

龙凌波,余倩楠,孟紫琪,等.中国沿海地区大气污染特征及其聚类分析[J].环境科学研究,2018,31(12):-.

LONG Lingbo, SHE Qiannan, MENG Ziqi, et al. Characteristics and cluster analysis of air pollution in coastal areas of China[J]. Research of Environmental Sciences, 2018, 31(12):-.

中国沿海地区大气污染特征及其聚类分析

龙凌波^{1,2}, 余倩楠^{1,2}, 孟紫琪^{1,2}, 刘敏^{1,2,3*}, 岳祝^{1,2}, 闫媛媛¹

1.华东师范大学生态与环境科学学院, 上海 200241

2.华东师范大学, 上海市城市化生态过程与生态恢复重点实验室, 上海 200241

3.崇明生态研究院, 上海 200062

摘要: 为识别我国沿海地区的大气污染分布特征, 基于2015—2016年我国沿海省份115个城市 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 、 $\rho(\text{PM}_{10})$ 、 $\rho(\text{NO}_2)$ 、 $\rho(\text{O}_3)$ 、 $\rho(\text{CO})$ 和 $\rho(\text{SO}_2)$ 监测数据, 在分析其时空分布特征的基础上, 结合主成分分析和AIC(改进赤池信息准则)开展我国沿海地区大气污染聚类分析研究. 结果表明: 我国沿海地区颗粒物污染严重, 其中70%和54%的城市未达到GB 3095—2012《环境空气质量标准》 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 二级标准限值, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 在空间上以浙江省金华市为界呈“北高南低”、金华市以北地区“西高东低”的分布特征; 环渤海带及长三角地区 $\rho(\text{O}_3)$ 处于相对较高水平, 山东省中部 $\rho(\text{SO}_2)$ 突出, 最高值达 $71.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. 根据6种大气污染物监测值, 可将115个城市聚为3类: 类I包括河北省南部和山东省西部在内的21个城市, 空间分布连续且相对集中, 受本地源和扩散条件的影响, 各项大气污染物质量浓度均处于较高水平; 类II包括辽宁省、山东省东部和长三角等地区的42个城市, 各项大气污染物质量浓度较类I有所降低, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 降低(比类I低34.2%)明显, 更多表现为受工业和散煤燃烧影响的 SO_2 污染, 和受海运船舶和陆路交通源影响的 NO_2 污染; 类III包括福建省、广东省和广西省沿海一带的52个城市, 大气污染物质量浓度相对较低, 空气质量较优, 受季风和外来源影响的秋季 O_3 污染特征明显. 3类城市 $\rho(\text{O}_3)$ 平均值相近但季节变化有所差异, 类I和类II $\rho(\text{O}_3)$ 峰值均出现在6月, 类I $\rho(\text{O}_3)$ 季节性差异更为显著, 类III峰值出现在10月, 全年变幅相对较小. 研究显示, 我国沿海地区山东省西部、江苏省北部与京津冀南部呈较为相似的污染特征, 广西省柳州市与周边城市呈不同聚类特征, $\rho(\text{PM})$ 和 $\rho(\text{SO}_2)$ 相对较高, 为大气污染热点.

关键词: 大气污染; 空间分异; 聚类分析; 沿海地区

中图分类号: X51 文章编号: 1001-6929(2018)12-0000-10

文献标志码: A DOI: 10.13198/j.issn.1001-6929.2018.06.15

Characteristics and Cluster Analysis of Air Pollution in Coastal Areas of China

LONG Lingbo^{1,2}, SHE Qiannan^{1,2}, MENG Ziqi^{1,2}, LIU Min^{1,2,3*}, YUE Zhu^{1,2}, YAN Yuanyuan¹

1.School of Ecological and Environmental Sciences, East China Normal University, Shanghai 200241, China

2.Shanghai Key Laboratory for Urban Ecological Processes and Eco-Restoration, East China Normal University, Shanghai 200241, China

