陈靖扬,李婷苑,陈耀登,等.非高温条件下珠江三角洲地区臭氧污染成因分析 [J]. 中国环境科学, 2025,45(9):4776-4785.
Chen J Y, Li T Y, Chen Y D, et al. Investigating the causes of ozone pollution under non-high temperature conditions in the Pearl River Delta, China [J]. China Environmental Science, 2025,45(9):4776-4785.

非高温条件下珠江三角洲地区臭氧污染成因分析

陈靖扬[1,2,3,4],李婷苑[1,4*],陈耀登[2,3],欧阳珊珊[5],龚 宇[1],林子锋[6] (1.广东省生态气象中心(珠江三角洲环境气象预报预警中心),广东 广州 510640；2.南京信息工程大学气候系统预测与变化应对全国重点实验室/气象灾害教育部重点实验室/气象灾害预报预警与评估协同创新中心,江苏 南京 210044；3.南京信息工程大学大气科学学院,江苏 南京 210044；4.广东省南岭森林大气环境与碳中和野外科学观测研究站,广东 广州 511443；5.暨南大学环境与气候研究院,广东 广州 511443；6.广东省生态环境监测中心,广东 广州 510308)

摘要：为探究非高温条件下珠江三角洲地区发生臭氧(O_3)污染的成因,基于2015~2023年空气质量数据及气象数据,分析高温日(日最高气温≥28℃)与非高温日(日最高气温<28℃)下珠江三角洲地区 O_3 污染特征差异.结果表明:珠江三角洲 O_3 污染主要发生在高温日,但总污染城市数中仍有17.2%出现在非高温日.高温日下污染集中于珠江三角洲中部和西南部,非高温日以西南部为主.非高温日 O_3 污染主要发生在日最高气温 25.0~27.2℃、相对湿度44.9%~56.8%、日照时数7.7~9.8h的条件下.与高温污染日对比,非高温污染日相对湿度平均偏低6.0%,日照时数更加集中在高值区间.基于SHAP方法,进一步揭示了相对湿度是影响 O_3 浓度最重要的气象因子,高温日和非高温日下相对湿度对 O_3_8h浓度的贡献最高可达30和60μg/m³.低相对湿度(<65%)通常伴随着高日照时数,共同促进 O_3 生成,而高相对湿度(>65%)则不利于 O_3 生成.此外,非高温日下日照时数的影响显著,表明充足太阳辐射是非高温情况下 O_3 生成的关键条件.非高温日 NO_2 对 O_3 浓度变化的贡献约15μg/m^3,影响弱于高温日.

关键词：珠江三角洲；臭氧(O_3)；非高温；气象影响；SHAP
中图分类号：X511 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2025)09-4776-10

Investigating the causes of ozone pollution under non-high temperature conditions in the Pearl River Delta, China. CHEN Jing-yang[1,2,3,4], LI Ting-yuan[1,4*], CHEN Yao-deng[2,3], OUYANG Shan-shan[5], GONG Yu[1], LIN Zi-feng[6] (1.Guangdong Ecological Meteorological Centre, Pearl River Delta Center for Environmental Meteorology Prediction and Warning, Guangzhou 510640, China；2.State Key Laboratory of Climate System Prediction and Risk Management/Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education/Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China；3.School of Atmospheric Sciences, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China；4.Guangdong Provincial Observation and Research Station for Atmospheric Environment and Carbon Neutrality in Nanling Forests, Guangzhou 511443, China；5.College of Environment and Climate, Jinan University, Guangzhou 511443, China；6.Guangdong Environment Monitoring Center, Guangzhou 510308, China). *China Environmental Science*, 2025,45(9)：4776~4785

Abstract：To investigate the causes of ozone (O_3) pollution in the Pearl River Delta (PRD) region under non-high-temperature conditions, this study analyzed differences in O_3 pollution characteristics between high-temperature days (daily maximum temperature ≥28°C) and non-high-temperature days (daily maximum temperature <28°C) using air quality and meteorological data from 2015 to 2023. The key findings are as follows: O_3 pollution in the PRD primarily occurred on high-temperature days, yet 17.2% of total polluted cities were observed during non-high-temperature days. High-temperature pollution was concentrated in central and southwestern PRD, while non-high-temperature pollution predominantly occurred in the southwest. Non-high-temperature O_3 pollution typically occurred under conditions of daily maximum temperature (25.0~27.2°C), relative humidity (44.9%~56.8%), and sunshine duration (7.7~9.8h). Compared to high-temperature pollution days, non-high-temperature pollution days exhibited 6.0% lower relative humidity and a more concentrated distribution of sunshine duration in higher intervals. The SHAP method demonstrated that relative humidity is the most influential meteorological factor affecting O_3 concentrations.

收稿日期：2025-02-28
基金项目：广东省基础与应用基础研究基金项目(2023A1515110536,2024A1515510009,2024A1515510032);广东省科技计划项目(2024B1212040006);广东省气象局科学技术研究项目(GRMC2022M09);江苏省研究生科研与实践创新计划项目(KYCX24_1422);中国气象局青年创新团队项目(CMA2023QN13);广东省气象局软科学项目(Z202304);广东省重点研发计划项目(2020B1111360003)

* 责任作者, 高级工程师, l-tiny@163.com

On high-temperature days and non-high-temperature days, the contribution of relative humidity to the O_3_8h concentration can reach up to 30 and 60μg/m^3, respectively. Low relative humidity (<65%) paired with prolonged sunshine duration synergistically promoted O_3 formation, whereas high relative humidity (>65%) combined with reduced sunshine suppressed it. Additionally, the pronounced impact of sunshine duration under non-high-temperature conditions highlights sufficient solar radiation as a prerequisite for O_3 generation. Under non-high-temperature conditions, NO_2 exerts a weaker influence on O_3 concentrations compared to high-temperature days, with its contribution to O_3 concentration variations quantified at approximately 15 μg/m^3.

Key words：Pearl River Delta；ozone (O_3)；non-high-temperature；meteorological influences；SHAP

近地面臭氧(O_3)会对人体健康[1-2]、植被作物[3-4]和气候变化[5]产生负面影响.近年来,在政府部门的减排行动下,珠江三角洲地区颗粒物浓度下降明显[6],但 O_3 浓度反而呈现上升趋势[7-8],O_3 污染已经成为制约珠江三角洲地区空气质量达标的重要因素.

对流层 O_3 主要是由光化学反应生成的二次污染物,不仅与氮氧化物(NO_x)、一氧化碳(CO)和挥发性有机化合物(VOCs)等前体物之间具有的复杂非线性关系[9-11],还与天气形势和局地气象条件的变化密切相关[12-16].在天气形势方面,珠江三角洲地区在台风外围[17-18]、副热带高压[19-20]、弱冷高压脊[21]等天气形势影响下,更容易出现 O_3 污染过程.局地气象条件方面,在高气温、低湿度、强太阳辐射的情况下更有利于 O_3 生成[22-24],风向和风速则会影响 O_3 及其前体物的传输、扩散和堆积[25-27].由于前体物排放具有一定的时空差异性,因此驱动 O_3 浓度变化的关键气象因子也会存在一定的区别[27-28],厘清不同情况下影响 O_3 关键气象因子,对 O_3 污染预报和制定污染防控策略具有重要意义.

