

基于机器学习解释上海地区臭氧污染的长期变化 及其政策启示

李莉¹, 张坤¹, 薛金¹, 翟翩翩¹, 金丹², 段玉森², 伏晴艳², 罗东民³

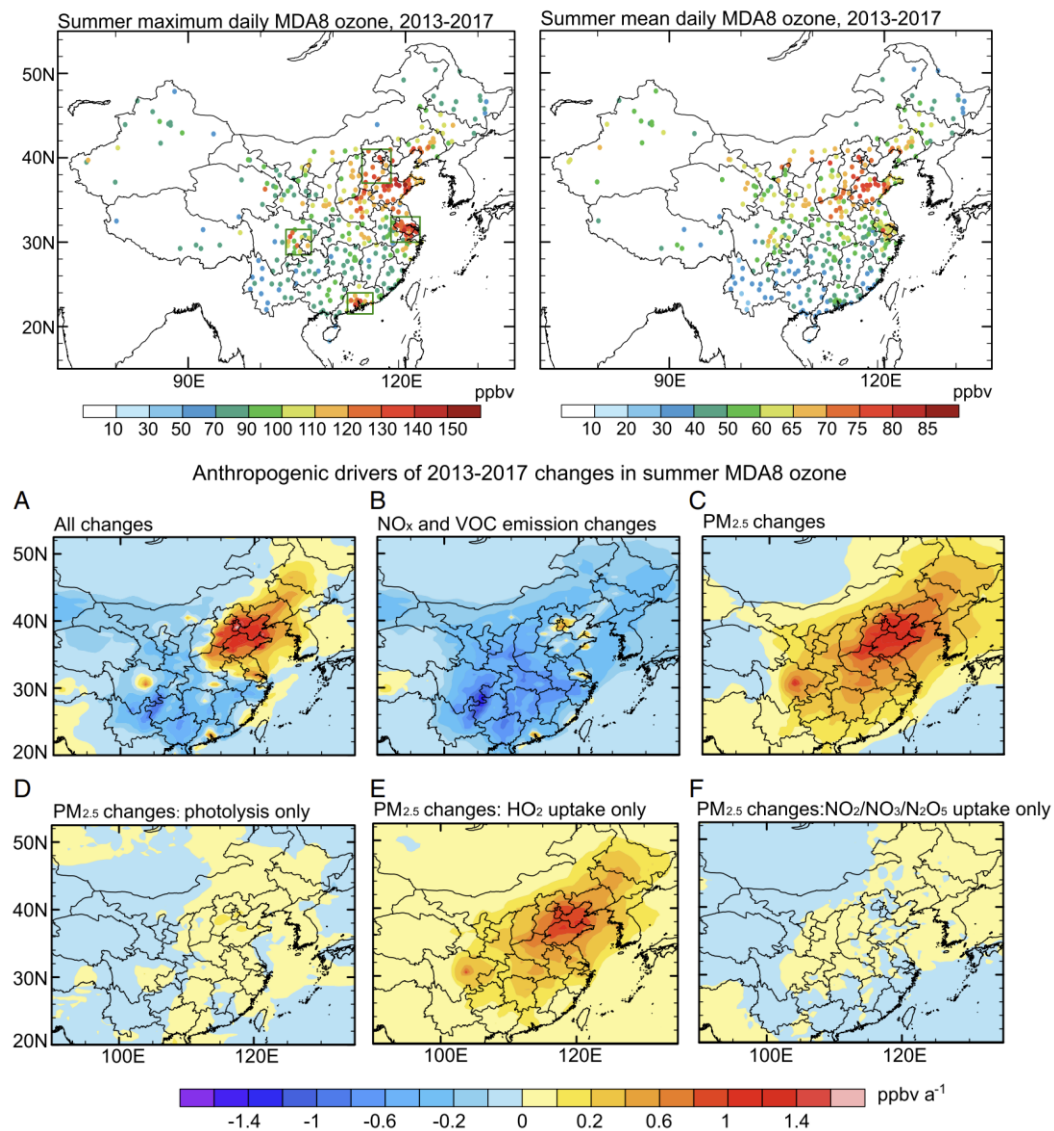
¹ 上海大学环境与化学工程学院

² 上海市环境监测中心

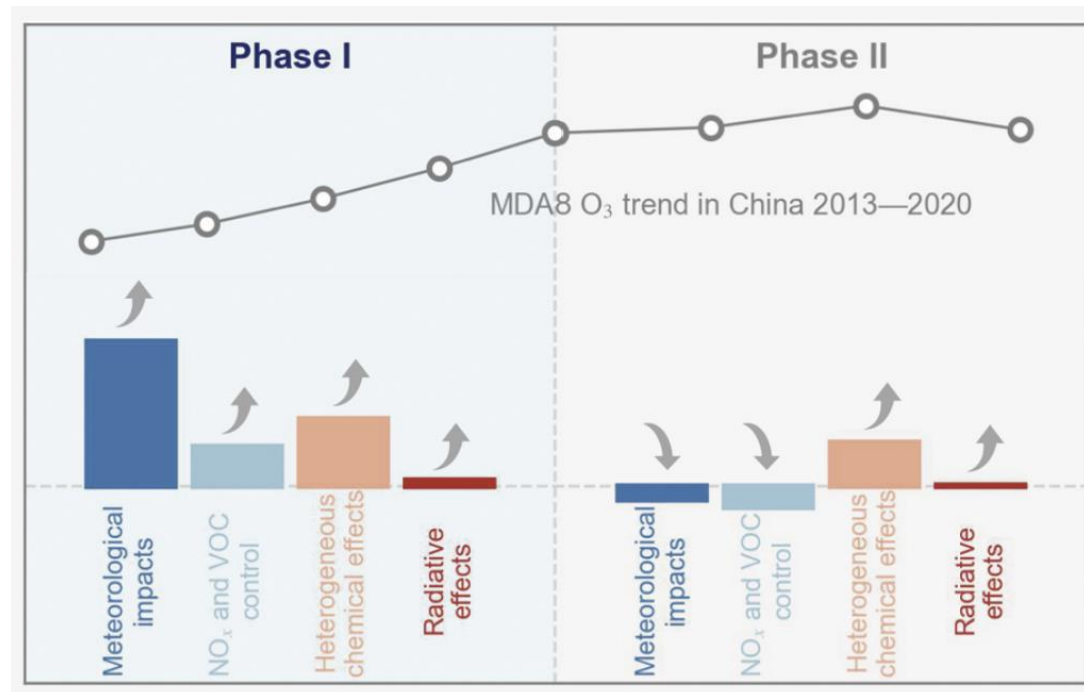
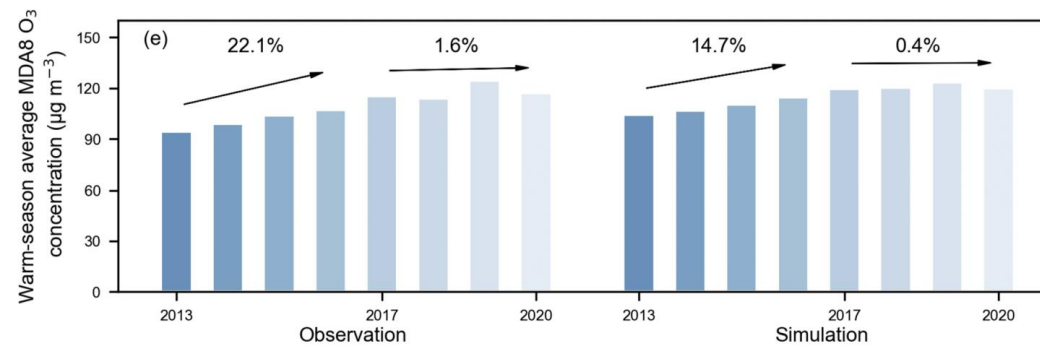
³ 美国加州空气资源局