3.Institute of Eco-Chongming, Shanghai 200062, China

Abstract: To identify the distribution characteristics of air pollution in the coastal areas of China, this paper analyzed the spatial-temporal variation of six criteria air pollutants ($\text{PM}_{2.5}$, PM_{10} , NO_2 , O_3 , CO and SO_2) based on the observations from 115 cities in the coastal provinces of China during 2015-2016. Cluster analysis coupled with principal component analysis (PCA) and improved Akaike information criterion (AIC) were applied to explore the regional pollution situations. The results showed that the coastal areas of China was seriously polluted by particulate matter (PM), with 70% cities for $\text{PM}_{2.5}$ and 54% cities for PM_{10} fell below the national secondary standard, according to the *National Ambient Air Quality Standard*. For $\rho(\text{PM}_{2.5})$, it demonstrated obvious spatial variations between the south and north, with Jinhua City in Zhejiang Province as a demarcation belt. The heavily polluted areas appeared in northern areas in which it showed an increasing trend from east to west. The O_3 concentrations around the Bohai Sea and Yangtze River Delta were at relatively high

收稿日期: 2018-03-05 修订日期: 2018-05-15

作者简介: 龙凌波(1994-), 男, 湖北咸宁人, lird_long@126.com.

* 责任作者, 刘敏(1983-), 女, 湖南湘潭人, 副教授, 博士, 主要从事全球变化与大气环境研究, mliu@re.ecnu.edu.cn

基金项目: 国家重点研发计划重点专项(No.2017YFC0505800, No.2016YFC0500204); 上海市“科技创新行动计划”(No.17295810603)

Supported by National Key Research and Development Program of China (No.2017YFC0505800, No.2016YFC0500204); Scientific Research Program of Shanghai Science and Technology Commission, China (No.17295810603)

level, while the highest SO_2 concentration ($71.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) was located in middle Shandong Province. Furthermore, according to the observed six criteria air pollutants, all the 115 cities could be clustered into 3 categories. Cluster I included 21 cities in south Hebei and west Shandong provinces. The spatial distribution for air pollutants were continuous and relatively centralized with the highest pollutant concentrations and the worst air qualities due to the local emission and diffusion conditions. Cluster II included 42 cities which were mainly distributed in Liaoning province and the Yangtze River Delta. It showed medium air qualities with considerable SO_2 and NO_2 pollution due to coal burning, plants emission as well as vehicle and shipping emission. The $\text{PM}_{2.5}$ concentration in Cluster II was 34.2% lower that of Cluster I. Cluster III included 52 cities with the best air quality and were mainly distributed in the southeast coastal areas of China with O_3 pollution due to monsoon and outside sources. Moreover, the average O_3 concentrations among the three clusters were similar but the seasonal variations were different. Specifically, Clusters I and II were characterized with the apparent seasonal variation and the highest values appeared in June. For Cluster III, there was no obvious seasonal variations with the highest values in October. In particular, western Shandong and northern Jiangsu provinces showed similar pollution characteristics to southern Beijing-Tianjin-Hebei region and Liuzhou was one of the air pollution hot spots in the Guangxi Zhuang Autonomous Region.

Keywords: air pollution; spatial variation; cluster analysis; coastal area

近年来,我国经济高速发展与城市化进程的不断加快,导致工厂废气排放增加、机动车保有量大幅上升,国内频繁发生高强度的霾污染事件,大气污染问题凸显,并逐渐转变为复合型污染^[1]. 大气污染不仅带来了巨大的经济损失与人体健康威胁^[2],亦会影响陆-气界面水分、能量等的输送与交换,进而对气候变化产生一定影响^[3],引起国内外广泛关注^[4-5].

传统大气污染研究多采用卫星遥感反演数据探究大气污染的变化与分布规律,但卫星数据更新时间较长,难以反映不同时间尺度上的空气污染变化^[6],而空气质量定位监测数据能够较好反映污染物时间序列变化^[7]. 目前国内外利用定位监测数据的研究多集中在大气污染源解析,通过构建模型识别城市大气污染特征、污染物构成与来源等^[8-9];或将大气污染时序变化与其他因素结合起来,如结合医院时序就诊人数探究大气污染暴露对人体健康的影响^[10];或结合气象因素探究大气污染变化与气象因子的关系^[11]、模拟和预测大气污染迁移路径^[12]等. 在研究区域上,多集中于研究单个城市或多个离散城市^[13],或京津冀、长三角等区域性城市群^[14-15]. 在较大尺度上,如海岸带及全国地区的研究则多集中于特定单一污染物^[16],或选择部分城市群对多种监测污染物进行分析^[1],而对于沿海地区的研究通常未将辽宁省和广西省等地纳入考虑^[17].

