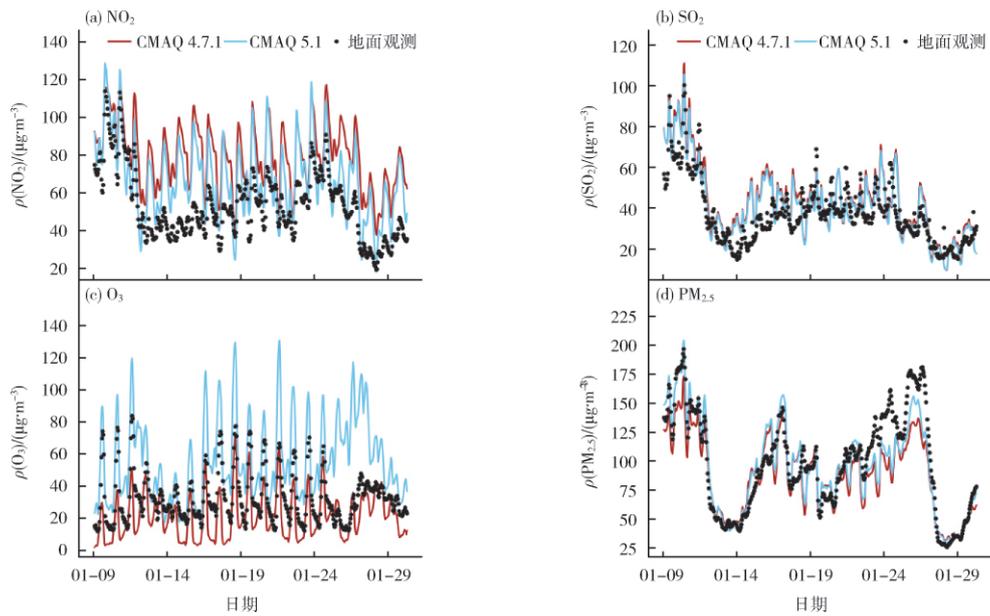


图 3 2015 年 1 月(冬季)长三角区域模拟与观测时间序列

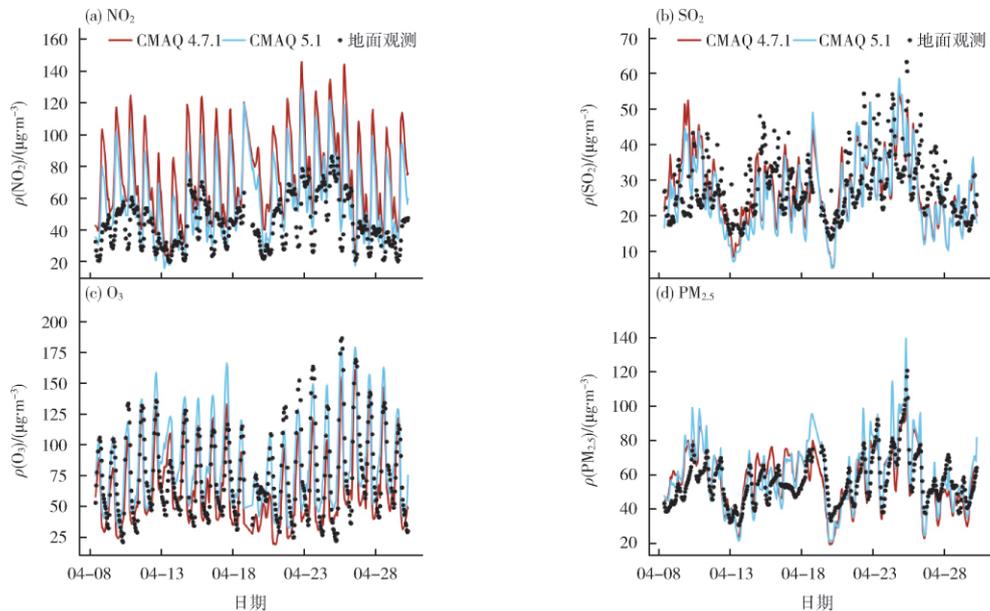


图 4 2015 年 4 月(春季)长三角区域模拟与观测时间序列

对于 $PM_{2.5}$, 在 CMAQ 版本更新至 CMAQ5.0 时, 气溶胶化学机制从 AERO5 更新至 AERO6, 引入了 13 个新的 $PM_{2.5}$ 细分物种的排放(详见 1.2.2 节)输入, 能够减小 $PM_{2.5}$ 模拟的偏差, 这个更新在 CMAQv5.1 中得以继续沿用。在 CMAQv5.1 的 AERO6 模块中, 还引入了几种来自长链烷烃和萘的二次有机气溶胶, 考虑到这些物种并不能像更小