2023年9月1日

全国O₃污染态势



Li et al., PNAS. 2019

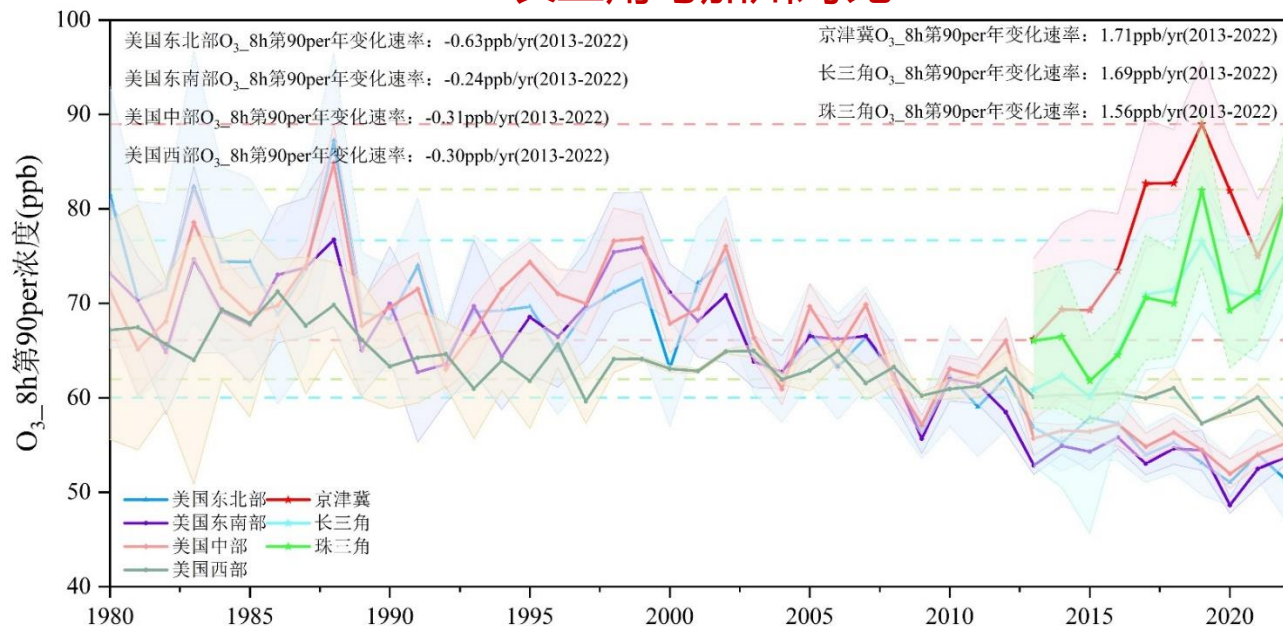


Liu et al., ES&T. 2023

长三角O₃污染与加州南滨地区对比



长三角与加州对比



上海O₃变化



- 加州南滨O₃_8h_90%呈下降趋势: 快速下降阶段 (1980—2000年, -2.26 ppb/year)、震荡阶段 (2000—2021年, -0.29 ppb/year)
- 长三角呈波动性增长, 2013—2021年平均变化速率为1.37 ppb/year, 且在2014—2021年之间浓度均高于加州南滨

O₃污染的源和汇



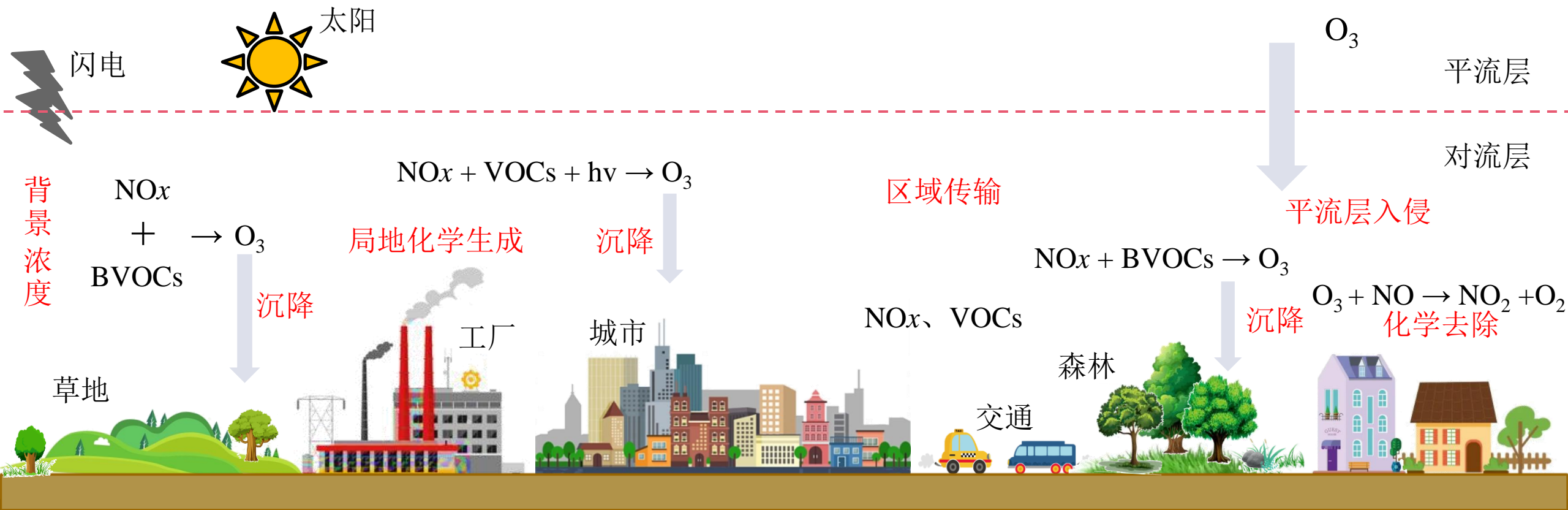
$$O_3 \text{ 浓度} = 1. \text{背景浓度} + 2. \text{光化学生成 (气象+排放)} - 3. \text{沉降} - 4. \text{化学去除}$$

全球背景、平流层、远距离传输、天然源

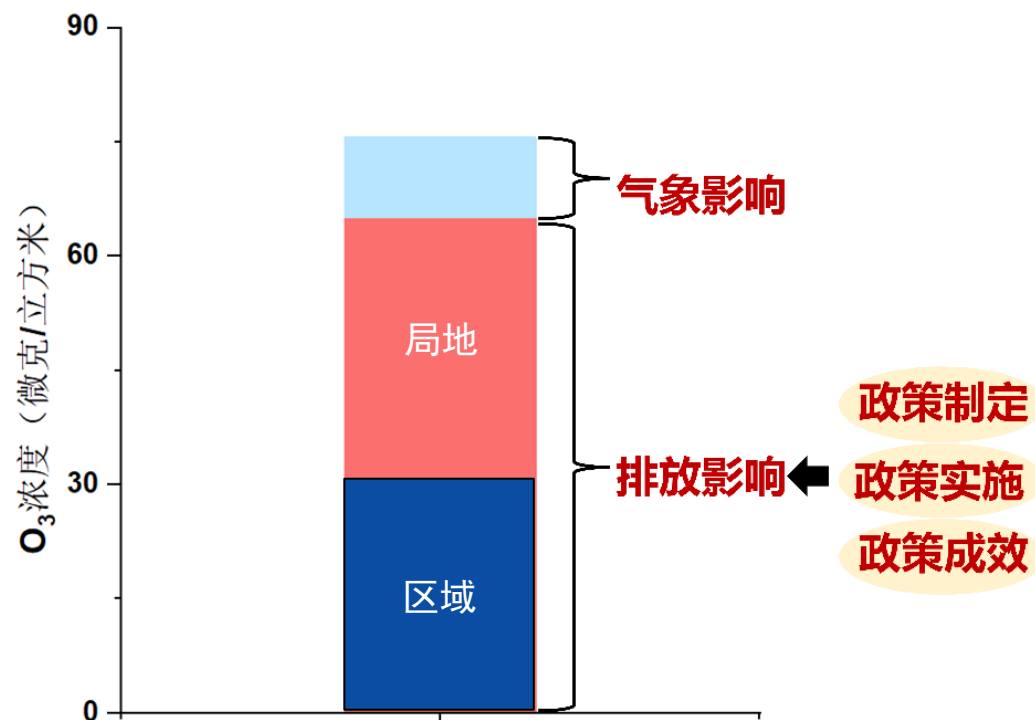
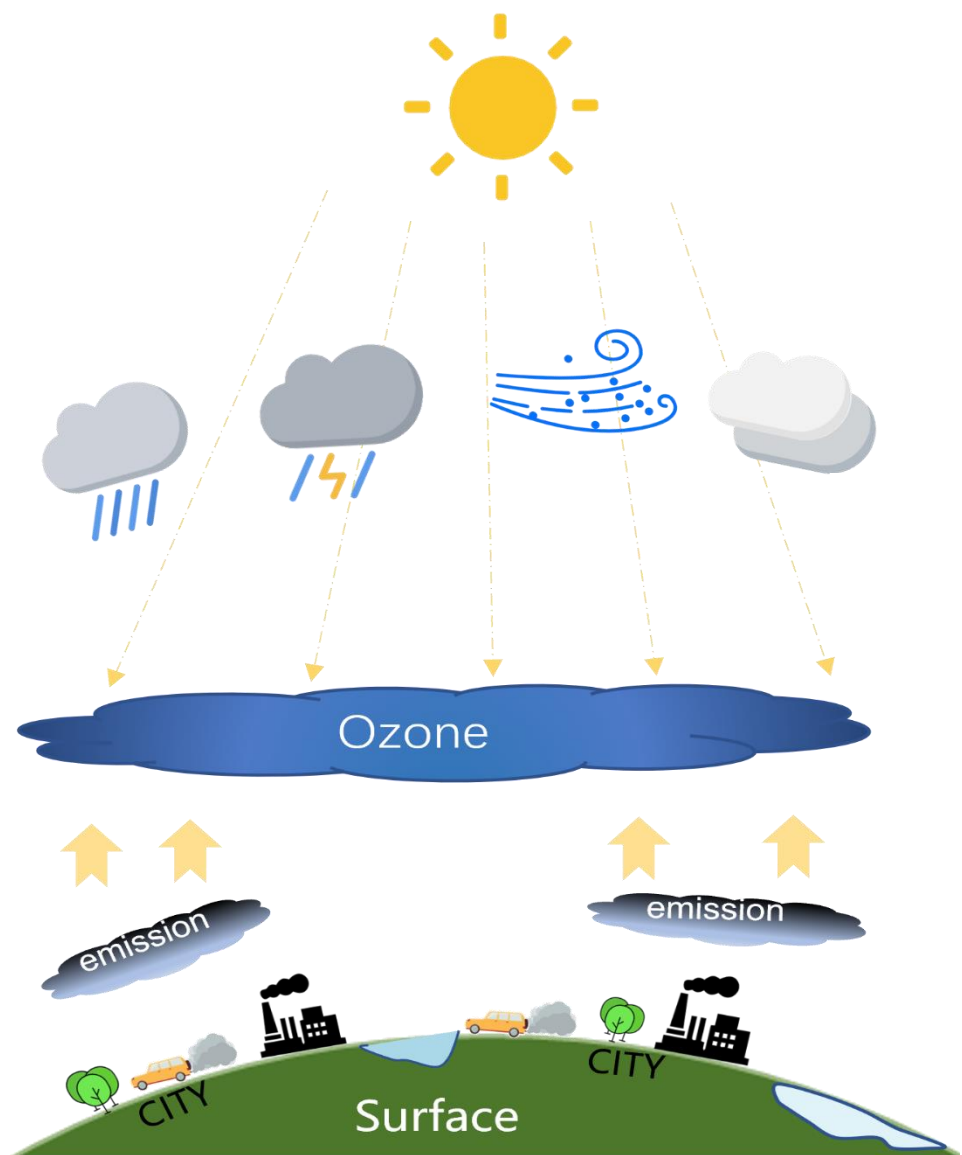
VOCs、NO_x、CO