沿海地区是我国经济贸易、海军军事和生态保护的重要地带^[18],亦是“21 世纪海上丝绸之路”的重要通道. 该区域经济最为发达、贸易往来频繁、人口相对稠密,其大气污染带来的健康影响及经济损失值得关注. 因此,该研究以我国沿海省市的所有城市(不含港澳台)为研究区域,以 2015—2016 年 6 种主要大气污染物逐小时浓度数据为研究对象,分析我国沿海

地区大气污染的时间变化特征与空间分异特征. 在此基础上,采用 k -mean (k -均值) 算法探究不同城市间大气污染的空间分异特征,识别区域污染分布特征及潜在影响因素,以期为识别我国沿海地区的大气污染分布特征及大气污染区域联防联控提供一定依据.

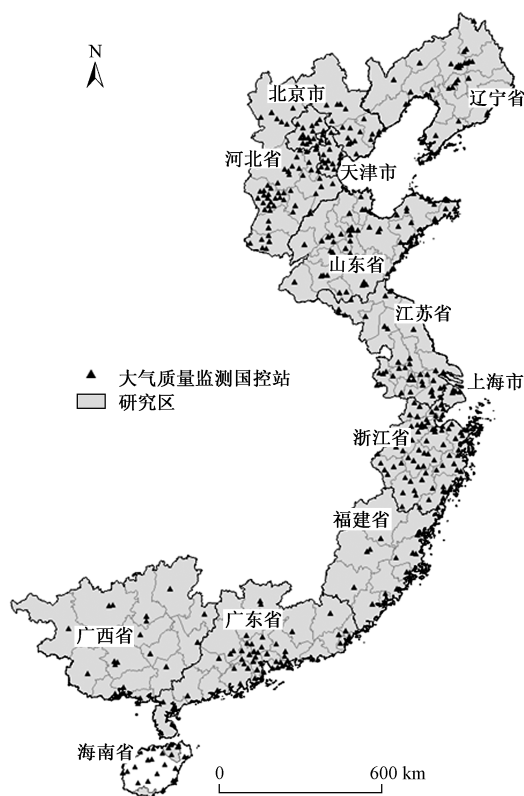
1 数据与方法

1.1 研究区域

研究范围(见图 1)为我国沿海 12 个省(直辖市)(海南省部分区域由于数据缺乏未包括在内),总计 115 个地区(地级市/直辖市),总面积为 $131.8 \times 10^4 \text{ km}^2$, 占国土面积 13.7%. 该区域以平原为主,包括东北平原、华北平原及长江中下游平原的部分地区,辽宁省东部、河北省北部、浙江省南部及福建省和广东省部分地区为山地. 截至 2016 年,该地区总人口为 6.2×10^8 人,占国内总人口 44.5%. 作为改革开放的先锋地区,我国沿海地区整体经济水平较为发达,2016 年 GDP 达 44.4×10^{12} 元,占国内总值的 59.7%^[19].

1.2 数据来源

研究数据来源于城市空气质量实时发布平台(<http://106.37.208.233:20035>)提供的全国环境空气质量自动监测系统监测的 6 项大气污染物 [$\rho(\text{PM}_{2.5})$ 、 $\rho(\text{PM}_{10})$ 、 $\rho(\text{NO}_2)$ 、 $\rho(\text{O}_3)$ 、 $\rho(\text{CO})$ 和 $\rho(\text{SO}_2)$] 监测数据. 其中 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 和 $\rho(\text{PM}_{10})$ 采用微量振荡天平法测定, $\rho(\text{NO}_2)$ 、 $\rho(\text{O}_3)$ 和 $\rho(\text{SO}_2)$ 采用差量吸收光谱法测定, $\rho(\text{CO})$ 则采用非分散红外吸收法测定. 除 $\rho(\text{CO})$ 单位为 mg/m^3 以外,其余 5 项污染物质量浓度单位均为 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. 监测站采样遵循 HJ/T 193—2005《环境空气质量自动监测技术规范》及 HJ 193—2013《环境空气气态污染物(SO_2 、 NO_2 、 O_3 、 CO)连续自动监测系统安装验收技术规范》,监测