和挥发性更强的化合物以同样的效率生成二次有机气溶胶, 所以这些物种在 AERO6 机制中被分离出来。

此外, 异戊二烯氧化的高 HO_x 生成路径被修改, 以明确说明异戊二烯环氧化物 (Isoprene Epoxydiol, IEPOX) 的产生, 而 IEPOX 可形成二次有机气溶胶并修改气相浓度^[2]。

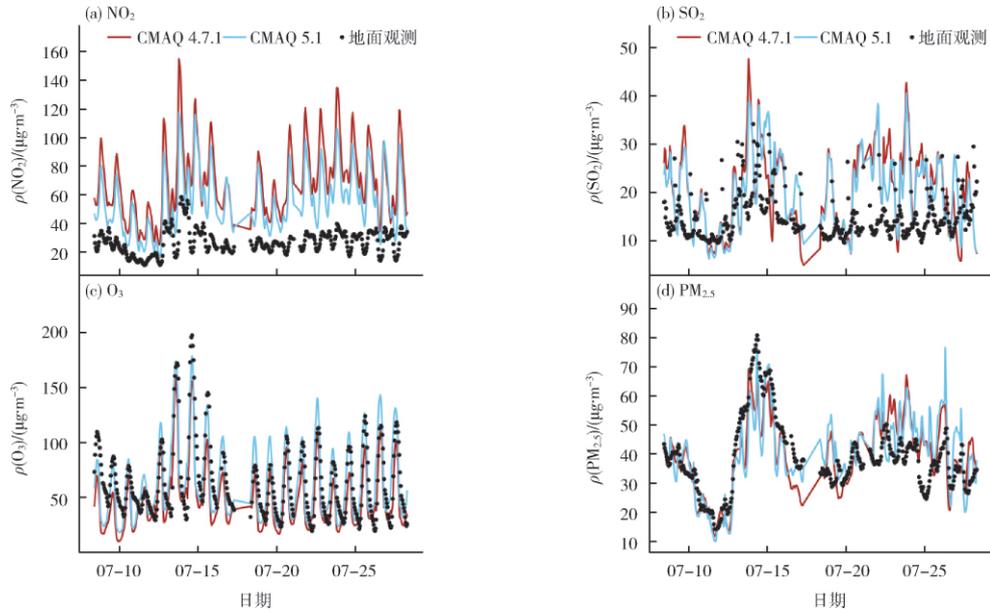


图 5 2015 年 7 月(夏季)长三角区域模拟与观测时间序列

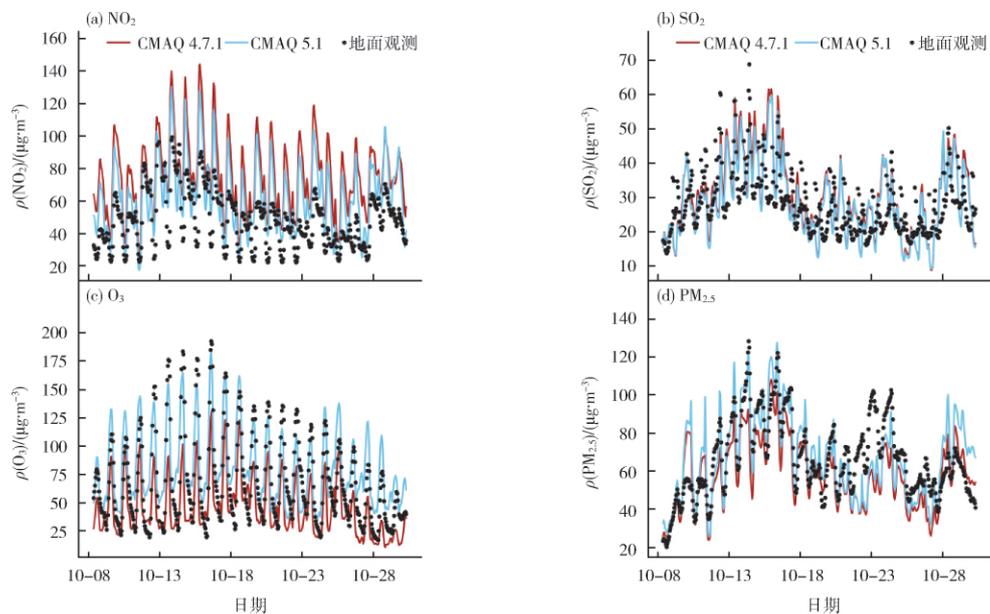


图 6 2015 年 10 月(秋季)长三角区域模拟与观测时间序列

2.2 空间分布对比

图 7(a)(b)(c)(d) 为 CMAQv5.1 的模拟值减去 CMAQv4.7.1 的各类污染物在 4 个季节的空间分布差异。对于不同的季节,除了 $PM_{2.5}$ 外,其他 3 个污染物(NO_2 、 O_3 、 SO_2) 的 2 个版本模拟的空间分布差异类似,区别主要在于差值大小。在长三角大部分区域, CMAQv4.7.1 的 NO_2 模拟值高于 CMAQv5.1,而 O_3 模拟值低于 CMAQv5.1,这也侧面反映对于 O_3 生成而言,长三角主要处于 VOC 控

制区。较高的 $\rho(NO_2)$ 可能降低 $\rho(O_3)$ 。2 个版本模拟的 SO_2 空间分布差异在所有污染物中最小, CMAQv4.7.1 的 SO_2 模拟值高于 CMAQv5.1 的区域相对较多。4 个季节相比,冬季 2 个版本的 NO_2 和 O_3 模拟差异最大,夏季最小,原因可能是光解模块的更新。2 个版本的 SO_2 模拟差异的季节变化不如 NO_2 和 O_3 明显。对于 $PM_{2.5}$,秋、冬 2 季长三角大部分地区 CMAQv5.1 模拟值相比 CMAQv4.7.1 更高;春季 CMAQv5.1 模拟值在长三角北部较高,