在气象条件中,高温条件被广泛认为是 O_3 污染的重要驱动因素,一方面,在高温条件下会刺激植物释放更多的 O_3 前体物 BVOCs,进而提高了 O_3 的生成效率[29-30];另一方面,高温促进光化学反应速率加快生成 O_3[31-32].值得注意的是,O_3 污染并非仅限于高温环境,在某些天气形势和气象条件的共同作用下,即使气温未达到较高水平,仍会出现 O_3 污染过程:2020 年 1 月,珠江三角洲地区内较小风速使得污染物得以积累,整体温度较低但辐射较强,使得该地区发生 O_3 和 $PM_{2.5}$ 复合污染[33];2021 年 12 月初,在下沉气流的控制下珠江三角洲西部到粤西出现日照偏高、风速偏小的情况,叠加高层逆温和弱偏北风跨区域输送的影响,出现了持续 5d 的 O_3 污染过程[34];2022 年 1 月初,广东省在气温较低的条件下,受弱风速、长日照时数、贴地逆温及回流效应的共同影响,出现了 O_3 轻度-中度污染过程[35].上述研究表明,非高温条件下 O_3 污染的发生与特定气象条件和天气形势密切相关,但目前关于该方面的研究主要集中在污染过程分析,而从长期统计角度开展非高温下 O_3 污染特征和成因分析的研究则相对较少.

本文以珠江三角洲为研究区域,基于高温日和非高温日的划分,对比分析两种情况下 O_3 浓度及其污染特征,对比分析非高温日下不同气象要素对 O_3 浓度的影响及其与高温日的差异,并结合 LightGBM 模型和 SHAP 方法量化各要素的贡献,揭示非高温日下 O_3 污染的主导要素.

1　数据与方法

1.1　数据来源

本研究使用的数据为2015~2023年珠江三角洲空气质量和气象要素数据,研究使用的监测站点如图 1 所示,其中气象监测数据来源于广东省气象局,数据经过界限值检查、时空一致性检查以及内部一致性检查[36]等质量控制处理,空气质量监测数据来源于广东省生态环境监测中心,为保证数据有效性,当珠江三角洲 57 个国控站的小时监测数量小于一半时,则剔除该小时数据,并根据《环境空气质量标准》[37]剔除不符合数据有效性规定的 O_3 浓度 8h 滑动平均值.气象监测数据包括逐时相对湿度、10m 风速、降水量、海平面气压以及逐日日照时数和日最高气温;气象再分析资料为欧洲中心的 ERA5 资料,包括逐时边界层高度、100m U 风、100m V 风,空间分辨率为 0.25°×0.25°.空气质量监测数据采用逐小时 O_3 浓度和 NO_2 浓度.由于近地面 O_3 主要来源于光化学反应,其浓度变化受白天气象要素的影响更为显著[38],因此,研究采用对当天 O_3 日浓度影响较大的 11:00~19:00 逐时气象要素的平均值作为日值,其中降水量采用累计值进行计算,前体物 NO_2 浓度则采用对当天光化学反应较为重要的 08:00 浓度值作为日值[39-40].

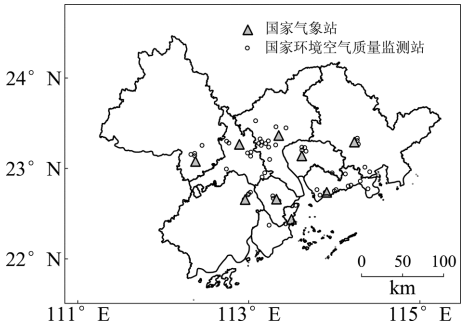


图 1 珠江三角洲国家环境空气质量监测站和国家气象代表站点分布

Fig.1 Distribution of national ambient air quality monitoring stations and national meteorological representative stations in the Pearl River Delta

审图号 GS(2020)4814

1.2 研究方法

1.2.1 判定标准 (1)污染判定根据《环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)》[41],本研究首先计算珠江三角洲各个城市内所有国家环境空气质量监测站的 O_3 浓度日评价值(日最大 8h 滑动平均值,O_3_8h),再计算站点平均得到各个城市 O_3_8h,当某个城市 O_3_8h>160μg/m^3 时,定义该城市发生 O_3 污染,一段时间内(2015~2023 年)珠江三角洲 9 个城市出现 O_3 污染的总次数定义为污染城市数.

(2)非高温日判定对于珠江三角洲地区的 O_3 污染,研究表明日最高气温超过 28℃[42],更有利于 O_3 光化学反应,因此定义高温日为日最高气温大于或等于 28℃,非高温日为日最高气温小于 28℃.

1.2.2 机器学习模型 LightGBM 是一种基于梯度提升框架的机器学习算法,采用基于决策树的学习方法[43],能够有效捕捉特征间的复杂非线性关系.该算法通过两项创新技术显著提升了模型训练效率:梯度单侧采样(GOSS)和互斥特征捆绑(EFB).同时,LightGBM 采用叶节点优先的分割策略,通过选择误差最大的叶节点进行生长,这一策略不仅提高了模型精度,还显著减少了计算时间.目前,该方法已在 O_3 预测及分析中得到应用[44-46].由于高层建筑对局地风场的影响较大[44],为了更好地反映区域尺度风场特征,本研究使用 ERA5 中 100m U 风和 100m V 风表征风场.因此,研究采用 2015~2023 年相对湿度、10m 风速、100m U 风、100m V 风、降水量、海平面气压、日照时数、日最高气温、边界层高度、NO_2 浓度的日值作为模型特征,O_3_8h 浓度为标签,分别对 9 个城市进行模型训练.

1.2.3 SHAP 方法 SHAP 方法是基于博弈论中 Shapley Values 发展而来[47],可提高机器学习模型的可解释性[48],本研究将其用于量化气象要素特征对 O_3 的贡献.SHAP 值的定义如下:

$$\mathrm{SHAP}_i = \sum_{S\subseteq N/\{i\}} \frac{S!(F-S-1)!}{F!}[\mathrm{f}(S\cup\{i\})-\mathrm{f}(S)]$$

式中:$S\subseteq N/\{i\}$ 示所有不包含气象要素特征 i 的子集; $\mathrm{f}(S)$是模型基于特征子集 S 的 O_3 浓度预测值;$\mathrm{f}(S\cup\{i\})-\mathrm{f}(S)$ 表示当特征 i 加入子集 S 后 O_3 浓度预测值的变化;即特征 i 的边际贡献,$\frac{S!(F-S-1)!}{F!}$ 为加权因子,确保特征 i 的贡献在所有可能的特征组合中得到公平分配.通过计算特征 i 在所有可能特征组合中的边际贡献的加权平均,最终得出表征特征 i 整体贡献的 SHAP 值,SHAP 值越大,表示特征 i 对 O_3 浓度贡献越大.