注:底图为自国家测绘地理信息局(<http://bzdt.nasg.gov.cn>)下载的《中国地图 1:2200 万 16 开 无邻国线划二》。审图号:GS(2016) 2885 号。

图 1 我国大陆沿海地区大气污染物国控监测站分布

Fig.1 Geographical location of national air quality monitoring stations in coastal areas of China

仪器全年 365 d(闰年 366 d)连续运行,异常值的判断及处理符合 HJ 630—2011《环境监测质量管理技术导则》。污染物质量浓度数据有效性遵循 GB 3095—2012《环境空气质量标准》,即有效的污染物质量浓度年均值数据满足每年至少有 324 个日均值且每月至少有 27 个日均值(2 月至少 25 个日均值), $\rho(\text{SO}_2)$ 、 $\rho(\text{NO}_2)$ 、 $\rho(\text{CO})$ 、 $\rho(\text{PM}_{10})$ 、 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 和 $\rho(\text{NO}_x)$ 24 h 平均值数据满足每日至少有 20 个小时均值或采样时间, $\rho(\text{O}_3)$ 8 h 平均值数据满足每 8 h 至少有 6 个小时均值, $\rho(\text{SO}_2)$ 、 $\rho(\text{NO}_2)$ 、 $\rho(\text{CO})$ 和 $\rho(\text{NO}_x)$ 1 h 平均值数据满足每小时至少 45min 采样时间。研究所用数据时间跨度为 2015 年 1 月 1 日—2016 年 12 月 31 日,时间精度为 1 h。该研究在数据处理过程中,遵循 GB 3095—2012,以保证数据的有效性和准确性。

1.3 聚类分析

聚类分析即按照事物间的相似性进行分类,使得同类对象间相似性最大,不同类之间相似性最小,是

探究污染物来源与演化性质的统计方法^[20]。聚类能够分析区域间的污染特征,揭示不同地区间污染的相似性与关联性^[21-22],明晰污染特征。该研究采用的 k -mean 算法是一种基于划分的聚类算法,是一种简单、应用广泛而又有效的算法。其中心思想是设定每个划分类簇的中心点,形成以中心为分类依据的球形簇,以类内点间距离衡量类内点的紧密程度,以中心点距离衡量不同类簇间的相异程度,相比于其他算法具有快速收敛的优势。 k -mean 算法使用 SSE(Sum of Squared Errors, 误差平方和)作为度量聚类质量的目标函数,给定一个包含 n 个数据对象的数据集合 $\mathbf{D} = \{x_1, x_2, \dots, x_k\}$ 对划分为 K 类的类簇集合 $\mathbf{G} = \{G_1, G_2, \dots, G_k\}$:

$$\text{SSE}(\mathbf{G}) = \sum_{k=1}^K \sum_{x_i \in G_k} \|x_i - c_k\|^2 \quad (1)$$

$$c_k = \frac{\sum_{x_i \in G_k} x_i}{|G_k|} \quad (2)$$

式中:SSE(\mathbf{G})为类簇集合 \mathbf{G} 的误差平方和; K 为选定分类数; c_k 为类簇 G_k 的类内中心点; x_i 为划分在类簇 G_k 内的点; $|G_k|$ 为类簇 G_k 的模。

k -mean 算法虽能较快较好地完成聚类,但对于 k 的选取有一定缺陷,该研究采用 AIC(Akaike Information Criterion, 改进赤池信息准则)来确定最佳 k 的选取,考虑对数似然数及添加对最小长度额外约束来估计最佳 k 值^[23],AIC 越小则表明分类结果越好。

$$\text{AIC} = \text{SSE}(k) + 2mk \quad (3)$$

式中: k 为选定分类数;SSE(k)为分类数取 k 时的误差平方和; m 为数据维度。

该研究包含 2015—2016 年 6 种污染物质量浓度的小时均值,数据量较大,为提高数据的分析效率、保证样本收敛有效性,采用 PCA(Principal Component Analysis, 主成分分析)对数据进行降维,再进行聚类分析。由于各污染物质量浓度的数量级和单位有所差异,对数据进行 Z-score 标准化处理,再进行 PCA。

$$\mathbf{F}_n = b_{n1}P_1' + b_{n2}P_2' + b_{n3}P_3' + b_{n4}P_4' + b_{n5}P_5' + b_{n6}P_6' \quad (4)$$