而在南部较低; 夏季在人口密集、重工业发达、 $PM_{2.5}$ 排放强度相对较高的苏南地区 [图 2 (d)],

CMAQv5.1 的 $PM_{2.5}$ 模拟值相比 CMAQv4.7.1 更高。

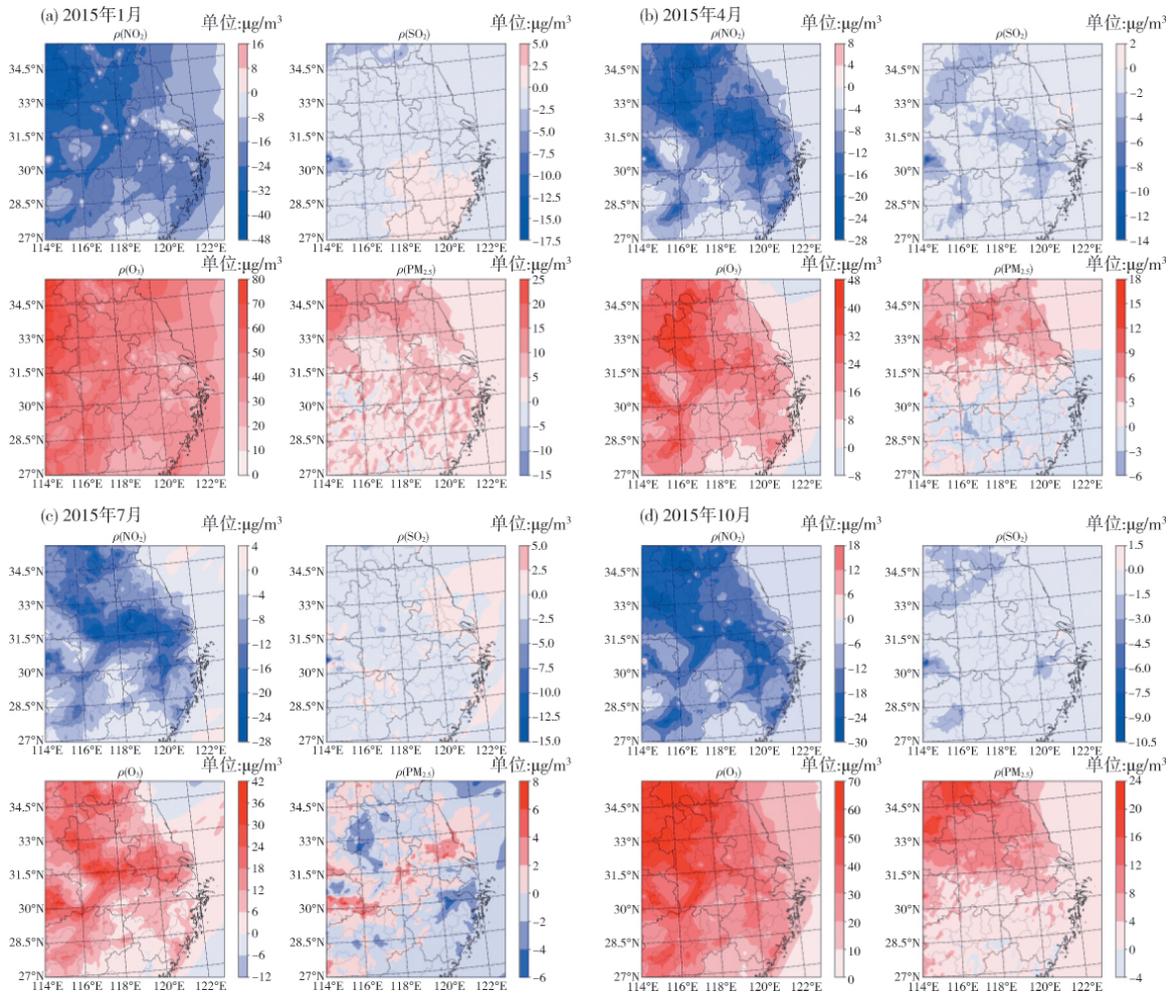


图 7 不同版本 CMAQ 模拟的空间分布差异 [$\rho(\text{CMAQv5.1}) - \rho(\text{CMAQv4.7.1})$]

对于 NO_2 , 春、秋、冬 3 季 CMAQv4.7.1 在长三角大部分地区模拟值较高; 其 CMAQv5.1 模拟值高于 CMAQv4.7.1 的区域较少, 集中于上海、苏州、无锡、南京、杭州等 NO_x 排放的高值区 [图 2 (a)]; 这种情况在夏季不明显。可能的原因是 CMAQv5.1 的大气化学机制扩展了 NO_y 的种类, 且明确修改了异戊二烯氧化的高 $\rho(\text{NO}_x)$ 路径^[2], 导致 CMAQv5.1 在 NO_x 高排放区域的模拟表现有所不同; 在夏季, 高 $\rho(\text{NO}_2)$ 环境相较其他 3 季不易形成, 因此这种极少数区域的 CMAQv5.1 的 NO_2 模拟值高于 CMAQv4.7.1 的情况不明显。