2 结果与讨论

2.1 不同日最高气温区间的 O_3 特征

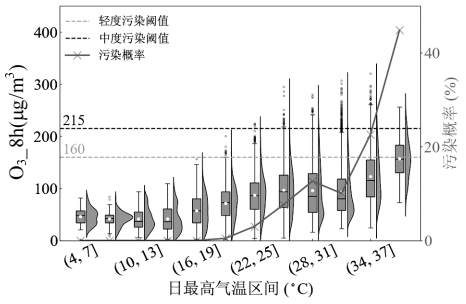


图 2 不同日最高气温区间下的 O_3_8h(箱线)及污染概率特征

Fig.2 O_3_8h (boxplots) and pollution probability by daily maximum temperature intervals

图 2 展示了 2015~2023 年珠江三角洲地区 9 个城市在不同日最高气温区间下的 O_3 日平均浓度及其污染发生概率.结果显示,在日最高气温小于 19℃时,珠江三角洲地区未发生 O_3 污染,而在大于 19℃时,O_3_8h 平均值(点)、中位数(横线)和污染概率(折线)均随温度升高而增加.研究表明,当日最高气温达到或超过 28℃时,更有利于 VOCs 和 NO_x 的光化学反应生成 O_3[42],从图 2 可见,日最高气温≥28℃时,O_3_8h 平均值超过 92.9μg/m^3,污染发生概率超过 10.0%.但值得注意的是,

在25~28℃和22~25℃区间,O_3污染的发生概率仍分别为 7.6%和 3.0%,且出现过中度及以上污染过程.即便在较低的19~22℃区间,仍出现过O_3污染(0.46%),这表明,即使在日最高气温相对较低的情况下,珠江三角洲地区仍存在一定的O_3污染风险.基于此,下文将根据日最高气温划分为高温日(≥28℃)与非高温日(<28℃),重点探讨非高温日下O_3的时空分布特征及其污染成因.

2.2　高温日与非高温日的O_3时空分布特征

从不同月份的 O_3_8h 月平均浓度和污染城市数统计结果来看,1~12 月期间,高温日下的O_3_8h 月平均浓度始终高于非高温日(图 3).O_3_8h 月平均浓度的高值时段在高温日下出现在秋季的 9~11 月,浓度范围为122.2~134.6μg/m^3;而在非高温日下,O_3_8h 月平均浓度的高值时段则出现在秋末至次年春初的 10~5 月,浓度范围为 74.6~88.4μg/m^3.从污染城市数的统计结果来看,2015~2023 年高温日下的污染城市数共 2063 个,占总污染城市数的 82.8%,主要分布在 4~11 月,但由于珠江三角洲整体气温较高,冬季仍会出现高温日 O_3 污染;2015~2023 年非高温日下的污染城市数累计为 430 个,占总污染城市数的 17.2%,主要发生在 10 月~次年 4 月,珠江三角洲夏季气温较高,非高温日往往对应强天气过程,因此未出现非高温日污染.此外可见 6~8 月尽管高温日占比非常高,但O_3浓度为相对低值,这是因为该时段正值华南夏季风盛行期间,整体扩散条件较好所导致[49-50].高温日与非高温日下的 O_3 污染均呈现明显的季节性变化,结合高温日数与非高温日数的逐月占比情况可知,这种 O_3 污染的季节变化与不同季节下高温日数和非高温日数的变化密切相关.

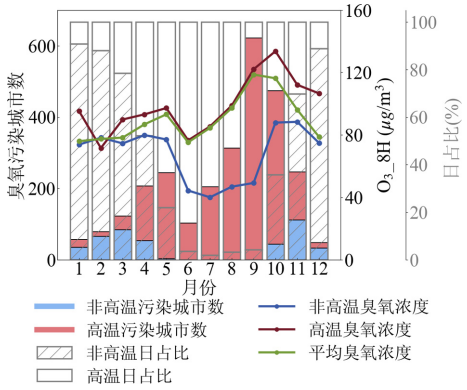


图 3　2015~2023 年高温日与非高温日下逐月珠江三角洲O_3_8h 浓度及污染城市数

Fig.3　Monthly O_3_8h concentrations and number of polluted cities during high-temperature days vs. non-high-temperature days in the Pearl River Delta (2015~2023)

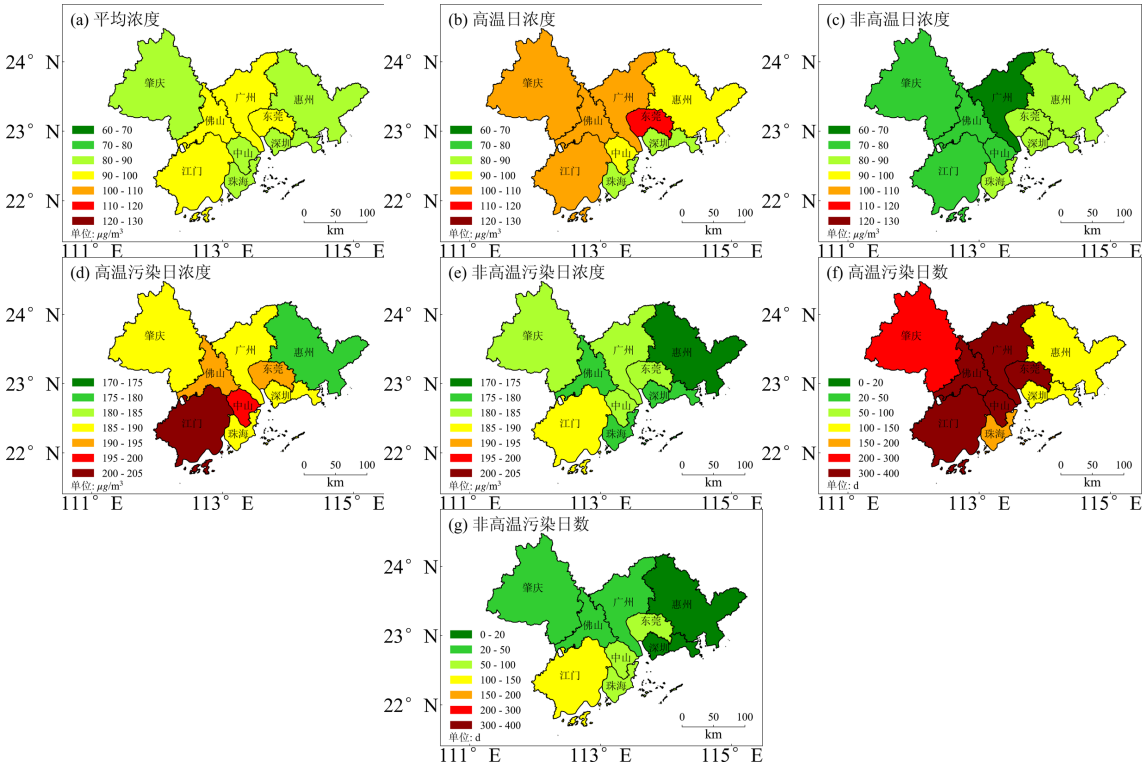


图 4　2015~2023 年珠江三角洲O_3_8h 浓度及污染日数空间分布

Fig.4　Spatial distribution of O_3_8h concentrations and number of polluted days in the Pearl River Delta(2015~2023)

审图号 GS(2020)4814

根据 2015~2023 年珠江三角洲 O_3_8h 浓度分布空间分布结果(图 4(a)),该区域 O_3 浓度呈现中部和西南部较高,东部、南部和西北部相对较低的分布特征.高温日下 O_3_8h 平均浓度(图 4(b))高值区集中在广州(113.1μg/m^3)、佛山(111.9μg/m^3)、东莞(115.6μg/m^3);非高温日平均浓度(图 4(c))高值区则转移至东部和南部,且整体浓度显著低于高温日.与图 4(a)对比可知,O_3 污染发生时(图 4(d)和图 4(e))O_3_8h 平均浓度分布情况较图 4(a)平均浓度存在一定差异:高温日下 O_3_8h 浓度高值区集中在珠江三角洲西南部的江门 (203.2μg/m^3) 和中山 (199.3μg/m^3);非高温日下 O_3_8h 浓度高值区则集中于江门(187.9μg/m^3).从污染日数来看,高温日下佛山、东莞污染日数均超过 310d,广州、江门、中山也在 280d 以上;非高温日下江门污染日数最高(103d),其次为珠海(72d)、东莞(70d)和中山(63d). 珠江三角洲 O_3 污染空间分布差异显著,高温日中部和西南部污染较为突出(图 4(f)),非高温日则以西南部为主(图 4(g)),而从 O_3_8h 污染日浓度分布来看(图 4(d)和图 4(e)),江门、中山和东莞在高温日和非高温日均表现出较高的污染水平.