式中: \mathbf{F}_n 为 PCA 后的各因子; b_{ni} 为对应污染物的因子载荷, $i=1,2,\dots,6$; P_i' 为标准化后的各项污染物质量浓度列向量, $i=1,2,\dots,6$,无量纲。

2 结果与讨论

2.1 我国沿海地区大气污染总体特征

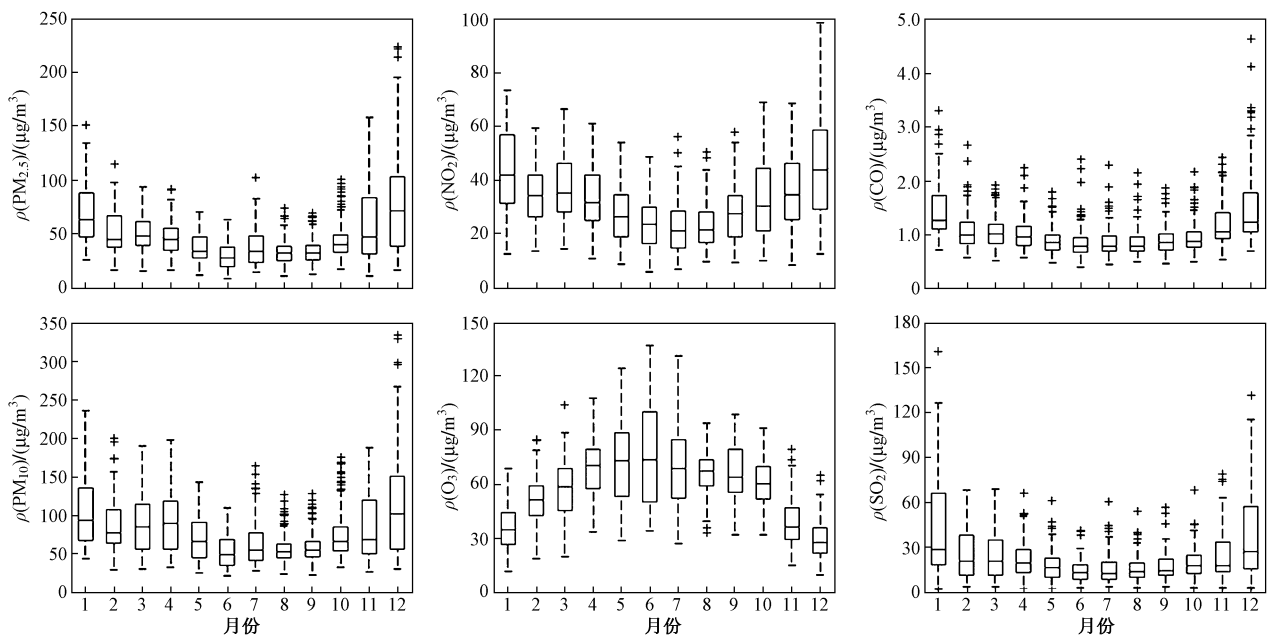
据 2015 地区的因子年沿海地区 115 个城市的 6 项污染物质量浓度小时均值计算日均值,根据日均值

数据分别对 2 a 平均值及月均值进行统计. 按照 GB 3095—2012 我国沿海省份所有 115 个城市中, 颗粒物质量浓度不达标的城市较多, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 仅 35 个城市在 GB 3095—2012 二级标准限值 ($35 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 以下, $\rho(\text{PM}_{10})$ 仅 4 个城市在 GB 3095—2012 一级标准限值 ($40 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 以下, 53 个城市在 GB 3095—2012 二级标准限值 ($70 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 以下. 115 个城市年均 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 和 $\rho(\text{PM}_{10})$ 呈高度线性相关 ($R^2 = 0.94$), $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 占 $\rho(\text{PM}_{10})$ 的 51% 左右, 与 ZHAO 等^[7] 的研究结果较为相近. 我国沿海地区 $\rho(\text{NO}_2)$ 和 $\rho(\text{SO}_2)$ 达标情况较颗粒物稍好, $\rho(\text{NO}_2)$ 有 84 个城市在 GB 3095—2012 一级标准限值 ($40 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 以下, $\rho(\text{SO}_2)$ 有 61 个城市在 GB 3095—2012 一级标准限值 ($20 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 以下, 仅淄博一个城市在 GB 3095—2012 二级标准限值 ($60 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 以上. 以上说明我国沿海地区颗粒物仍然是主要的首要污染物, 同时部分城市存在 NO_2 和 SO_2 污染问题. $\rho(\text{O}_3)$ 和 $\rho(\text{CO})$ 不适用年均值标准, 但存在长三角、珠三角及京津冀地区部分天数 $\rho(\text{O}_3)$ 较高、京津冀地区部分天数 $\rho(\text{CO})$ 较高的情况.

