Сравнение моделей Б(а)П Eurodelta-Carb

Сравнение моделей Б(а)П в рамках проекта Eurodelta-Carb было инициировано Целевой группой EMEП по измерениям и разработке моделей (ЦГИРМ) в 2021 году в рамках более широкого научного исследования по моделированию вторичного органического аэрозоля и черного углерода. Основными целями исследования Eurodelta-Carb по Б(а)П были анализ эффективности моделей и неопределенностей их результатов. Кроме того, исследование должно было внести вклад в уточнение характеристик выбросов Б(а)П при сжигании ископаемого топлива и биомассы, а также в дальнейшее совершенствование имеющихся подходов к моделированию Б(а)П. Для моделирования концентраций Б(а)П в Европе были использованы четыре региональные модели атмосферного переноса. Результаты моделирования сравнивались с наблюдаемыми концентрациями Б(а)П, полученными из сети мониторинга ЕМЕП. Оценка смоделированных концентраций проводилась в тесном сотрудничестве с национальными экспертами по моделированию Б(а)П.

Настройка модели и исходные данные

Моделирование Б(а)П в Eurodelta-Carb сосредоточено на периоде времени с начала декабря 2017 года до конца 2018 года. Моделирование Б(а)П проводилось с использованием четырех моделей атмосферного переноса: CHIMERE, GLEMOS, MINNI и SILAM. Эти модели разрабатываются группами моделирования в INERIS (Франция), CIEMAT (Испания), МСЦ-В (ЕМЕП), ENEA (Италия) и FMI (Финляндия) для изучения уровня загрязнения воздуха в региональном и национальном масштабах. Все модели используют заданную область моделирования и сеточные данные о годовых выбросах Б(а)П за 2018 год, полученные ЦКАП. Другие исходные данные и параметры, такие как метеорологические данные, внутригодовые вариации выбросов Б(а)П, выбросы других загрязняющих веществ, граничные условия, параметризация модели, являются специфическими для каждой модели.

Модели, участвующие в проекте, имеют различные подходы к моделированию Б(а)П. В частности, CHIMERE, GLEMOS и MINNI рассматривают Б(а)П как реакционноспособное полулетучее вещество, которое распространяется в атмосфере как в газовой, так и в аэрозольной форме и подвергается разложению в атмосфере за счет химических реакций с ОН в газообразной форме. Кроме того, GLEMOS и MINNI учитывают разложение Б(а)П в аэрозольной форме за счет химических реакций с озоном. Все три модели учитывают выведение Б(а)П из атмосферы в газообразной и аэрозольной формах. В случае SILAM моделирование проводилось в предположении, что Б(а)П является инертным веществом, выбрасываемым в атмосферу в газообразной форме и подверженным только процессу разложения в зависимости от изменения температуры.

Программа экспериментального моделирования включает в себя прогон модели в течение заданного периода времени с заданными данными о выбросах Б(а)П с использованием независимо определенных настроек модели. Предварительные результаты были опубликованы в предыдущем отчете о состоянии ЕМЕП [*Ilyin et al.*, 2022] и представлены на конференции HARMO21 [*Gusev et al.*, 2022].

В 2023 году было продолжено исследование сравнения моделей Б(а)П. В частности, были обновлены результаты расчетов моделей CHIMERE и SILAM. Кроме того, был обсужден и начат анализ факторов, влияющих на различия между результатами моделей по Б(а)П (например, временные профили

выбросов, параметризация разложения Б(а)П в аэрозольной форме, сухое и влажное выведение, распределение Б(а)П между газовой и аэрозольной формами). В данном разделе описаны обновленные результаты моделирования и их анализ.

Результаты моделирования и анализ

Пространственные распределения среднегодовых суммарных концентраций Б(а)П в воздухе, смоделированные моделями CHIMERE, GLEMOS MINNI и SILAM для 2018 года, представлены на рис. 3.1. Наибольшие концентрации были оценены всеми моделями для стран Центральной Европы, а также для Северной Италии и некоторых районов Восточной Европы. Наименьшие концентрации были получены для стран Северной Европы и отдаленных районов. В целом, относительно более высокие концентрации были смоделированы моделью CHIMERE, затем GLEMOS, MINNI и SILAM. Различия между смоделированными концентрациями Б(а)П могут быть обусловлены влиянием различных параметризаций, использованных в моделях (например, для процессов распределения Б(а)П между газовой и аэрозольной формами, разложения и выведения из атмосферы), а также различными метеорологическими данными. Дополнительный вклад также могли внести различные временные профили выбросов и концентрации ОН и озона, используемые в моделях для оценки химических преобразований Б(а)П.



Рис. 3.1. Карты среднегодовых смоделированных суммарных (газообразная + аэрозольная форма) концентраций Б(а)П в атмосфере в 2018 г., смоделированных CHIMERE (а), GLEMOS (б), MINNI (в) и SILAM (г). Для сравнения наблюдаемые концентрации суммарной и аэрозольной форм Б(а)П, измеренных станциями мониторинга ЕМЕП, показаны цветными кружками и квадратами, соответственно, в том же масштабе, что и смоделированные значения.