2.3 高温日与非高温日下 O_3 污染成因分析

2.3.1 气象要素分析 为了解高温日和非高温日下 O_3 污染的气象成因,图 5 给出高温日与非高温日的 O_3 污染及气象要素数值特征分布箱线图,可见,非高温污染日和高温污染日的 O_3 浓度接近,其污染主要发生 167~193μg/m^3(25~75 分位),较高温日(172~206μg/m^3)更加集中,但仍存在 200μg/m^3 以上污染的情况.从气象条件来看,非高温日 O_3 污染主要发生在日最高气温 25.0~27.2℃、相对湿度 44.9%~56.8%、10m 风速 1.7~2.6m/s、日照时数 7.7~9.8h、边界层高度 698~964m 的条件下.与高温污染日相比,非高温污染日的相对湿度更低(平均值偏低 6.0%、中位数偏低 6.5%)、日照时数更集中在高值区间(第 25 百分位数平均偏高 1.0h),而 10m 风速和边界层高度则是较为接近.进一步对比全时段和污染日的气象条件,发现高温日和非高温日污染发生时,均伴随着更高的日最高气温、更低的相对湿度、更小的风速、更长的日照时数和更高的边界层高度.除边界层高度外,其余气象条件均更有利于 O_3 浓度上升,而边界层高度的更高可能因为日照会使得大气垂直对流活动增强以及大气不稳定性变大,进而使得大气边界层高度升高更加明显[51].此外,从相对湿度和日照时数这两个气象要素的数据分布中位数来看,非高温污染日与全时段的距平(相对湿度:偏低 14.3%;日照时数:偏高 4.8h)大于高温污染日与全时段的距平(相对湿度:偏低 7.8%;日照时数:偏高 4.4h),这可能是即便在日最高气温相对较低的情况下,仍出现 O_3 污染的重要气象成因.

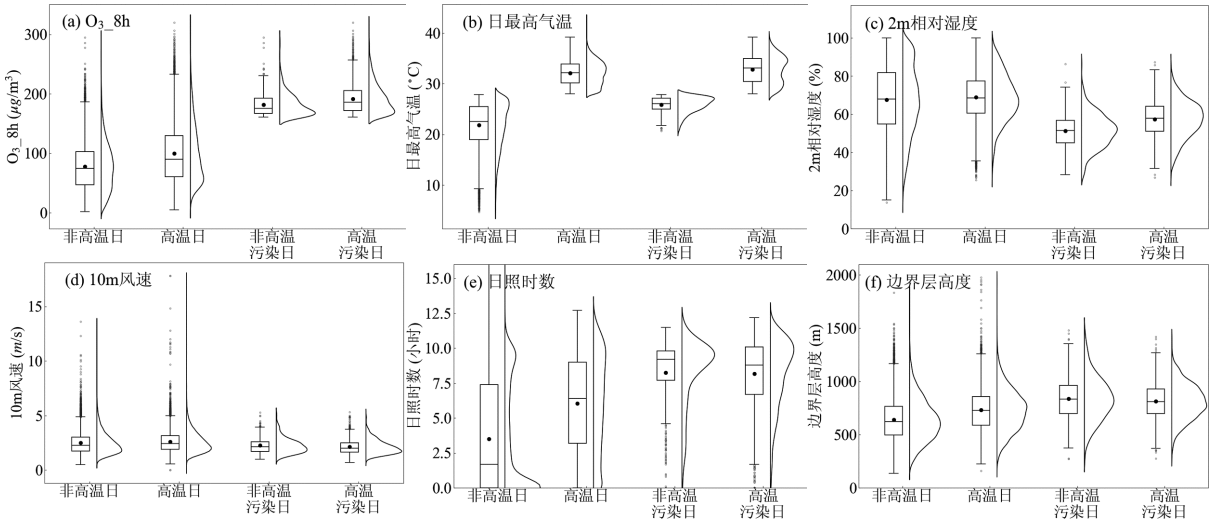


图 5 高温日与非高温日下 O_3_8h 及气象要素数值分布特征箱线图(横线为中位数,点为平均值)

Fig.5 Boxplots of O_3_8h and meteorological elements during high−temperature days vs. non−high−temperature days

进一步分析相对湿度和日照时数在高温日与非高温日下的空间分布特征(图 6).结果显示,全时段非高温日的各个城市相对湿度(65.8%~71.8%)略低于高温日(64.6%~74.4%),高值区主要集中在

南部地区和肇庆;非高温日的平均日照时数(3.0~3.9h)显著低于高温日(5.5~6.3h),高值区主要集中在珠江三角洲南部.污染日与全时段相比,各个城市相对湿度和日照时数均更有利于 O_3 生成.具体而言,与全时段相比,各城市高温污染日相对湿度偏低 9.2%~14.1%(平均偏低 11.1%),日照时数偏高 1.6~2.8h(平均偏高 2.1h);非高温日下气象要素的差异则更为显著,与全时段相比,各城市非高温污染日相对湿度偏低 8.5%~ 17.3%(平均偏低 15.5%),日照时数偏高 4.3~5.6h(平均偏高 4.9h).空间分布上,高相对湿度区主要集中在沿海地区,这与珠江三角洲地区的地理位置密切相关;而日照时数较高的区域主要分布在肇庆、惠州和珠海等污染相对较轻的城市[52-53],这可能是因为这些城市前体物较低,所以需要更加强的太阳辐射才能发生 O_3 污染.对比污染发生时非高温日和高温日的气象特征,各个城市非高温日的相对湿度更低,日照时数更高,表明在非高温日,气温相对较不利于 O_3 生成,如要使 O_3 浓度达到较高水平则需其他气象条件(相对湿度、日照)更加有利于 O_3 生成.

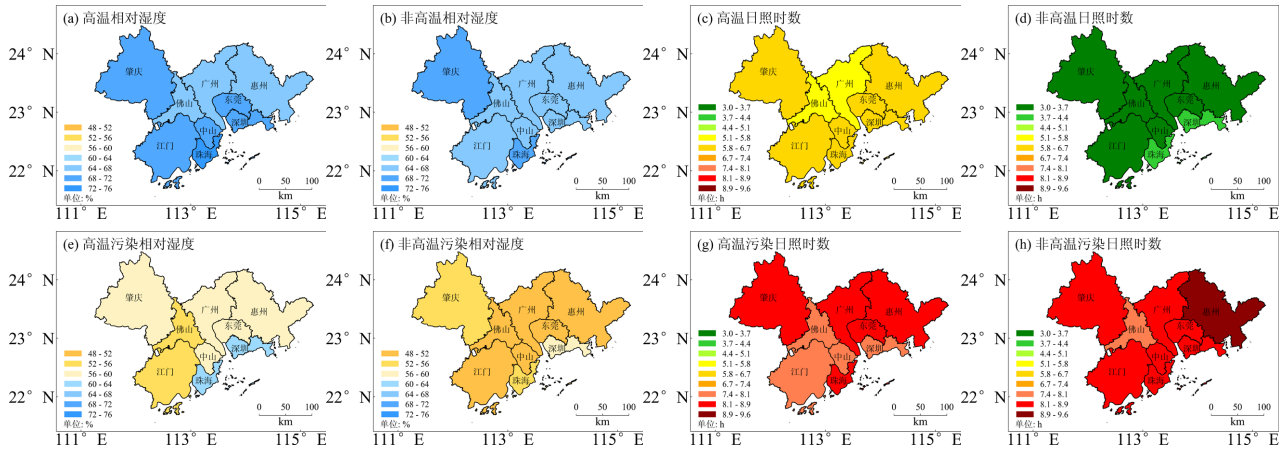


图 6　高温日与非高温日下日照时数和相对湿度空间分布

Fig.6　Spatial distribution of sunshine duration and relative humidity during high-temperature days vs. non-high-temperature days