2.2 我国沿海地区大气污染季节变化特征

我国沿海地区大气污染季节变化特征明显 (见图 2), 除 O_3 外, 其余各项污染物质量浓度均呈冬季高、夏季低的趋势, 整体变化趋势呈“U”型. 各城市间

$\rho(\text{PM}_{2.5})$ 差异和 $\rho(\text{SO}_2)$ 差异均在 6 月 (55.2 和 $38.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 最小. $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 差异 12 月 ($207.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 最大, 最高值 ($223.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 出现在河北省衡水市, 主要是由于衡水市冬季受到河北省西部太行山脉阻隔及盛行东南风影响, 污染难以扩散^[24]. $\rho(\text{SO}_2)$ 差异在 1 月 ($157.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 达到最大, 最高值 ($160.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 出现在沈阳市, 以沈阳市为代表的重工业城市工厂排污强度较高, 而冬季采暖化石燃料燃烧进一步增加了污染物的累积, 加之冬季易产生逆温现象, 使得污染物不易扩散, 导致污染物质量浓度较高^[25]. $\rho(\text{NO}_2)$ 月际变化特征与 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 较为相近, 12 月平均值 ($45.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 最高, 同时城市间差异 ($86.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 达到最大, 最高值 ($98.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 出现在河北省保定市, 受到冬季高压及降水冲刷少的影响, 各城市 $\rho(\text{NO}_2)$ 均处较高水平^[26]. $\rho(\text{CO})$ 平均值在 12 月 ($1.5 \text{mg}/\text{m}^3$) 达到最大, 同时城市间差异 ($3.9 \text{mg}/\text{m}^3$) 也较大, 保定市 ($4.6 \text{mg}/\text{m}^3$) 和邢台市 ($4.1 \text{mg}/\text{m}^3$) 较高, 月均值已超过单日限值 ($4.0 \text{mg}/\text{m}^3$), 污染较为严重. 我国沿海地区多为季风性气候, 夏季大气污染扩散条件较好, 同时湿沉降作用较强, 使得 PM 、 NO_2 、 SO_2 、 CO 等污染物质量浓度较低. $\rho(\text{O}_3)$ 在 6 月 (平均值为 $76.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 达到最高, 在 12 月 (平均值为 $29.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 最低. O_3 为前体物 (NO_x 、 VOCs) 在光化学反应下产生的二次污染物, 受光照强度影响较大^[27], 因



注: 箱型图箱体为上四分位值 (Q3)、中位值和下四分位值 (Q1), 上界为 $Q3 + 1.5 \times (Q3 - Q1)$, 下界为 $Q1 - 1.5 \times (Q3 - Q1)$, 上下界以外部分“+”表示异常值.