干沉降、湿沉降

滴定、化学去除



O₃浓度的可解释性



- 臭氧生成受到前体物排放与气象条件共同影响
- 如何从观测值中剥离气象的影响，对于政策成效评估与新政策制定至关重要

Input

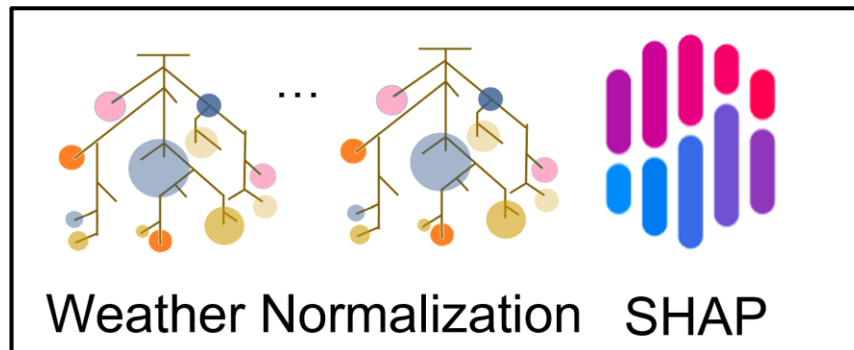
T,SSR,BLH,
RH,WD,WS,
TP,SP,TCC,
Air trajectory



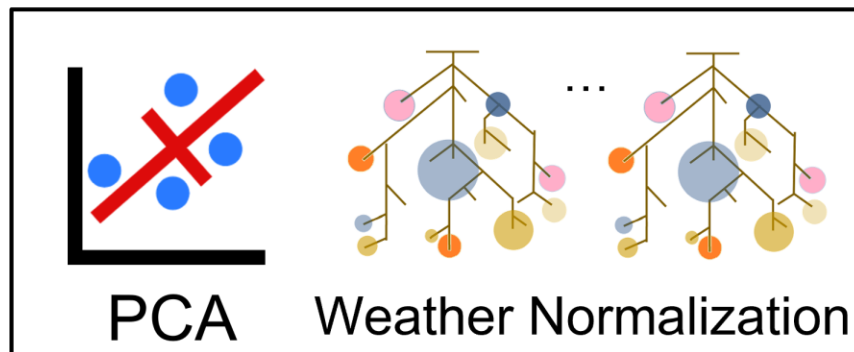
Surface
ambient
ozone

Integrated Method

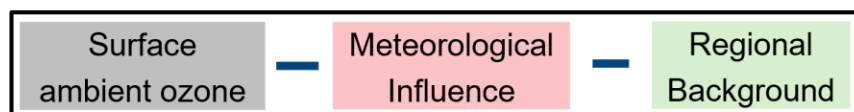
STEP 1 - Meteorological Influence



STEP 2 - Regional Background

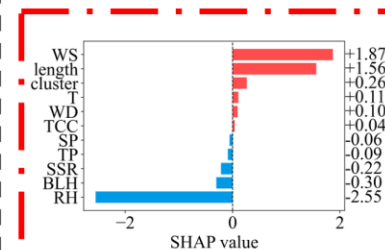


STEP 3 - Local emission



Output

MET



Meteorological
Influence

Regional
Background

Local
Emission

CHEM

机器学习集成方法：数据输入



空气质量数据

- **站点:** 上海选取淀山湖 (区)、普陀 (城区) 及浦东汇南站 (上风向/区域背景站)；洛杉矶选取阿苏萨 (下风向/郊区)、北大街 (城区)、威彻斯特站 (上风向站)
- **日期:** 上海2013年-2021年(4-9月)小时数据；洛杉矶2011-2021年 (4-9月)，小时数据
- **因子:** O_3
- **来源:** 上海市环境监测中心，美国EPA

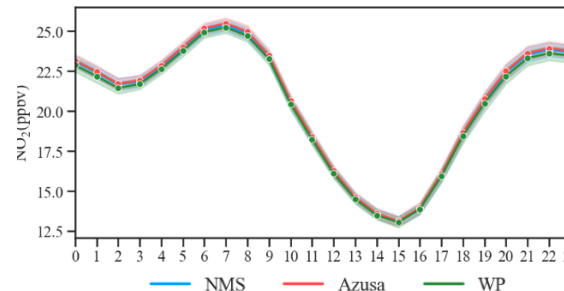
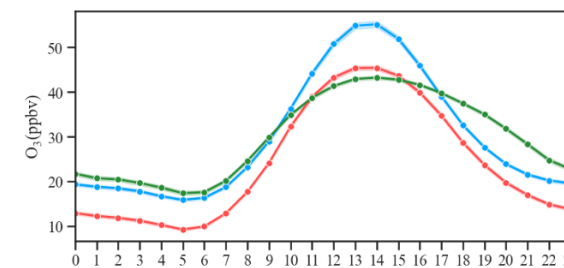
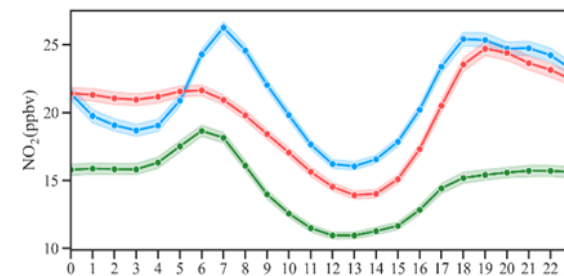
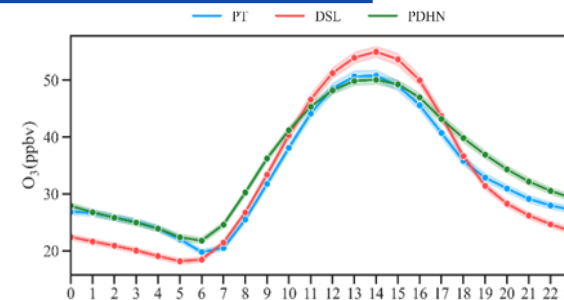
气象数据

- **数据集名称:** ERA5/ERA5-LAND 再分析数据
- **空间分辨率:** ERA5 ($0.25^\circ \times 0.25^\circ$)，ERA5-LAND ($0.1^\circ \times 0.1^\circ$)
- **日期:** 1997年-2021年
- **因子:** d2m,t2m,u10,v10,sp,ssr,tp,tcc,blh
- **来源:** 欧洲中期天气预报中心 (ECMWF)