审图号 GS(2020)4814

2.3.2　基于 SHAP 方法的特征贡献分析　从上述分析可知,高温日与非高温日下珠江三角洲 O_3_8h 及气象条件存在显著差异.为探讨气象要素和前体物 NO_2 对高温日与非高温日下 O_3_8h 的影响差异,基于 LightGBM 方法搭建 O_3 模型,并采用 SHAP 方法量化输入特征对 O_3 生成的贡献.通过 10 折交叉检验对模型精度进行评估,即将 2015~2023 年的数据集随机分成 10 个相同大小的子集,依次使用其中 1 个子集作为验证集,剩余 9 个子集作为训练集,将 10 次验证结果的平均值作为最终模型评估结果(表 1).结果表明,模型对 O_3_8h 模拟整体偏差接近0,无明显的系统性偏差;在全时段、非高温日和高温日下模型对 O_3_8h 变化节奏把握较好,相关系数均大于 0.88;高温日的均方根误差为 23.9μg/m^3,高于非高温日 18.2μg/m^3,模型精度整体较好,可基于模型预测进一步分析.

基于 O_3 模型结合 SHAP 方法,分析高温日和非高温日下气象要素和前体物 NO_2 浓度对 O_3_8h 的影响.结合图 4,选取 O_3 污染较严重的江门和东莞,分析高温日与非高温日下影响 O_3 生成特征的 SHAP 值(图 7).图中红点表征较高的特征值,蓝点表征较低的特征值,SHAP 值的正负性表征了特征对 O_3_8h 的影响方向:正值为正向贡献,负值为负向贡献;其绝对值大小反映了气象特征的贡献程度,值越大,对 O_3_8h 的影响越显著,图 7 自上而下的特征变量按照影响从大到小进行排列.

表 1　O_3 模型精度评估

Table 1　O_3 model accuracy evaluation

时间	偏差(μg/m³)	相关系数	均方根误差(μg/m³)
全时段	0.0	0.89	21.2
非高温日	0.4	0.89	18.2
高温日	−0.4	0.88	23.9

相对湿度是影响江门和东莞 O_3_8h 变化的最

重要的气象因子,重要性排名除在江门高温日排第 2 外(图 7(a),其余均排名第 1,在非高温日下贡献达到 20~30μg/m^3,高温日下可达 40~60μg/m^3.由图可见,相对湿度与 O_3_8h 为负相关,这是因为相对湿度是影响 O_3 生成的重要气象条件[54],高相对湿度促进关键前体物(如(NO_x 和 HO_x 自由基)转化成颗粒物相态,从而抑制 O_3 生成[55].非高温日下日最高气温和日照时数重要性仅次于相对湿度,说明非高温日下仍需气温达到一定高值才能促进 O_3 生成;相对于高温日,非高温日的日照时数重要性排名明显靠前,这表明非高温日下,较长时间的太阳辐射是 O_3 浓度升高的重要条件.无论是在高温日下,还是在非高温日下,表征污染扩散条件的 100m V 风均较为重要,该气象因子重要性排名均在前 4 名内.值得注意的是,高温日下来自海洋的偏南风对 O_3 是负贡献,但在非高温日下偏南风却对 O_3 是正贡献,这可能与珠江三角洲雨热同期的气候条件有关:由图 3 分析可知,高温日主要出现在 5~10 月,这时间段与珠江三角洲的湿季(4~9 月)高度重合,强盛的西南季风有利于带来充沛的降水,从而使得 O_3 浓度下降;非高温日主要发生在 11 月~次年 4 月,这时间段则与珠江三角洲的干季(10 月~次年 3 月)高度重合,降水显著偏少,且非高温日下弱偏南风往往对应较高的气温而无明显降水,从而更有利于 O_3 的生成(图 7(b)和图 7(d)).在非高温日前体物 NO_2 重要性明显低于高温日,仅贡献约 15μg/m³,这是由于冬季珠江三角洲城市主要以 VOCs 控制区为主,夏季则以协同控制区和 NO_x 控制区为主[56],因此在非高温日 NO_2 对 O_3 的重要性更小.这一现象表明非高温日 O_3 污染可能更易受 VOCs 主导,但受限于当前 VOCs 观测数据的缺失,相关机制仍需后续结合相关监测数据进行深入验证.

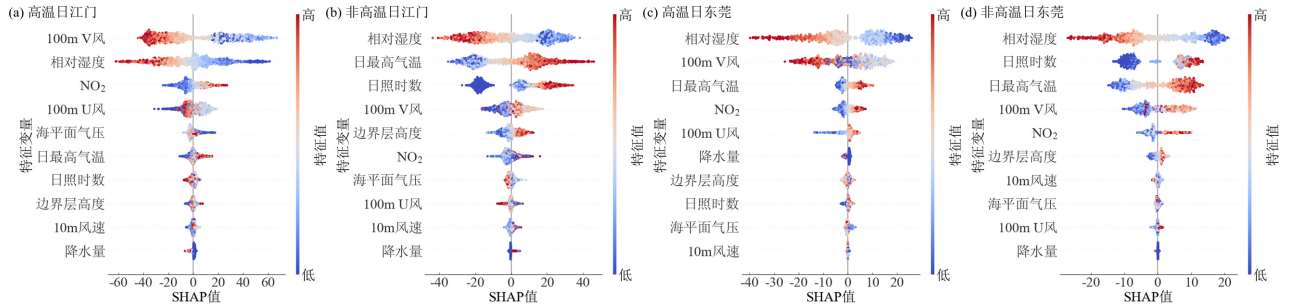


图 7 高温日与非高温日下气象要素对 O_3_8h 影响的 SHAP 摘要图

Fig.7 SHAP summary plot of meteorological elements affecting O_3_8h formation during high-temperature days vs. non-high-temperature days

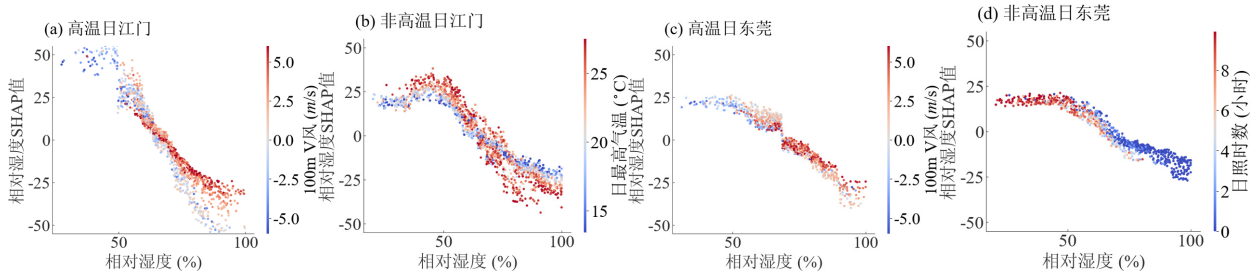


图 8 高贡献气象特征对江门、东莞 O_3_8h 的交互作用

Fig.8 Interaction effects of high-contribution meteorological features on O_3_8h in Jiangmen and Dongguan