Оценка результатов моделирования в сравнении с данными измерений за 2018 год проводилась по данным 29 станций мониторинга ЕМЕП. Из них 9 станций, расположенных в Центральной и Северной Европе, измеряли суммарные концентрации Б(а)П, а концентрации Б(а)П в аэрозольной форме измерялись на 20 станциях, охватывающих более широкую географическую зону (рис. 3.1).

Для сравнения результатов модели и измерений из выходных файлов модели для мест расположения станций извлекались среднесуточные смоделированные концентрации суммарной или аэрозольной форм, в зависимости от типа измерений. Затем смоделированные значения усреднялись до временного разрешения и периодов наблюдений (например, ежедневно или еженедельно). Сводный статистический анализ смоделированных и наблюдаемых среднегодовых концентраций Б(а)П представлен в табл. 3.1. Все модели хорошо воспроизводят пространственную картину наблюдаемых концентраций суммарной и аэрозольной форм Б(а)П с коэффициентами корреляции (R) 0,72-0,96. Модели CHIMERE и GLEMOS несколько завышали наблюдаемые значения суммарных концентраций Б(а)П с нормализованным средним отклонением около 4%, в то время как MINNI недооценивала измеренные значения с отклонением -53%. Для концентраций аэрозольной формы Б(а)П модель CHIMERE переоценила их с отклонением около 0,3%, а GLEMOS и MINNI недооценили наблюдаемые концентрации с отклонениями -19% и -52%, соответственно. Расчетные суммарные концентрации Б(а)П находились в пределах различий до 2 раз от измеренных значений для 89%, 78%, 11% и 0% станций мониторинга CHIMERE, GLEMOS, MINNI и SILAM соответственно, в то время как для Б(а)П в аэрозольной форме они находились в пределах различий до 2 раз для 80%, 70%, 40% и 20% станций мониторинга. Доля модельных значений, отличающихся от результатов измерений в пределах 3 раз, больше. В частности, для 100%, 100%, 22% и 11% станций, измерявших суммарные концентрации Б(а)П, и для 90%, 85%, 70% и 35% станций, измерявших концентрации Б(а)П в аэрозольной форме, соответственно.

Таблица 3.1. Сводка статистических показателей, рассчитанных на основе среднегодовых
концентраций в воздухе общей и твердой фазы Б(а)П за 2018 год, наблюдаемых на станциях
мониторинга ЕМЕП и оцененных CHIMERE, GLEMOS и MINNI в базовом варианте прогона
модели.

	(нг m ⁻³)			(нг т ⁻³)			
	,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,						
Суммарные концентрации Б(а)П (9 станций), среднее наблю даемое значение 0,116 нг м ⁻³							
CHIMERE	0.120	3.8	0.93	0.057	89	100	
GLEMOS	0.121	4.3	0.91	0.087	78	100	
MINNI	0.054	-53.3	0.86	0.090	11	22	
SILAM	0.026	-77.5	0.86	0.124	0	11	
Концентрации аэрозольной формы Б(а)П (20 станций), среднее наблюдение 0,156 нг м ⁻³							
CHIMERE	0.157	0.3	0.88	0.116	80	90	
GLEMOS	0.126	-19.3	0.96	0.095	70	85	
MINNI	0.075	-52.1	0.93	0.168	40	70	
SILAM	0.047	-69.9	0.72	0.226	20	35	

^а NMB - нормализованное среднее отклонение; R - пространственная корреляция между смоделированными и

наблюдаемыми концентрациями; RMSE - среднеквадратичная ошибка; F2 и F3 - доли станций, для которых

смоделированное значение находится в пределах отклонения в 2 и 3 раза, соответственно, от наблюдаемого значения.

Оценка среднегодовых смоделированных концентраций Б(а)П по сравнению с результатами измерений суммарных и в аэрозольной форме концентраций Б(а)П на отдельных станциях мониторинга ЕМЕП представлена на графиках рассеяния на рис. 3.2. Для двух испанских станций ES8 и ES14 для всех моделей было получено завышение наблюдаемых концентраций твердых частиц Б(а)П. Для других станций были получены расхождения различного характера. В частности, для СНІМЕRE было получено завышение в 2 раза для станций GB48, GB1055 и NL91, на которых

измерялись концентрации Б(а)П в аэрозольной форме. В случае GLEMOS наибольшее занижение (более чем в 3 раза) было обнаружено для суммарных концентраций Б(а)П, наблюдаемых на DE9 и FI36, и для Б(а)П в аэрозольной форме на FR23 и FR25. В случае MINNI наибольшие отклонения (недооценка более чем в 5 раз) были обнаружены для станций DE1, DE9 и FI36, где измерялись суммарные концентрации Б(а)П, и для LV10 и FR23, где измерялись концентрации Б(а)П в аэрозольной форме. В случае SILAM для большинства станций измеренные концентрации Б(а)П были недооценены моделью.