上海地区



洛杉矶地区

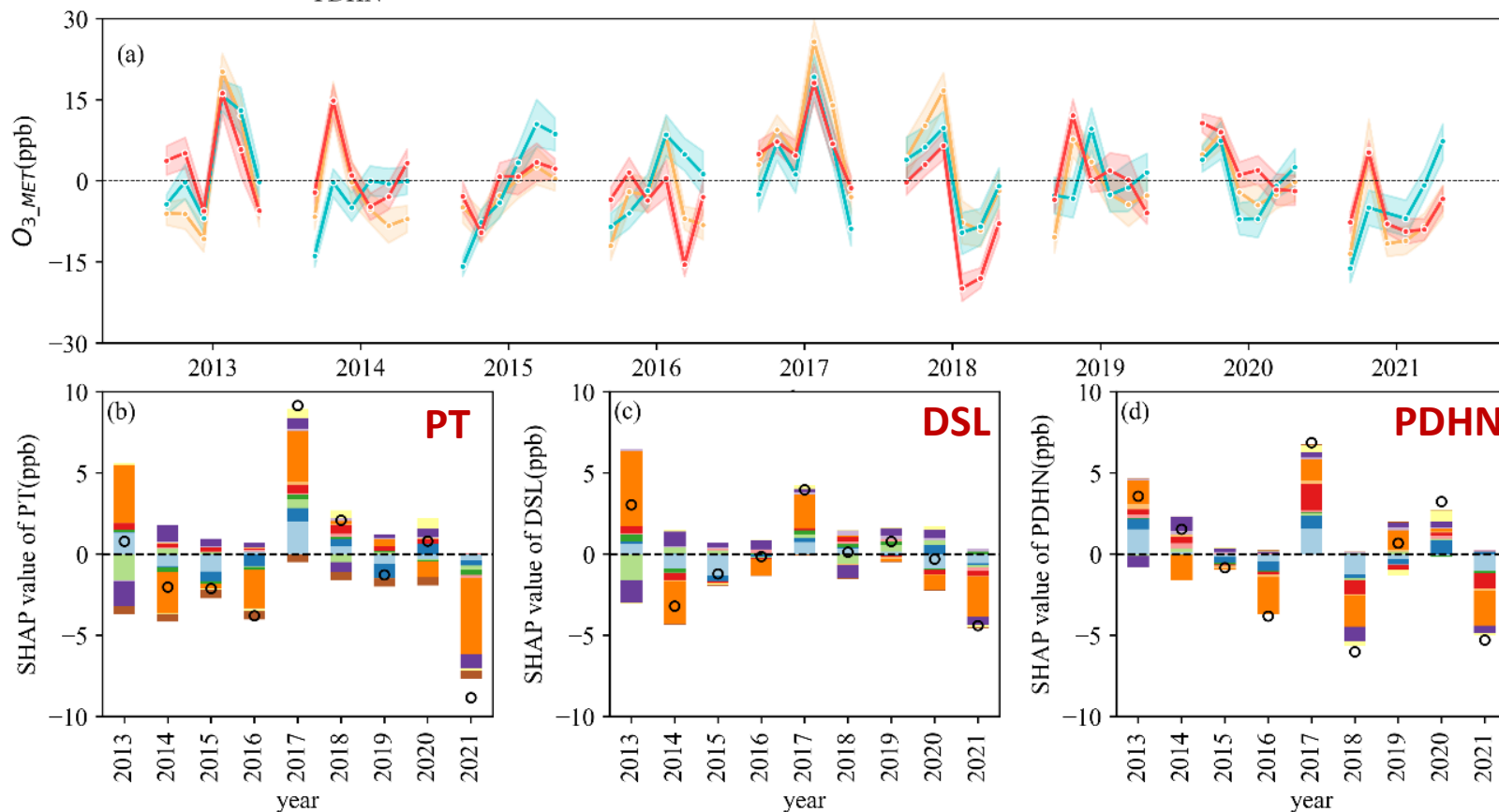


气象对上海地区臭氧演变的影响



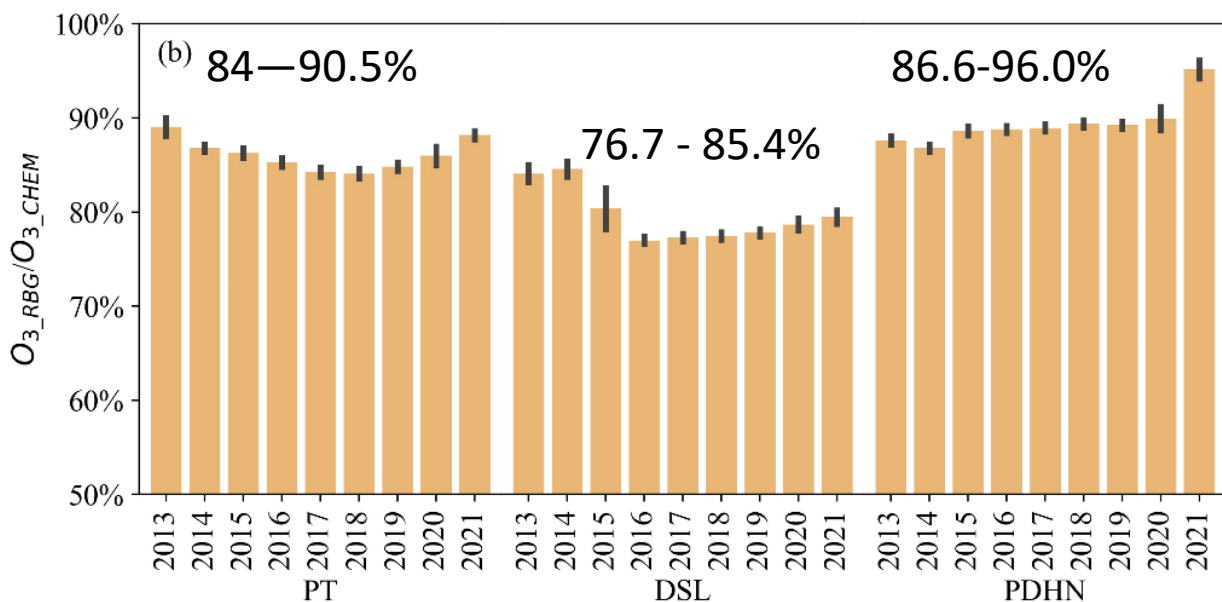
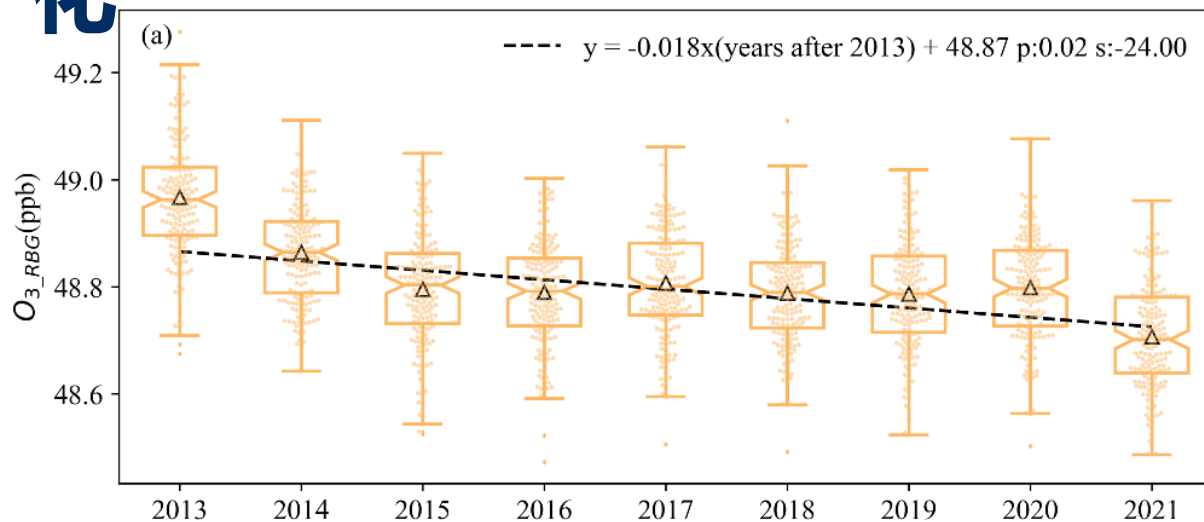
观测 去气象值 气象扰动

$$O_{3_OBS} = O_{3_RMW} + O_{3_MET}$$



- 2013年(0.78~3.55ppb)、2017年(3.95~9.13ppb)气象对三个站点为 O_3 贡献为正；2015年、2016年及2021年(-8.86~-4.41ppb)气象对三个站点臭氧贡献为负值
- 相对湿度在三站点影响最为显著
- DSL站点风向的平均扰动可以达到4.85 ppb，气团交汇影响显著
- PDHN站PBL贡献占总 O_3_{MET} 的43%，传输影响显著