长三角大部分区域 CMAQv5.1 模拟的 $\rho(\text{O}_3)$ 更高, CMAQv4.7.1 在春、秋、冬季高值区域较少且这些区域大部分集中于排放高值区。2 个版本 O_3 模拟浓度的空间分

布差异与 NO_2 相反, 表明长三角地区 O_3 生成更多受到 VOC 控制。

2.3 分析结果统计

2.3.1 2 个版本总体模拟效果对比

表 1 总结了 2 个版本模拟与观测值对比的统计指标结果。对于 NO_2 和 SO_2 2 个版本统计指标结果差异较小, 总体上, CMAQv5.1 的 NO_2 和 SO_2 的模拟效果更好。如 2.1 所述, CMAQv5.1 对于 O_3 的模拟有多方面的改进, 但是实际的 O_3 模拟值与地面观测值相比, 并未有明显改善, 从 R、NMB 和 NME 这 3 个统计指标来看, 大部分情况下 CMAQv4.7.1 的模拟效果更优。从 CMAQv5.0 开始, 气溶胶模块更新至 AERO6 机制。虽然黄晓波等^[3]在珠三角的研究表明 CMAQv5.0 的 $PM_{2.5}$ 模

拟效果并未优于 CMAQv4.7.1,但在长三角区域的研究结果表明,使用 AERO6 机制的 CMAQv5.1 相比使用 AERO5 机制的 CMAQv4.7.1 较大程度的