Графики рассеяния показывают, что результаты моделирования CHIMERE имеют наибольшее значение наклона регрессии (0,81), за ней следуют GLEMOS (0,77), MINNI (0,44) и SILAM (0,28). Наибольший коэффициент детерминации (0,88) получен GLEMOS по сравнению с MINNI, CHIMERE и SILAM (0,83, 0,80 и 0,67, соответственно).



Рис. 3.2. Диаграммы рассеяния в логарифмическом масштабе сравнения концентраций Б(а)П в воздухе (в суммарной и аэрозольной формах), смоделированных CHIMERE (а), GLEMOS (б), MINNI (в) и SILAM (г), с измерениями станций мониторинга ЕМЕП в 2018 году. Область между пунктирными линиями обозначает модельные оценки в пределах двухкратного отклонения от измеренных значений, а сплошная линия - линейная регрессия всех точек данных. Суммарные концентрации Б(а)П показаны красными кругами, а концентрации Б(а)П в аэрозольной форме синими квадратами.

На рис. 3.3 приведены примеры временных рядов смоделированных и наблюдаемых концентраций Б(а)П для двух станций мониторинга ЕМЕП, а именно CZ0003R и PL0009R, на которых измерялись концентрации Б(а)П в суммарной и аэрозольной формах, соответственно. Для этих станций сравнение смоделированных и наблюдаемых концентраций для CHIMERE, GLEMOS и MINNI показывает, в целом, хороший уровень согласованности. Модельные оценки воспроизводят высокие уровни наблюдаемых концентраций в холодное время года и низкие концентрации в теплое время

года, а также пиковые концентрации. Однако в некоторых эпизодах, особенно в зимние месяцы, модели недооценивают измеренные концентрации. В случае SILAM смоделированные концентрации заметно недооценивают измеренные концентрации Б(а)П в холодное время года по сравнению с тремя другими моделями. Различия между смоделированными и измеренными внутригодовыми вариациями концентраций Б(а)П могут объясняться как недооценкой выбросов, так и неопределенностями во внутригодовом распределении выбросов Б(а)П, которое применялось при моделировании.



Рис. 3.3. Внутригодовые вариации суммарных концентраций Б(а)П в воздухе, наблюдаемых на станции ЕМЕП CZ0003R (а), и концентраций Б(а)П в аэрозольной форме, наблюдаемых на станции PL0009R (б), в сравнении с расчетными данными моделей CHIMERE, GLEMOS, MINNI и SILAM для 2018 г.

На рис. 3.4 приведены модельные оценки отношения концентрации Б(а)П в аэрозольной форме к суммарной концентрации для CHIMERE, GLEMOS и MINNI. Наибольшее отношение для 29 станций EMEП получено для MINNI (около 0,95), затем следуют CHIMERE (около 0,88) и GLEMOS (около 0,75) (рис. 3.4а). В случае расчета отношения для всех ячеек расчетной сетки моделей (рис. 3.5б) наибольшее значение также получено моделью MINNI (около 0,9). В то же время CHIMERE и GLEMOS показали более сопоставимые результаты и более низкие значения отношения - около 0,55. Различия в смоделированных значениях отношения концентраций Б(а)П в аэрозольной форме и суммарных концентраций (в газовой и аэрозольной формах) могут быть объяснены различными параметризациями процессов распределения Б(а)П между газовой и аэрозольной формами и химических преобразований Б(а)П, применяемыми в моделях.

Участвовавшие в исследовании модели показали высокую пространственную корреляцию расчетных и наблюдаемых концентраций Б(а)П. Кроме того, большинство моделей получили высокую корреляцию с наблюдаемыми внутригодовыми колебаниями концентраций Б(а)П. Вместе с тем, моделирование показало завышение наблюдаемых концентраций Б(а)П в Испании и занижение в Северной Европе (Финляндия, Латвия, Эстония), что, вероятно, объясняется неопределенностью данных о выбросах Б(а)П для этих регионов.



Рис. 3.4. Среднее отношение среднегодовых концентраций твердых частиц к суммарным концентрациям Б(а)П и его изменчивость, оцененные CHIMERE, GLEMOS и MINNI для 2018 г. для мест расположения 29 станций ЕМЕП (а) и для всей области моделирования (б). На графиках точками обозначены медианные отношения, цветными рамками - 25%-ный и 75%ный перцентили, а усами - 5%-ный и 95%-ный перцентили.

Отмечены существенные различия между результатами моделирования четырех участвовавших в проекте моделей. Таким образом, требуется более детальный анализ для выяснения причин различий и существенного завышения или занижения наблюдаемых концентраций Б(а)П для некоторых станций. Дальнейшая работа в рамках исследования может быть направлена на анализ чувствительности, оценку метеорологических факторов и анализ других результатов моделирования, таких как концентрация Б(а)П в осадках и потоках выпадений, а также концентрации видов, влияющих на химические превращения Б(а)П в атмосфере.