区域背景变化



观测 去气象值 气象扰动

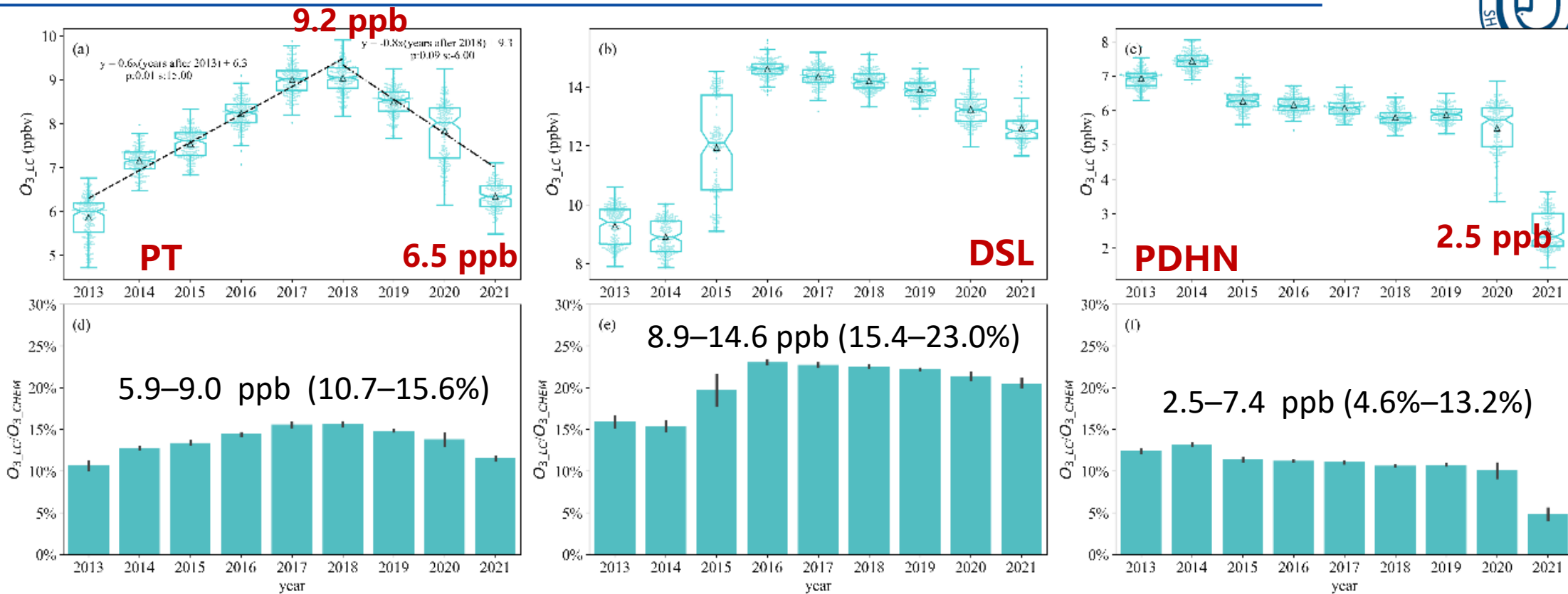
$$O_{3_OBS} = O_{3_RMW} + O_{3_MET}$$

去气象值 本地 区域背景

$$O_{3_RMW} = O_{3_LC} + O_{3_RGB}$$

- O_3 区域背景浓度约为 48.8 ± 0.3 ppb，近年来呈现 -0.018 ppb/year¹的下降趋势
- O_{3_RBG} 占比：PDHN > PT > DSL
- DSL较低的 O_{3_RBG} 表明该站点存在较强的本地光化学生成；而 O_{3_RBG} 对PDHN站的贡献为三站中最高，进一步证实了跨区域传输对该站有着较强的影响

局地光化学的贡献



- 自2013年以来，城市PT站的 O_3_{LC} 开始以每年0.6 ppb的速率增加，于2018年达到9.2 ppb。随后，在2018-2021年期间， O_3_{LC} 以每年0.8 ppb的速率下降至6.5 ppb
- DSL具有最高的局地光滑化学生成贡献，其次是PT和PDHN站， O_3_{LC} 由临海向内陆增加
- PDHN站 O_3_{LC} 呈波动变化 (5.5~6.9 ppb)，2021年由于 NO_x 大幅下降，其 O_3_{LC} 降至2.5 ppb

大气污染防治的政策效果

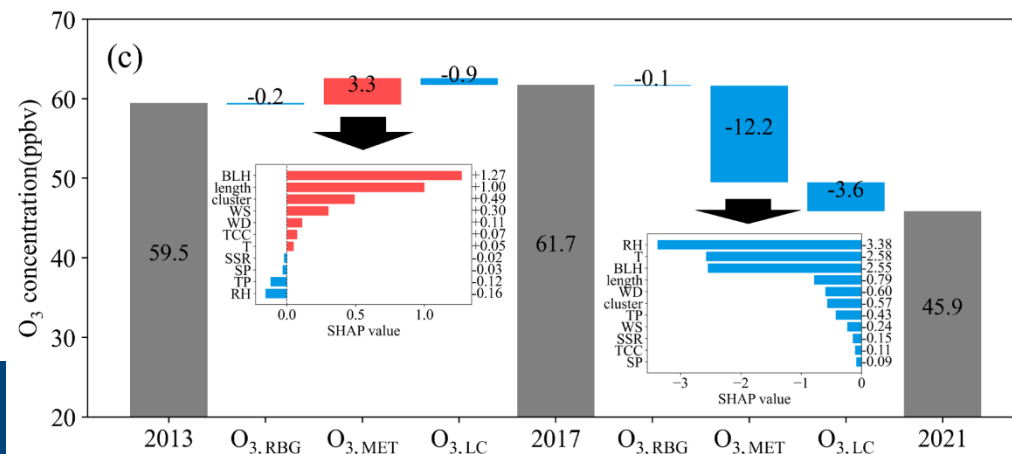
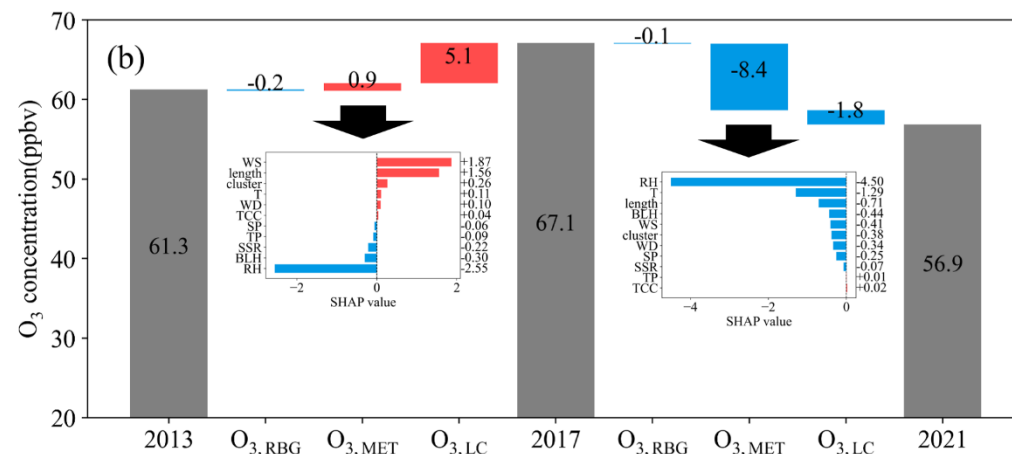
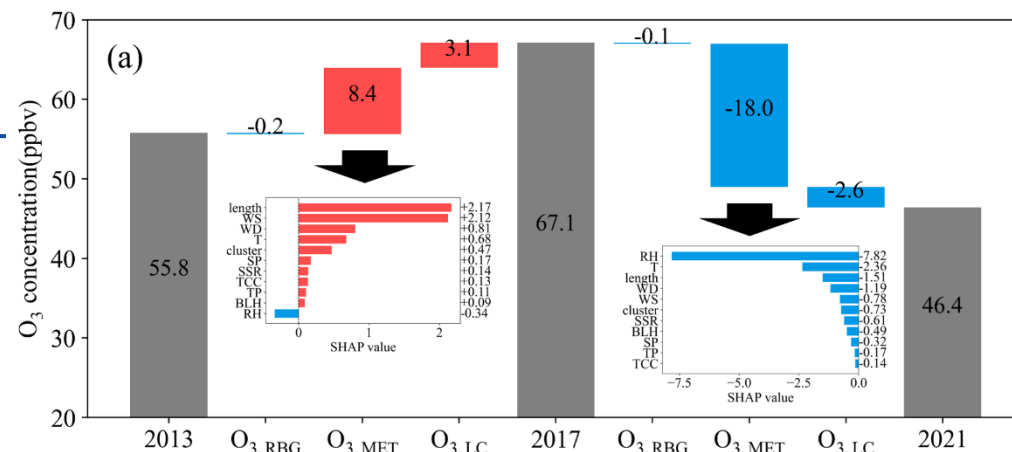
- 《大气污染防治行动计划（2013—2017）》实施，PT站、DSL站和PDHN日间臭氧分别反弹了11.3ppb（20.3%），5.8ppb（9.5%）和2.2ppb（3.6%），**主要来源于本地生成（DSL）和不利气象（PT、PDHN）的影响。**
- 《蓝天保卫战（2018—2020）》实施，PT站，DSL站和PDHN日间臭氧分别下降了20.7ppb（30.8%），10.2ppb（15.2%）和15.8ppb（25.6%），**气象有利，减排显著。**



PT

DSL

PDHN



臭氧污染演变对比：上海VS洛杉矶



表 2 上海与洛杉矶城市基本情况对比

参数	上海区域 (长三角腹地)	洛杉矶区域 (南加州腹地)
经纬度带	120°51'—122°12' E 30°40'—31°53' N	117°39'—118°56' W 32°48'—34°49' N
年均温 (°C)	17.3	18.3
湿度 (%)	68	65
风速 (m/s)	3.3 m/s	3.4 m/s
面积 (km ²)	6340.5	1213.8
人口 (万)	2428.14	1789.44
GDP (亿元)	38155	57199
机动车保有量 (万辆)	704 ²	760