提升了 PM_{2.5} 的模拟效果,其模拟效果的改善程度比 NO₂ 和 SO₂ 的改善程度更大,特别是在春、秋、冬3季。

表1 各季节 CMAQv4.7.1 和 CMAQv5.1 的污染物模拟与观测值对比的统计指标

季节	污染物	R		NMB/%		NME/%	
		CMAQv4.7.1	CMAQv5.1	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1
冬	NO ₂	0.770	0.778	49.51	27.45	49.52	30.79
	SO ₂	0.780	0.781	15.86	11.09	27.04	25.13
	O ₃	0.718	0.702	-33.50	73.74	38.03	75.10
	PM _{2.5}	0.894	0.916	-9.39	-2.54	16.84	12.96
春	NO ₂	0.637	0.648	68.00	34.63	68.62	40.95
	SO ₂	0.266	0.314	-2.05	-8.74	32.81	33.89
	O ₃	0.768	0.737	-14.63	11.09	26.65	29.44
	PM _{2.5}	0.692	0.813	2.43	6.87	18.48	17.99
夏	NO ₂	0.617	0.679	158.15	108.33	158.15	108.54
	SO ₂	0.062	0.141	33.48	30.86	55.73	50.54
	O ₃	0.851	0.803	-24.06	-0.40	28.91	27.62
	PM _{2.5}	0.702	0.672	1.62	4.02	20.14	21.33
秋	NO ₂	0.742	0.743	54.47	29.15	54.74	34.16
	SO ₂	0.539	0.526	6.84	2.02	28.47	27.42
	O ₃	0.834	0.816	-30.94	18.49	35.45	32.03
	PM _{2.5}	0.738	0.745	-11.75	0.81	19.63	18.44

2.3.2 O₃ 超标日和非超标日模拟效果对比

将 O₃ 的日最大 8 小时平均值 (Maximum Daily 8-hour Average, MDA8) 超过《环境空气质量标准》(GB 3095—2012) 二级标准限值 (160 μg/m³) 的日期标记为 O₃ 超标日,其余为 O₃ 非超标日,研究选择以超标日天数和非超标日天数更接近的 7 月为例进行比较。表 2 为 O₃ 非超标日与超标日

CMAQv4.7.1 和 CMAQv5.1 的模拟效果对比。在非超标日 CMAQv4.7.1 的 R 值更高, CMAQv5.1 的 NMB 和 NME 值更接近 0; 在超标日 2 个版本的 R 值相差无几,同样是 CMAQv5.1 的 NMB 和 NME 值更接近 0。总体上 2 个版本均在超标日的模拟效果更优,在超标日 CMAQv5.1 的模拟效果较 CMAQv4.7.1 有一定改善。

表2 不同 O₃ 超标情况 CMAQv4.7.1 和 CMAQv5.1 的 O₃ 模拟与观测值对比的统计指标

超标情况	R		NMB/%		NME/%	
	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1
非超标日	0.23	0.20	-29	-5	56	51
超标日	0.24	0.24	-38	-26	46	37

2.3.3 PM_{2.5} 超标日和非超标日模拟效果对比

将 PM_{2.5} 的日均值超过《环境空气质量标准》(GB 3095—2012) 二级标准限值 (75 μg/m³) 的日期标记为 PM_{2.5} 超标日,其余为 PM_{2.5} 非超标日。研究选择以超标日天数和非超标日天数更接近的 1 月为例进行比较。CMAQv4.7.1 和 CMAQv5.1 PM_{2.5} 模拟的统计分析结果见表 3。由表 3 可见,

CMAQv5.1 的模拟效果相对 CMAQv4.7.1 更优,其中相比于非超标日的 CMAQv5.1 的模拟效果的改善程度,超标日的 CMAQv5.1 模拟效果的改善程度更大。

比较超标日的模拟效果和非超标日的模拟效果, CMAQv5.1 和 CMAQv4.7.1 都是非超标日的模拟效果更优。

表3 不同PM_{2.5}超标情况 CMAQv4.7.1和CMAQv5.1的PM_{2.5}模拟与观测值对比的统计指标

超标情况	R		NMB/%		NME/%	
	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1
非超标日	0.50	0.52	11	13	43	41
超标日	0.37	0.45	-16	-12	33	32