为了更深入地探究高温日和非高温日下主导要素对 O_3 浓度的影响差异,本研究采用 SHAP 依赖图分析了排名前 2 位变量对 O_3 浓度的主要影响及其之间的交互作用下的影响(图 8).在高温日下,O_3_8h 与相对湿度为负相关,表明低相对湿度有利于 O_3_8h 上升,其对 O_3 为正负贡献的分界值在 65%左右.在相对湿度小于 65%时,江门和东莞大部分时间以较为干燥的偏北风为主(100m V 风<0m/s),一方面有利于 O_3 的生成,另一方面此时珠江三角洲位于下风向,更容易受到北方大陆的污染物输送和堆积,可

为 O_3_8h 上升提供高达 40~60μg/m^3 正贡献.当相对湿度大于 65%时,江门和东莞大多以偏南风为主(100m V 风>0m/s),当相对湿度大于 80%时,江门和东莞在静小风(风速<2m/s,浅色的红点和蓝点)情况下更有利于 O_3_8h 浓度下降.

在非高温日下,江门和东莞的 O_3_8h 与相对湿度同样为非线性负相关关系.由图 8(b)可见,在相对湿度大于 65%时,对 O_3_8h 为负贡献,最高可达−40μg/m^3,小于65%时,对 O_3 则以正贡献为主,最高正贡献为 30~40μg/m^3,但在相对湿度小于 50%时,与 O_3 呈一定正相关关系.结合日最高气温的交互作用,可见相对湿度大于 65%时,气温越高越有利于 O_3_8h 浓度上升,而在相对湿度大于 65%时,气温越高反而导致对 O_3_8h 浓度负贡献越大.根据图 8(d)可见相对湿度小于 65%时通常伴随着高日照时数,二者协同促进 O_3_8h 上升;但在较高湿度(>65%)时,相同湿度水平下更长的日照时数会增强对 O_3_8h 的负贡献,这一现象与图 8(b)的情况类似,这是因为在非高温日下,相对较高的气温和日照时数会使边界层高度抬高[57],这使得地表前体物和 O_3 向上层输送,进而导致近地面 O_3 浓度降低[58].

3　结论

3.1　2015~2023 年珠江三角洲高温日(≥28℃)下 O_3 污染发生概率超过 10.0%,非高温日(<28℃)下亦有一定概率发生 O_3 污染,污染城市数累计为 430 个,占总污染城市数的 17.2%.在不同气温区间下,珠江三角洲 O_3 污染空间分布差异显著,高温日中部和西南部污染较为突出,非高温日则以西南部为主.从具体城市来看,江门和东莞在高温日和非高温日的 O_3 浓度和 O_3 污染城市数均较高.

3.2　非高温日下 O_3 污染主要发生在日最高气温 25.0~27.2℃、相对湿度 44.9%~56.8%、日照时数 7.7~9.8h 及边界层高度 698~964m 的条件下.当 O_3 污染发生时,与高温日相比,非高温日下相对湿度平均偏低 6.0%、中位数偏高 6.5%,日照时数更集中在高值区间,第 25 百分位数平均偏高 1.0h,而风速和边界层高度相近,表明在非高温日,温度相对较不利于 O_3 生成,需相对湿度、日照等 O_3 生成条件更加有利才能使 O_3 浓度达到污染水平.

3.3　利用 LightGBM 方法分别搭建高温日和非高温日下 O_3 模型,经评估模型对 O_3 浓度模拟精度较高,相关系数均大于 0.88,均方根误差均小于 24μg/m^3.在 O_3 模型基础上基于 SHAP 方法分析贡献 O_3 浓度的重要特征,发现相对湿度是影响珠江三角洲地区 O_3 日浓度变化最重要的气象因子,与 O_3 浓度呈非线性负相关,高温日和非高温日下相对湿度对 O_3_8h 浓度的贡献最高可达 30 和 60μg/m^3.非高温日下低相对湿度(<65%)通常伴随高日照时数,有利于 O_3 生成,而高相对湿度(>65%)则抑制 O_3 生成.高温日下偏南风对 O_3 的影响是负贡献,但在非高温日下则为正贡献.此外,非高温日下日照时数的影响显著高于高温日,表明充足太阳辐射是非高温情况下发生 O_3 污染的关键条件.

参考文献:

[1] Ou, J M, Huang, Z J, Klimont, Z, et al. Role of export industries on ozone pollution and its precursors in China [J]. Nature Communications, 2020,11(1):5492.

[2] 程育恺,戴海夏,张蕴晖,等.长三角地区 2017～2020 年臭氧浓度时空分布与人群健康效益评估 [J]. 环境科学, 2023,44(2):719−729.
Cheng, Y K, Dai, H X, Zhang, Y H, et al. Spatial and temporal distribution characteristics of ozone concentration and population health benefit assessment in the Yangtze River Delta Region from 2017 to 2020 [J]. Environmental Science, 2023,44(2):719−729.

[3] Han, T, Hu, X M, Zhang, J, et al. Rebuilding high−quality near−surface ozone data based on the combination of WRF−Chem model with a machine learning method to better estimate its impact on crop yields in the Beijing−Tianjin−Hebei region from 2014 to 2019 [J]. Environmental Pollution, 2023,336.

[4] 王钦艺,黄　玫,王昭生,等.臭氧污染对亚热带森林生产力和生物量的影响——以鼎湖山为例 [J]. 生态学报, 2023,43(5):1832−1842.
Wang, Q Y, Huang, M, Wang, Z S, et al. Impact of ozone pollution on productivity and biomass Sof subtropical forests: A case study in Dinghushan [J]. Acta Ecologica Sinica, 2023,43(5):1832−1842.

[5] Stevenson, D S, Young, P J, Naik, V, et al. Tropospheric ozone changes, radiative forcing and attribution to emissions in the atmospheric chemistry and climate model intercomparison project (ACCMIP) [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013,13(6):3063−3085.

[6] Zhang, J, Huang, Y, Zhou, N, et al. Contribution of anthropogenic emission changes to the evolution of $PM_{2.5}$ concentrations and composition in the Pearl River Delta during the period of 2006-2020 [J]. Atmospheric Environment, 2024,318:120228.

[7] Wang, T, Xue, L, Brimblecombe, P, et al. Ozone pollution in China: A review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects [J]. Science of the Total Environment, 2017, 575:1582−1596.

[8] Zheng, H, Kong, S, Seo, J, et al. Achievements and challenges in improving air quality in China: Analysis of the long−term trends from 2014 to 2022 [J]. Environment International, 2024,183:108361.

[9] 李光耀,陈　强,郭文凯,等.基于正交试验的臭氧及其前体物的非线性响应及控制方案 [J]. 环境科学, 2021,42(2):616−623.
Li, G Y, Chen, Q, Guo, W K, et al. Nonlinear response characteristics

and control scheme for ozone and its precursors based on orthogonal experimental methods [J]. Environmental Science, 2021,42(2):616-623.