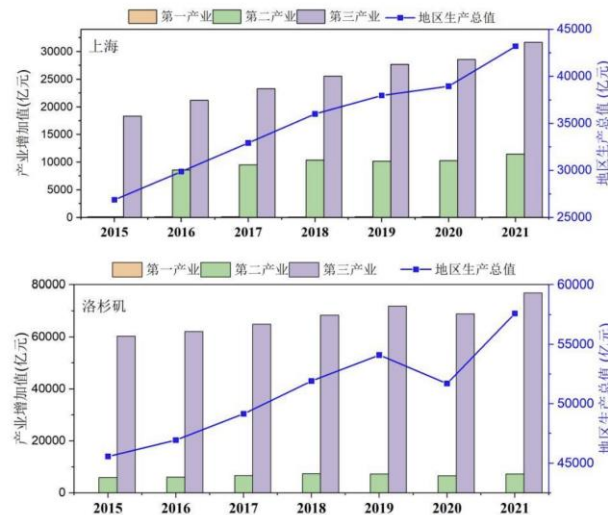
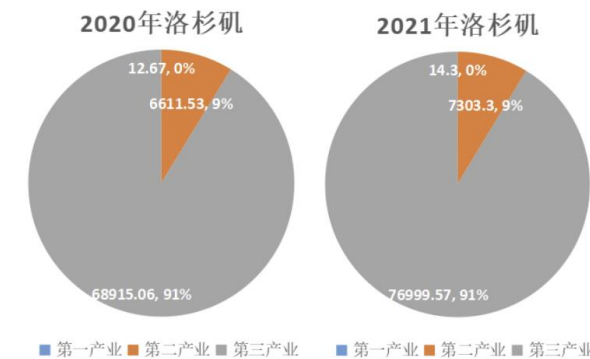
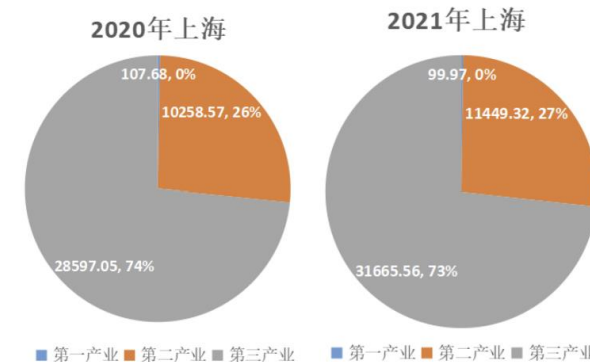
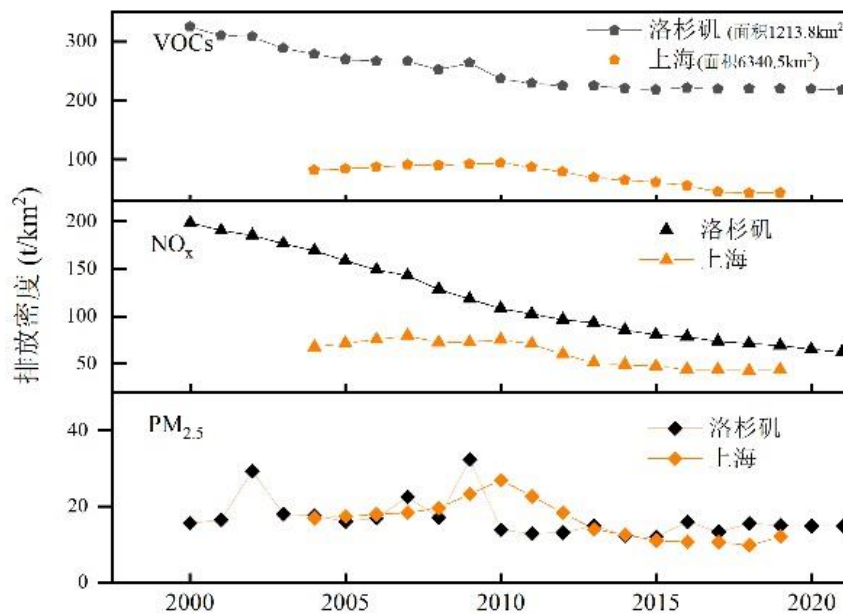
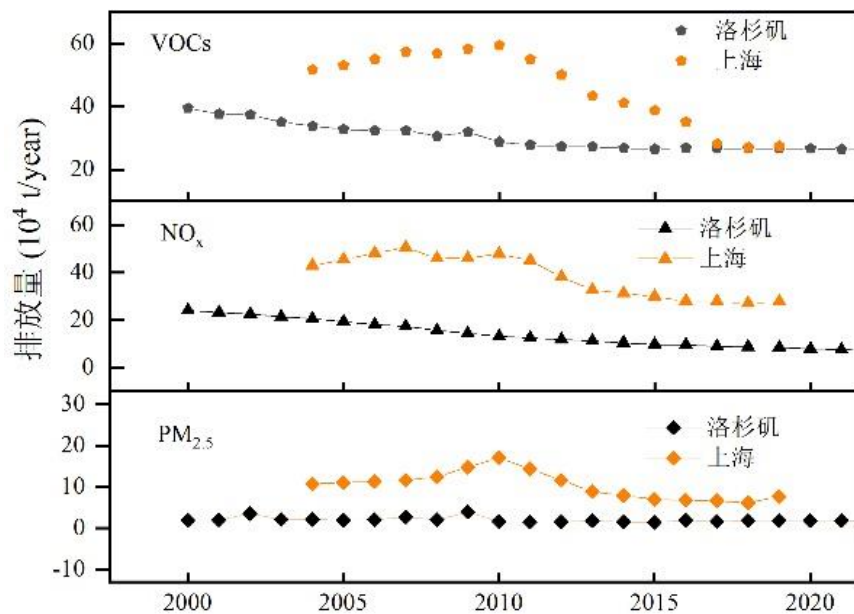