2.3.4 不同污染等级模拟效果对比

将空气质量指数(AQI)分为优良(0~100)、轻度(101~200)、重度(>200)3个污染等级。选择3个污染等级天数更接近的1月份为例,比较不同污染等级的版本模拟性能。表4为不同污染等级CMAQv4.7.1和CMAQv5.1模拟与观测值的对比统计指标。由表4可见,CMAQv5.1优良等级的

SO₂模拟效果更优,CMAQv4.7.1中度污染等级的NO₂模拟效果更佳,CMAQv4.7.1的O₃模拟效果在不同污染等级情况下都比CMAQv5.1优,PM_{2.5}在不同污染等级情况下都是CMAQv5.1模拟效果更优。NO₂在不同污染等级中的模拟效果都较为一致,但其他3个污染物(PM_{2.5}、O₃、SO₂)随着污染程度的加重,模拟效果变差。

表4 不同污染等级 CMAQv4.7.1和CMAQv5.1的模拟与观测值对比的统计指标

污染等级	污染物	R		NMB/%		NME/%	
		CMAQv4.7.1	CMAQv5.1	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1	CMAQv4.7.1	CMAQv5.1
优良	NO ₂	0.47	0.47	74	43	47	84
	SO ₂	0.24	0.28	5	-2	24	66
	O ₃	0.49	0.42	-23	49	49	49
	PM _{2.5}	0.49	0.51	10	12	49	43
轻中度	NO ₂	0.43	0.37	42	22	64	52
	SO ₂	0.09	0.09	16	5	27	68
	O ₃	0.26	0.24	-42	64	77	60
	PM _{2.5}	0.29	0.32	-8	-5	69	31
重度	NO ₂	0.43	0.34	23	6	64	34
	SO ₂	0.00	-0.01	12	-3	27	72
	O ₃	0.10	-0.06	-52	127	77	72
	PM _{2.5}	0.12	0.19	-29	-22	69	37

CMAQv5.1的O₃在超标日(高值时段)的模拟效果有一定的改善,在非超标日的模拟效果变差。CMAQv5.1的PM_{2.5}模拟效果整体较CMAQv4.7.1得到了改善,且超标日改进更明显。随着污染浓度的增加,2个版本的模拟效果都变差。

3 结论

(1)从模拟结果和地面观测结果的时间序列图来看:CMAQv5.1中NO₂模拟值较CMAQv4.7.1低且更接近地面观测值,2个版本SO₂模拟值相差较小,且都与地面观测值之间差异较小。在长三角区域,NO₂模拟值与观测值的偏差可能更多受排放高估而不是受模式机制的影响。CMAQv5.1中NO₂、SO₂模拟值都比CMAQv4.7.1低,表明CMAQv5.1机制中与NO₂、SO₂相关的化学反应的调整总体是朝降低NO₂、SO₂的模拟值方向进行改

进。CMAQv5.1的O₃模拟值高于CMAQv4.7.1且在O₃地面观测的高值时段更接近地面观测值,而CMAQv4.7.1的O₃模拟值在低值时段更接近地面观测值。CMAQv5.1的PM_{2.5}模拟值相比于CMAQv4.7.1更接近地面观测值,表明CMAQv5.1与PM_{2.5}模拟相关的机制改进改善了模拟效果,改进的内容包括新增了13种PM_{2.5}模式物种以及对几种来自长链烷烃、萘的二次有机气溶胶生成机制的改善等。

(2)CMAQv5.1和CMAQv4.7.1模拟结果的空间差异与时间序列差异类似。总体上,CMAQv4.7.1的NO₂、SO₂模拟值更高,CMAQv5.1的O₃模拟值更高。其中,与大部分区域空间差异特征不一致的是在少数NO_x高排放区域,CMAQv5.1的NO₂模拟值比CMAQv4.7.1高,可能的原因是CMAQv5.1的化学机制中明确修改了异戊二烯氧

化的高 $\rho(\text{NO}_x)$ 路径,导致CMAQv5.1在 NO_x 高排放区域的模拟表现有所不同。

(3) 从统计分析指标来看,CMAQv5.1的 NO_2 、 SO_2 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的模拟效果优于CMAQv4.7.1,其中,在 $\text{PM}_{2.5}$ 超标日 $\text{PM}_{2.5}$ 的模拟效果改善最明显。CMAQv5.1的 O_3 模拟值在 O_3 超标日模拟效果有所提升,但在非超标日模拟效果变差,总体上,CMAQ4.7.1的 O_3 模拟效果更优。针对低值时段和区域加强 O_3 生成相关机制的研究有助于进一步改善 O_3 的模拟效果。