[10] 陆克定,张远航,苏 杭,等.珠江三角洲夏季臭氧区域污染及其控制因素分析 [J]. 中国科学:化学, 2010,40(4):407-420.
Lu, K D, Zhang, Y H, Su, H, et al. Regional ozone pollution and key controlling factors of photochemical ozone production in Pearl River Delta during summer time [J]. Scientia Sinica Chimica, 2010,40(4):407-420.

[11] 伍永康,陈伟华,颜丰华,等.不同传输通道下珠江三角洲臭氧与前体物非线性响应关系 [J]. 环境科学, 2022,43(1):160-169.
Wu, Y K, Chen, W H, Yan, F H, et al. Nonlinear response relationship netween ozone and precursor emissionsin the Pearl River Delta Region under different transmission channels [J]. Environmental Science, 2022,43(1):160-169.

[12] Ouyang, S S, Deng, T, Liu, R, et al. Impact of a subtropical high and a typhoon on a severe ozone pollution episode in the Pearl River Delta, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(16):10751-10767.

[13] Li, T Y, Wu, N G, Chen, J Y, et al. Vertical exchange and cross-regional transport of lower-tropospheric ozone over Hong Kong [J]. Atmospheric Research, 2023,292.

[14] He, Y P, Li, L, Wang, H L, et al. A cold front induced co-occurrence of O_3 and $PM_{2.5}$ pollution in a Pearl River Delta city: Temporal variation, vertical structure, and mechanism [J]. Environmental Pollution, 2022,306.

[15] 洪莹莹,翁佳烽,谭浩波,等.珠江三角洲秋季典型 O_3 污染的气象条件及贡献量化 [J]. 中国环境科学, 2021,41(1):1-10.
Hong, Y Y, Weng, J F, Tan, H B, et al. Meteorological conditions and contribution quantification of typical ozone pollution during autumn in Pearl River Delta [J]. China Environmental Science, 2021,41(1):1-10.

[16] 薛 鑫,陈 镇,邬双双,等.气象条件对珠江三角洲秋季地表臭氧年变化及趋势的影响 [J]. 环境科学, 2024,45(7):3808-3814.
Xue, X, Chen, Z, Wu, S S, et al. Meteorological influences on annual variation and trend of autumn surface ozone in the Pearl River Delta [J]. Environmental Science, 2024,45(7):3808-3814.

[17] 赵 伟,吕梦瑶,卢 清,等.热带气旋对珠江三角洲秋季臭氧污染的影响 [J]. 环境科学, 2022,43(6):2957-2965.
Zhao, W, Lv, M Y, Lu, Q, et al. Effects of tropical cyclones on ozone pollution in the Pearl River Delta in autumn [J]. Environmental Science, 2022,43(6):2957-2965.

[18] Li, Y, Zhao, X J, Deng, X J, et al. The impact of peripheral circulation characteristics of typhoon on sustained ozone episodes over the Pearl River Delta region, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(6):3861-3873.

[19] 孙启斌,冼星河,黄朝盈,等.东莞市臭氧污染及扩散输送特征的客观天气分型研究 [J]. 环境科学学报, 2025,45(1):436-446.
Sun, Q B, Xian, X H, Huang, C, et al. Objective synoptic pattern classification study on ozone pollution and diffusion transport characteristics in Dongguan City [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2025,45(1):436-446.

[20] Wang, H L, Wu, K, Liu, Y M, et al. Role of heat wave-induced biogenic VOC enhancements in persistent ozone episodes formation in Pearl River Delta [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2021,126(12):e2020JD034317.

[21] 李婷苑,陈靖扬,翁佳烽,等.广东省臭氧污染天气型及其变化特征 [J]. 中国环境科学, 2022,42(5):2015-2024.
Li, T Y, Chen, J Y, Weng, J F, et al. Ozone pollution synoptic patterns and their variation characteristics in Guangdong Province [J]. China Environmental Science, 2022,42(5):2015-2024.

[22] Qi, C N, Wang, P Y, Yang, Y, et al. Impacts of tropical cyclone-heat wave compound events on surface ozone in eastern China: comparison between the Yangtze River and Pearl River deltas [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2024,24(20):11775-11789.

[23] 黄 俊,廖碧婷,吴 兑,等.广州近地面臭氧浓度特征及气象影响分析 [J]. 环境科学学报, 2018,38(1):23-31.
Huang, J, Liao, B T, Wu, D, et al. Guangzhou ground level ozone concentration characteristics and associated meteorological factors [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018,38(1):23-31.

[24] Bu, Q L, Hong, Y Y, Tan, H B, et al. The modulation of meteorological parameters on surface $PM_{2.5}$ and O_3 concentrations in Guangzhou, China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2021,21(1):200084.

[25] 麦健华,于玲玲,邓 涛,等.海陆风对环珠江口地区臭氧污染的影响 [J]. 中国环境科学, 2024:1-18.
Mai, J H, Yu, L L, Deng, T, et al. Impact of sea-land breezes on the ozone pollution over the Pearl River Estuary [J]. China Environmental Science, 2024:1-18.

[26] Cao, T H, Wang, H C, Li, L, et al. Fast spreading of surface ozone in both temporal and spatial scale in Pearl River Delta [J]. Journal of Environmental Sciences, 2024,137:540-552.

[27] 陈 辰,洪莹莹,谭浩波,等.佛山臭氧浓度预报方程的建立与应用 [J]. 环境科学, 2022,43(10):4316-4326.
Chen, C, Hong, Y Y, Tan, H B, et al. Establishment and application of Foshan ozone concentration forecast equation [J]. 2022,43(10):4316-4326.

[28] 李婷苑,汤 静,沈 劲,等.基于广义相加模型的广东省典型城市臭氧浓度气象影响因素分析 [J]. 环境科学, 2025,46(2):746-754.
Li, T Y, Tang, J, Shen, J, et al. Impact of meteorological factors on ozone concentration in four typical cities of Guangdong based on generalized additive model [J]. Environmental Science, 2025,46(2):746-754.

[29] Wang, N, Huang, X, Xu, J W, et al. Typhoon-boosted biogenic emission aggravates cross-regional ozone pollution in China [J]. Science advances, 2022,8(2):eabl6166.

[30] Wu, J, Zhang, Q, Wang, L X, et al. Seasonal biogenic volatile organic compound emission factors in temperate tree species: Implications for emission estimation and ozone formation [J]. Environmental Pollution, 2024,361.

[31] Wang, P Y, Yang, Y, Li, H M, et al. North China Plain as a hot spot of ozone pollution exacerbated by extreme high temperatures [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(7):4705-4719.

[32] Lu, X, Zhang, L, Chen, Y F, et al. Exploring 2016-2017 surface ozone pollution over China: source contributions and meteorological influences [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019,19(12):8339-8361.

[33] 周婕萍,袁 斌,彭钰雯,等.珠江三角洲冬季臭氧污染成因分析——以 2020 年 1 月一次污染过程为例 [J]. 中国环境科学, 2023,43(5):2198-2209.
Zhou, J P, Yuan, B, Peng, Y W, et al. Causes of ozone pollution in the Pearl River Delta in Winter – A case study of pollution process in January 2020 [J]. China Environmental Science, 2023,43(5):2198-2209.