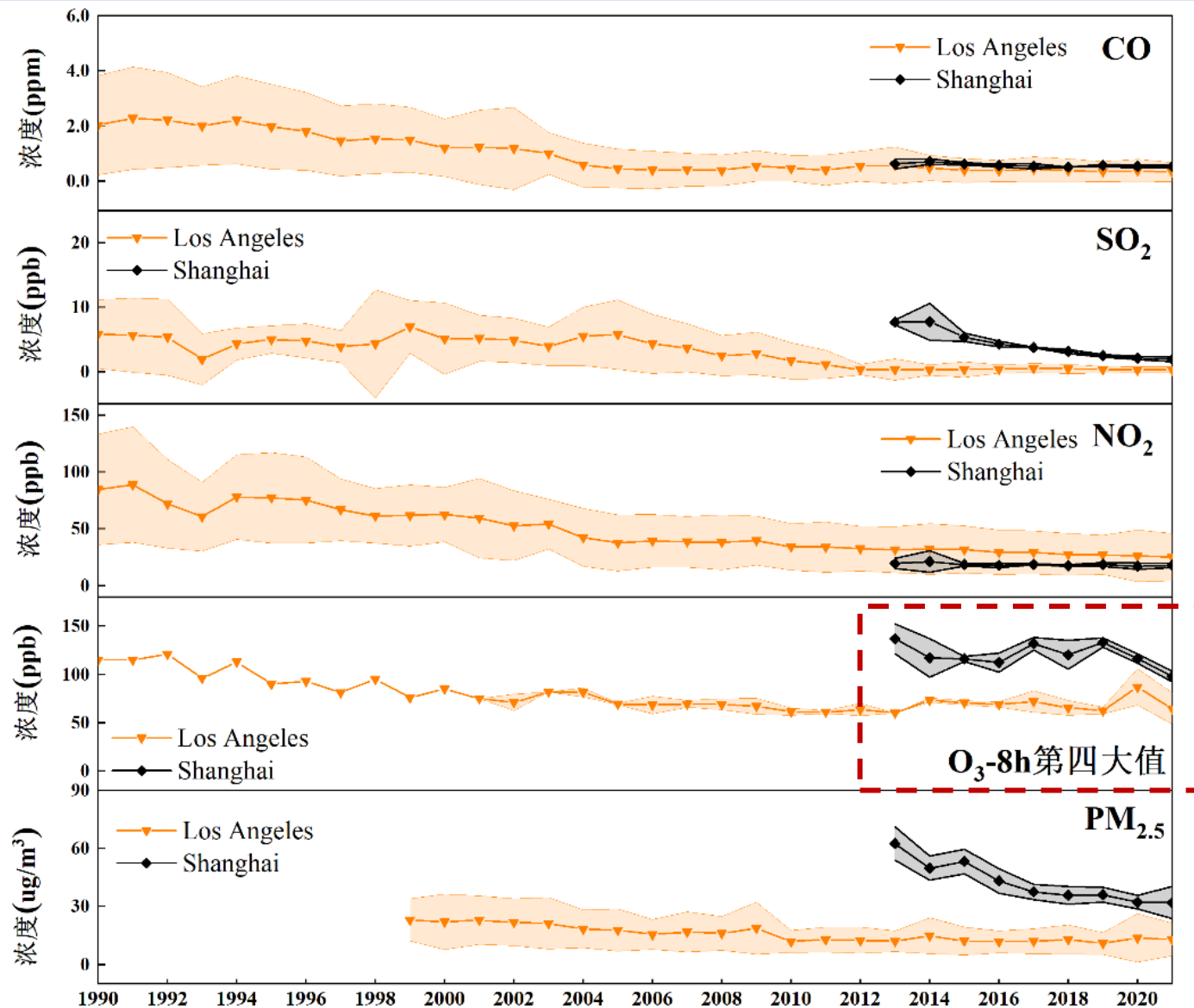
图 2-9 上海与洛杉矶历年地区生产总值和三产业增加值变化



SEMC



臭氧污染演变对比：上海VS洛杉矶

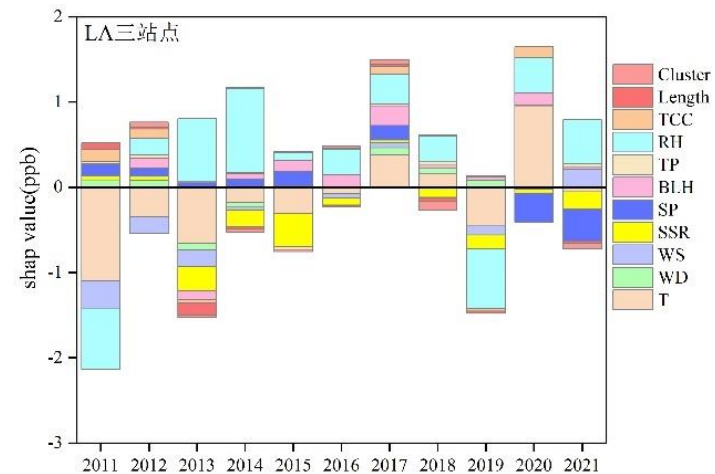
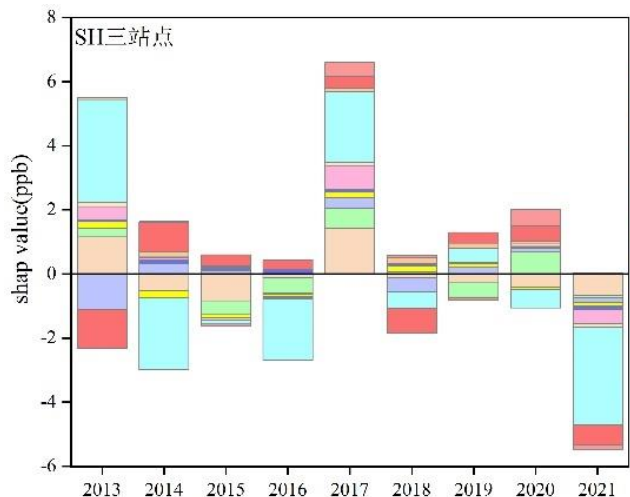
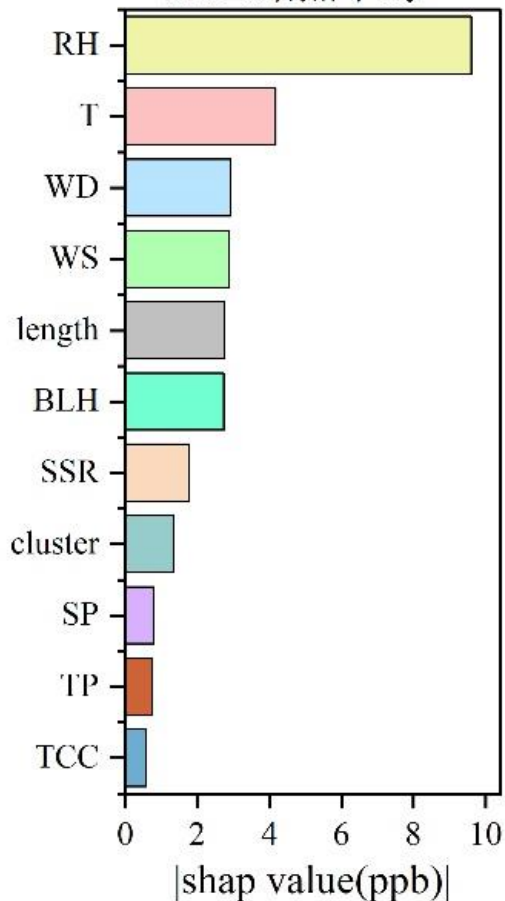
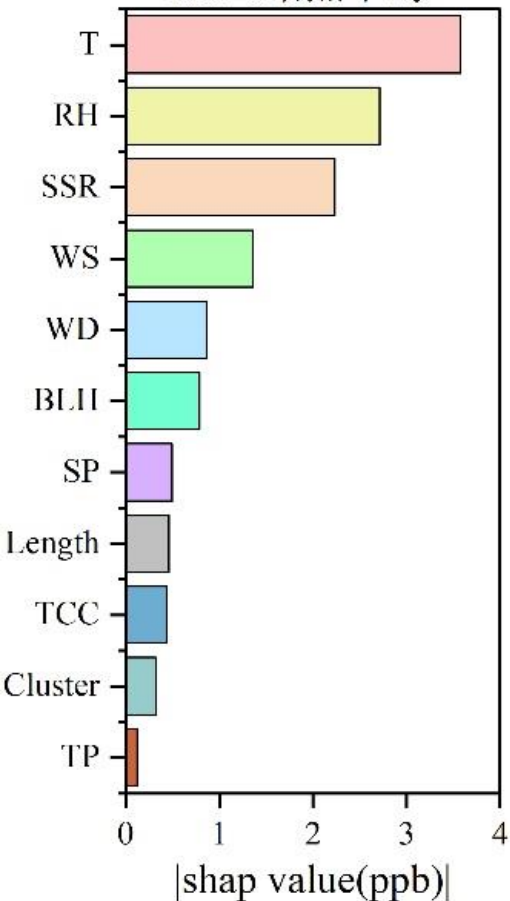


气象影响：上海vs洛杉矶



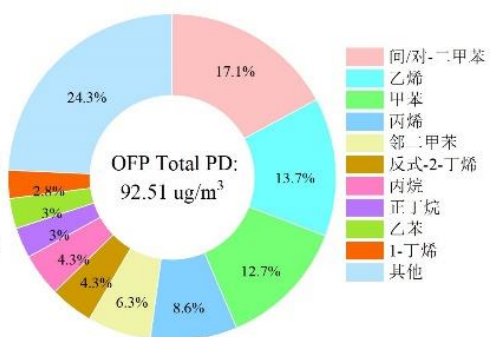
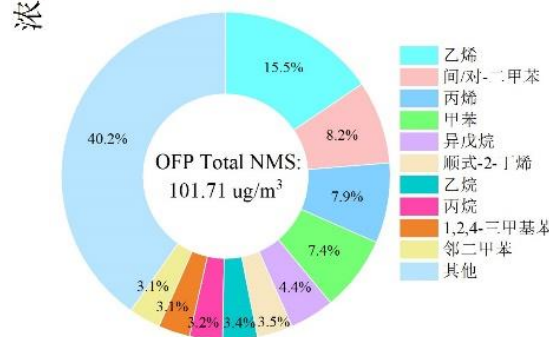
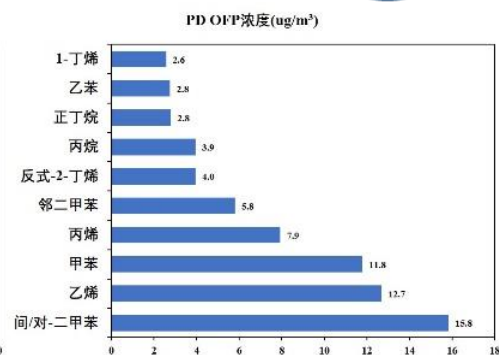
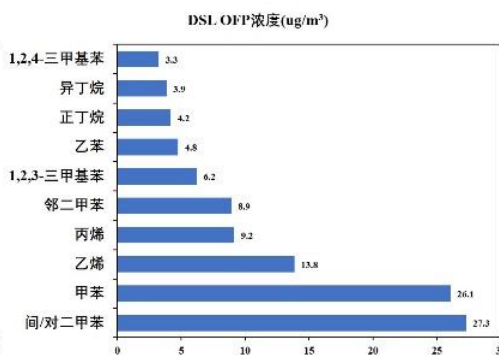
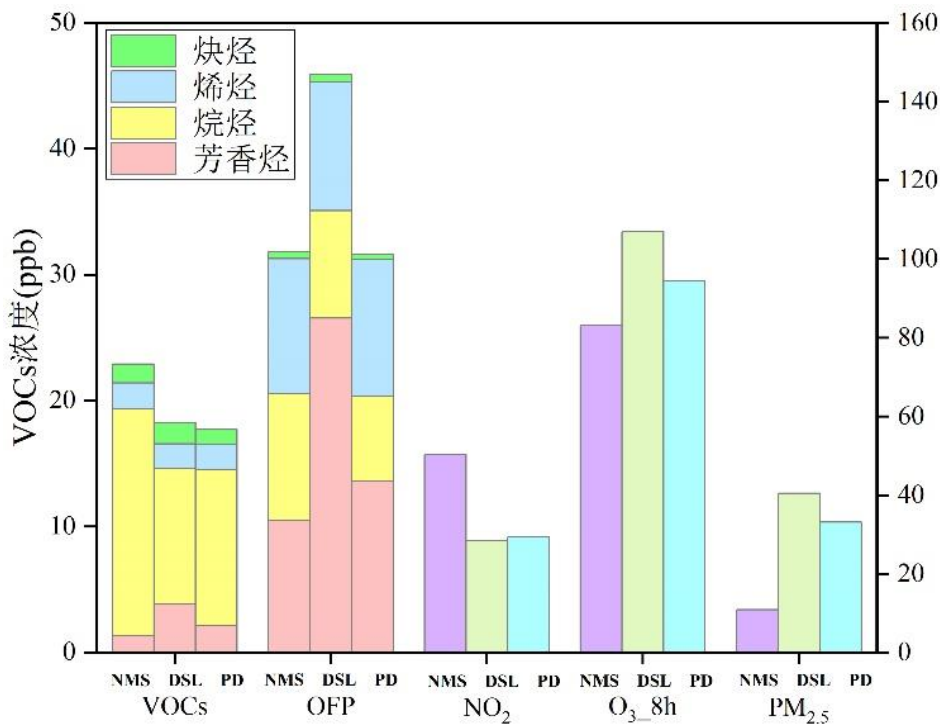
LA三站点平均