[参考文献]

- [1] 王占山,李晓倩,王宗爽,等. 空气质量模型CMAQ的国内外研究现状[J]. 环境科学与技术, 2013, 36(S1): 386-391.
- [2] APPEL K W, NAPELENOK S L, FOLEY K M, et al. Description and evaluation of the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system version 5.1 [J]. Geosci Model Dev, 2017, 10(4): 1703-1732.
- [3] 黄晓波,殷晓鸿,黄志炯,等. 不同模式对珠三角地区细颗粒物污染模拟效果对比评估[J]. 环境科学学报, 2016, 36(10): 3505-3514.
- [4] AKIMOTO H, NAGASHIMA T, LI J, et al. Comparison of surface ozone simulation among selected regional models in MICS-Asia III-effects of chemistry and vertical transport for the causes of difference [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, 19(1): 603-615.
- [5] APPEL K W, CHEMEL C, ROSELLE S J, et al. Examination of the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model performance over the North American and European domains [J]. Atmospheric Environment, 2012, 53: 142-155.
- [6] BYUN D W, KIM S-T, KIM S-B. Evaluation of air quality models for the simulation of a high ozone episode in the Houston metropolitan area [J]. Atmospheric Environment, 2007, 41(4): 837-853.
- [7] FOLEY K M, HOGREFE C, POULIOT G, et al. Dynamic evaluation of CMAQ part I: Separating the effects of changing emissions and changing meteorology on ozone levels between 2002 and 2005 in the eastern US [J]. Atmospheric Environment, 2015, 103: 247-255.
- [8] FOLEY K M, ROSELLE S J, APPEL K W, et al. Incremental testing of the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system version 4.7 [J]. Geosci Model Dev, 2010, 3(1): 205-226.
- [9] ZHANG Y, PUN B, WU S Y, et al. Application and evaluation of two air quality models for particulate matter for a southeastern U. S. episode [J]. J Air Waste Manag Assoc, 2004, 54(12): 1478-1493.
- [10] 杨斌, 骆荣. 长三角地区大气污染物的研究进展 [J]. 环境生态学, 2019, 1(5): 74-78.
- [11] 李莉, 陈长虹, 黄成, 等. 长江三角洲地区大气 O_3 和 PM_{10} 的区域污染特征模拟 [J]. 环境科学学报, 2008, 29(1): 237-245.
- [12] HUANG C, CHEN C H, LI L, et al. Emission inventory of anthropogenic air pollutants and VOC species in the Yangtze River Delta region, China [J]. Atmospheric Chemistry Physics Discussions, 2011, 11(9): 4105-4120.
- [13] 袁良, 王成林, 刘华强, 等. 长江三角洲地区低层大气污染物 O_3 、 NO_x 、 SO_2 的数值模拟 [J]. 环境监控与预警, 2011, 3(1): 33-37.
- [14] 程兴宏. 空气质量模式“源同化”模型及排放源影响效应研究 [D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2008.
- [15] 吴小芳, 罗坤, 汪明军, 等. 多尺度空气质量模型在杭州市的应用和验证 [J]. 工程热物理学报, 2014, 35(5): 919-922.
- [16] ZHOU Y, ZHAO Y, MAO P, et al. Development of a high-resolution emission inventory and its evaluation and application through air quality modeling for Jiangsu Province, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(1): 211-233.
- [17] PEI B, WANG X, ZHANG Y, et al. Emissions and source profiles of $\text{PM}_{2.5}$ for coal-fired boilers in the Shanghai megacity, China [J]. Atmospheric Pollution Research, 2016, 7(4): 577-584.
- [18] 滕加泉, 王唯, 蒋少杰, 等. 常州市大气 $\text{PM}_{2.5}$ 主要排放源的成分谱研究 [J]. 环境科技, 2015, 28(6): 56-59, 64.
- [19] 郑玫, 张延君, 闫才青, 等. 上海 $\text{PM}_{2.5}$ 工业源谱的建立 [J]. 中国环境科学, 2013, 33(8): 1354-1359.