[34] 麦健华,于玲玲,邓雪娇,等.珠江三角洲西部一次冬季臭氧污染过程分析 [J]. 中国环境科学, 2023,43(12):6235-6245.
Mai, J H, Yu, L L, Deng, X J, et al. Analysis of a winter ozone pollution process in the western Pearl River Delta [J]. China

Environmental Science, 2023,43(12):6235-6245.

[35] 李婷苑,陈靖扬,龚　宇,等.2022 年广东省冬季一次臭氧污染过程的气象成因及潜在源区分析 [J]. 环境科学, 2023,44(7):3695-3704.
Li, T Y, Chen, J Y, Gong, Y, et al. Meteorological formation mechanisms and potential sources of an ozone pollution process in winter of 2022 in Guangdong Province [J]. Environmental Science, 2023,44(7):3695-3704.

[36] 任芝花,张志富,孙　超,等.全国自动气象站实时观测资料三级质量控制系统研制 [J]. 气象, 2015,41(10):1268-1277.
Ren, Z H, Zhang, Z F, Sun, C, et al. Development of three-step quality control system of real-time observation data from AWS in China [J]. Meteorological Monthly, 2015,41(10):1268-1277.

[37] GB 3095-2012　环境空气质量标准 [S].
GB 3095-2012　Ambient air quality standards [S].

[38] 任至涵,倪长健,花瑞阳,等.成都 O_3 逐日污染潜势关键时段优选的 GAM 模型 [J]. 中国环境科学, 2021,41(11):5079-5085.
Ren, Z H, Ni, C J, Yang, H R, et al. Optimization of the key period of daily ozone pollution potential in Chengdu based on Generalized Additive Model [J]. China Environmental Science, 2021,41(11): 5079-5085.

[39] 齐艳杰,于世杰,杨　健,等.河南省臭氧污染特征与气象因子影响分析 [J]. 环境科学, 2020,41(2):587-599.
Qi, Y J, Yu, S J, Yang, J, et al. Analysis of characteristics and meteorological influence factors of ozone pollution in Henan Province [J]. Environmental Science, 2020,41(2):587-599.

[40] 李　磊,何钰清,兰紫娟,等.深圳臭氧污染的环境气象特征分析 [J]. 环境科学学报, 2023,43(1):109-118.
Li, L, He, Y Q, Lan, Z J, et al. Environmental meteorological characteristics of ozone pollution in Shenzhen [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2023,43(1):109-118.

[41] HJ 633-2012　环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行) [S].
HJ 633-2012　Technical regulation on ambient air quality index (on trial) [S].

[42] Chen, X, Wang, N, Wang, G, et al. The influence of synoptic weather patterns on spatiotemporal characteristics of ozone pollution across Pearl River Delta of Southern China [J]. Journal of Geophysical Research-Atmospheres, 2022,127(21).

[43] Guolin, K, Qi, M, Thomas, F, et al. LightGBM: a highly efficient gradient boosting decision tree [Z]. Proceedings of the 31st international conference on neural information processing systems. Long Beach, California, USA; Curran Associates Inc. 2017:3149-3157

[44] Zhang, C W, Xie, Y M, Shao, M, et al. Application of machine learning to analyze ozone sensitivity to influencing factors: A case study in Nanjing, China [J]. Science of the Total Environment, 2024,929.

[45] 朱珈莹,安俊琳,冯悦政,等.基于轻量级梯度提升机的南京大气臭氧浓度预测 [J]. 环境科学, 2023,44(7):3685-3694.
Zhu, J Y, An, J L, Feng, Y Z, et al. Atmospheric ozone concentration prediction in Nanjing based on LightGBM [J]. Environmental Science, 2023,44(7):3685-3694.

[46] 潘梦瑶,任　瑛,王思源,等.基于梯度提升算法和 SHAP 的石家庄 $PM_{2.5}$ 和臭氧浓度预测及影响因素分析 [J]. 环境科学学报, 2024, 44(7):402-409.
Pan, M Y, Ren, Y, Wang, S Y, et al. Prediction of $PM_{2.5}$ and ozone concentration in Shijiazhuang and analysis of influencing factors based on gradient boosting algorithm and SHAP [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2024,44(7):402-409.

[47] Shapley L S. A value for n-person games [M]. 1953.

[48] Lundberg, S M, Lee, S-I. A unified approach to interpreting model predictions [Z]. Proceedings of the 31st international conference on neural information processing systems. Long Beach, California, USA; Curran Associates Inc. 2017:4768-4777

[49] 伍红雨,邹　燕,刘　尉.广东区域性暴雨过程的定量化评估及气候特征 [J]. 应用气象学报, 2019,30(2):233-244.
Wu, H Y, Zou, Y, Liu, W. Quantitative assessment of regional heavy rainfall process in Guangdong and its climatological characteristics[J]. Journal of Applied Meteorological Science, 2019,30(2):233-244.

[50] Zhou, D, Ding, A, Mao, H, et al. Impacts of the East Asian monsoon on lower tropospheric ozone over coastal South China [J]. Environmental Research Letters, 2013,8(4):044011.

[51] 田　野,刘旭林,于永涛,等.北京城区大气边界层高度的反演研究 [J]. 气象科技, 2022,50(1):9-20.
Tian, Y, Liu, X L, Yu, Y T. Inversion of atmospheric boundary layer height in Beijing urban area [J]. Meteorological Science and Technology, 2022,50(1):9-20.

[52] Zhou, B N, Guo, H, Zeren, Y, et al. An observational constraint of VOC emissions for air quality modeling study in the Pearl River Delta Region [J]. Journal of Geophysical Research-Atmospheres, 2023, 128(11):e2022JD038122.

[53] 赵　伟,高　博,卢　清,等.2006~2019 年珠江三角洲地区臭氧污染趋势 [J]. 环境科学, 2021,42(1):97-105.
Wei, Z, Gao, B, Lu, Q. Ozone pollution trend in the Pearl iver Delta egion during 2006~2019 [J]. Environmental Science, 2021,42(1): 97-105.

[54] Han, H, Liu, J, Shu, L, et al. Local and synoptic meteorological influences on daily variability in summertime surface ozone in eastern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020,20(1):203-222.

[55] Li, M, Yu, S, Chen, X, et al. Large scale control of surface ozone by relative humidity observed during warm seasons in China [J]. Environmental Chemistry Letters, 2021,19:3981-3989.

[56] 梁艳妮,王兴会,亓淑旻,等.基于 OMI 卫星与地面观测数据的广东省臭氧生成敏感性分析 [J]. 环境科学, 2024,45(11):6248-6254.
Liang, Y N, Wang, X H, Qi, S M, et al. Sensitivity analysis of ozone generation in Guangdong Province based on OMI satellite and ground observation data [J]. Environmental Science, 2024,45(11):6248-6254.

[57] 白嘉怡,魏　伟,张宏昇,等.基于机器学习的大气边界层高度预测方法研究 [J]. 大气科学学报, 2024:1-15.
Bai, J H, Wei, W, Zhang, H S. Research on planetary boundary layer height prediction method based on machine learning [J]. Transactions of Atmospheric Sciences 2024:1-15.

[58] Zhang, C Z, Jiang, Z J, Liu, M J, et al. Relationship between summer time near-surface ozone concentration and planetary boundary layer height in Beijing [J]. Atmospheric Research, 2023,293:106892.

作者简介：陈靖扬(1992-),男,广东广州人,工程师,硕士,主要从事大气环境研究.发表论文 10 余篇. chenjy@gd121.cn.