SH三站点平均



- LA地区气象扰动则介于7.8—20.3 ppb之间，明显低于上海 (26.6—32.7 ppb)
- LA主要受到T、RH及SSR的影响，表明光化学影响显著；SH主要受到RH、T影响，而WD、WS、气团长度、BLH等影响接近且显著高于LA，光化学及区域传输共同影响

化学机制：上海vs洛杉矶



- 以2019年为基准，DSL（区域）及浦东（城区）臭氧主要前体物NO₂浓度水平明显低于洛杉矶城区（NMS），归因于洛杉矶下风向区域山脉阻隔；上海地区VOCs浓度水平低于洛杉矶，但DSL站OFP显著高于洛杉矶
- 上海市及长三角地区芳香烃的整体活性显著高于洛杉矶；且DSL及PD站间/对-二甲苯及甲苯对OFP的总贡献分别达到36.4%及29.8%，显著高于NMS站（15.6%）。

治理历程



	1940	1971	1979	1990	1997	2005	2008	2011	2016	2018	2020	2022		
臭氧标准		总光化学指示物	臭氧1H: 120ppbv		臭氧8H: 80ppbv		臭氧8H: 75ppbv	臭氧8H: 70ppbv						
法案法规		1970出台《清洁空气法案》		修正《清洁空气法案》		出台《清洁空气州际法规》		出台《跨州空气污染法规》	出台《跨州空气污染法规》加强版	SIP修订、《创新清洁运输法规》	《先进清洁卡车法规》、《修订跨州空气污染法规》	《创新清洁运输法规》修正	《加州先进清洁汽车(II)》、《2022 SIP战略》	《重型发动机和车辆标准》
减排重点	VOCs				VOCs、NOx协同控制					NOx	近十年, NOx减排超过40%	NOx、GHG	NOx	NOx
							强化电力行业NOx	进一步强化电力行业	强化夏季电力行业	重型发动机	预计2035年实现港口、码头等的零排放转型, 2040年实现公共服务车转型, 2045年实现法律框架内所有其他车队的转型	燃料燃烧	汽车制造与销售	重型车辆排放
措施对策	从经济角度出发, 以VOCs为主的防控措施	编制出台移动源和固定源系列标准		VOCs面源、消费品等全面减排	溶剂、消费品行业从VOCs总量控制转为活性总量控制				移动源车辆排放控制规划	机动车里程(VMT)抵消策略	确保车辆采购、基础设施建设和燃料成本管理的同步	加大燃油车净化力度, 零排放车辆积分激励, 加大对空调制冷剂的要求	新的、更为严格的排放标准, 涵盖更广泛的重型发动机运行条件	
		成立臭氧传输评估委员会	划定臭氧传输区域	实施分阶段区域性NOx大型燃烧源减排		突出夏季	固定源和区域源减排	ZEV销售积分赤字						
防治成效		下降1.3%/yr, 3.3ppb/yr	以本地源排放为主的洛杉矶等地臭氧污染改善		下降0.5%/yr, 1.1ppb/yr	下降1.8%/yr, 3.6ppb/yr	下降3.2%/yr, 5.7ppb/yr		增长2.32%/yr, 1.06ppb/yr	下降5.21%/yr, 3.67ppb/yr		到2035年新销售的新乘用车、卡车和SUV实现100%零排放汽车目标		
	高VOCs地区改善较慢													
科学认识	VOCs、NOx是主要前体物		区域性特征达成共识		洲际协同, 协同控制NOx, 深化高架点源减排, 启动季节性调控					调动市场机制, 研发清洁的车, 分车型设置流通积分, 明确积分抵偿和交易机制	可持续的交通体系	发展清洁能源汽车, 如氢能	重型车辆将是未来移动源NOx排放的最大贡献者之一	

由集中控制VOCs, 转向VOCs-NOx协同控制, 到近期强化NOx控制的变化历程, 同时强化区域间的合作 16

治理历程



名称	实施时间	覆盖区域	减排时段	减排措施	减排成效
NOx SIP CALL: OTC NOx Budget Program ^[11]	1999-2002	22 个州和哥伦比亚特区 	臭氧季 (5-9 月)	<ol style="list-style-type: none"> 1. 设置发电机组及工业锅炉等大型化石燃料燃烧源排放限值; 2. NOx 排放总量控制及配额交易 	<ol style="list-style-type: none"> 1. 相关源 NOx 排放相比 1990 年下降 60%; 2. 各州 NOx 总量大幅下降, 每日 NOx 排放峰值显著下降
NOx SIP CALL: NOx Budget Trading Program (NBP) ^[22]	2003-2008	20 个州和哥伦比亚特区 	臭氧季 (5-9 月)	<ol style="list-style-type: none"> 1. 减少区域内的发电厂和其他大型燃烧源在臭氧季的 NOx 排放; 2. NOx 排放配额交易 	<ol style="list-style-type: none"> 1. 电力行业 NOx 排放大幅度下降; NOx 排放从 2003 年的 85 万吨下降到 48 万吨; 2. O₃-8h 从 2003 年的 0.5654 ppm 下降至 2008 年的 0.4891 ppm; 3. 85% 的东部各州已达标;
Clean Air Interstate Rule ^[23] (CAIR)	2009-2014	25 个州和哥伦比亚特区 	臭氧季 (5-9 月)	<ol style="list-style-type: none"> 1. 电力行业及主要工业源 (炼油、钢铁、造纸等) NOx 减排; 2. 电力行业 NOx 全年减排; 3. NOx 排放配额交易 	<ol style="list-style-type: none"> 1. NOx 年排放量相比 2005 年下降 56%; 臭氧季 NOx 排放量下降 44% 至 45 万吨; 2. 90% 的臭氧未达标区域低于 1997 年标准限值
Cross-State Air Pollution Rule ^[24] (CSAPR)	2015-2017	28 个州 25 个州	全年 臭氧季 (5-9 月)	<ol style="list-style-type: none"> 1. 2015 年: 28 个州减少电厂 NOx 排放; 25 个州减少臭氧季 NOx 排放; 2. 2017 年: 减少美国东部 21 个州和华盛顿特区发电厂在臭氧季的 NOx 排放; 调整各州排放限额。 3. 2021 年: 减少 12 个州电力行业 NOx 排放 	<ol style="list-style-type: none"> 1. 2015-2017 年臭氧季节 NOx 排放量持续下降, 但是臭氧的 8 小时平均浓度却出现反弹 (从 2015 年的 0.068 ppm 至 2018 年的 0.069 ppm)
Cross-State Air Pollution Rule Update ^[25]	2017-2019	21 个州 	臭氧季 (5-9 月)	<ol style="list-style-type: none"> 1. 电力部门 NOx 减排 2. 修改 CSAPR NOx 臭氧季节限额 	
Revised Cross-State Air Pollution Rule Update ^[26]	2020-	12 个州 	臭氧季 (5-9 月)	<ol style="list-style-type: none"> 1. 电力部门 NOx 减排, 安装先进低氮排放燃烧控制装置, 优化选择性催化还原 SCR 技术 2. 从 2021 年臭氧季节开始, 要求 12 个州的发电厂进一步减少 NOx 排放 	

USEPA., 1998, 2002, 2005, 2006, 2011, 2016, 2021

- 2013年—2017年臭氧改善并无明显成效，2018—2021年效果显著
- 上海VOCs活性强，尤其是芳香烃对OFP的贡献远高于洛杉矶
- 切实推进跨区域臭氧管控协作
- 实施臭氧季臭氧污染专项管控
- 区域层面大幅度削减NO_x排放
- 区域层面推进实施HRVOCs管控



上海大学
Shanghai University

Front. Environ. Sci. Eng. 2023, 17(11): 138
<https://doi.org/10.1007/s11783-023-1738-5>

RESEARCH ARTICLE

致谢

- 上海市生态环境局（([2022]37）
- 淀山湖野外科学观测研究站

Elucidate long-term changes of ozone in Shanghai based on an integrated machine learning method

Jin Xue^{1,2}, Fangting Wang^{1,2}, Kun Zhang^{1,2}, Hehe Zhai^{1,2}, Dan Jin³, Yusen Duan (✉)³, Elly Yaluk^{1,2}, Yangjun Wang^{1,2}, Ling Huang^{1,2}, Yuewu Li³, Thomas Lei⁴, Qingyan Fu³, Joshua S. Fu⁵, Li Li (✉)^{1,2}

1 School of Environmental and Chemical Engineering, Shanghai University, Shanghai 200444, China

2 Key Laboratory of Organic Compound Pollution Control Engineering (MOE), Shanghai University, Shanghai 200444, China

3 Shanghai Environmental Monitoring Center, Shanghai 200235, China

4 Institute of Science and Environment, University of Saint Joseph, Macao 999078, China

5 Department of Civil and Environmental Engineering, University of Tennessee, Knoxville, TN 37996, USA