图 2 我国沿海地区 115 城市 6 项污染物月均质量浓度变化情况

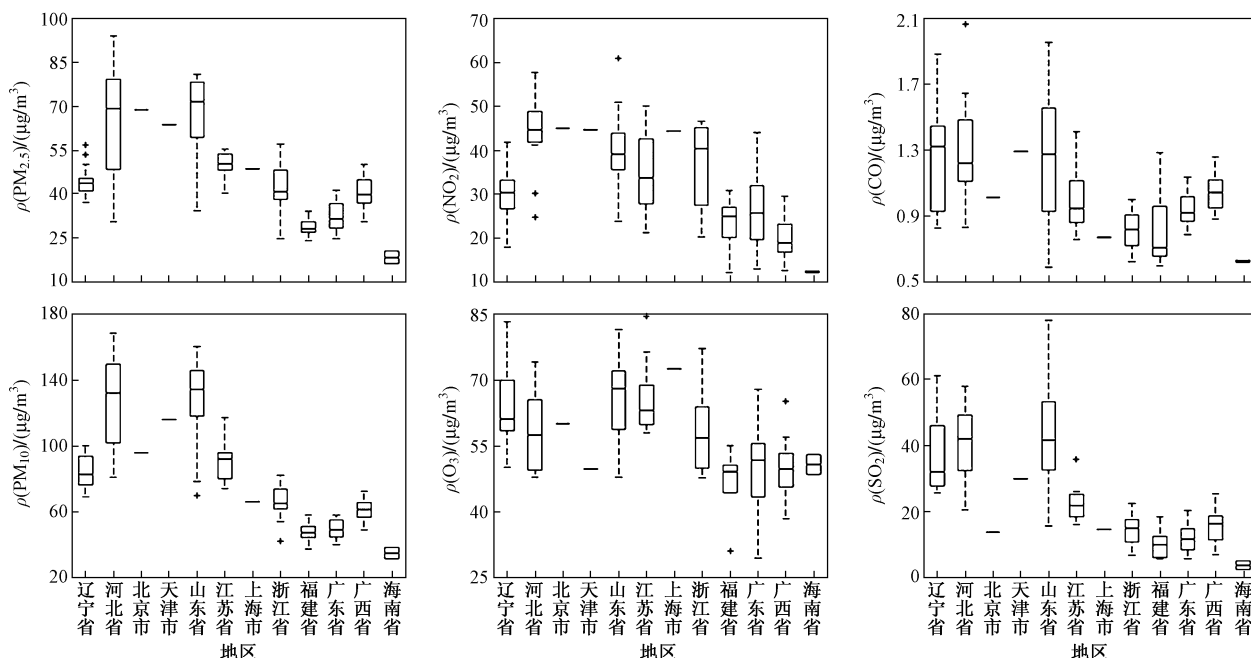
Fig.2 Monthly variations of six criteria air pollutants in 115 cities over coastal areas of China

此 $\rho(\text{O}_3)$ 呈现夏季高、冬季低的“倒U”型分布。

2.3 我国沿海地区大气污染空间分布特征

我国沿海各省内城市大气污染物质量浓度差异较大,且不同省内各城市间污染特征有所差异(见图3)。2015—2016年京津冀鲁地区 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 平均值($64.3\sim 69.4\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)处于较高水平,同时省内差异也较大,河北省内衡水市($88.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)与张家口市($31.3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)质量浓度相差近2倍,污染分布极度不均。海南省 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 平均值($18.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)处于最低水平,福建省($27.6\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)次之,且两省内部差异较小,说明整体空气质量较好。 $\rho(\text{PM}_{10})$ 分布状况与 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 较为相近。 $\rho(\text{NO}_2)$ 除海南省以外在各省内差异均较为明显,最高值($58.3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)出现在河北省

唐山市,同时北京市($44.4\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)、天津市($41.6\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)、上海市($44.1\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)3个直辖市也处于较高水平,各省省会[沈阳市($41.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)、石家庄市($49.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)、济南市($48.6\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)、南京市($47.7\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)、福州市($30.5\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)、广州市($43.9\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)、南宁市($31.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)]也相对较为突出。 $\rho(\text{O}_3)$ 最高值($80.8\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)出现在辽宁省营口市,但广东省内污染质量浓度差异($38.5\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)最大。 $\rho(\text{SO}_2)$ 江苏省以北地区省内差异($27.8\sim 55.3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)较大,最高值出现在淄博市($71.3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$),江苏省及以南地区省内差异($2.5\sim 18.7\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)较小。 $\rho(\text{CO})$ 和 $\rho(\text{SO}_2)$ 均为山东省内质量浓度差异最大($1.3\ \text{mg}/\text{m}^3$ 和 $55.3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$),表明山东省各市污染差异悬殊。



注:箱型图箱体为上四分位值(Q3)、中位值和下四分位值(Q1),上界为 $Q3+1.5\times(Q3-Q1)$,下界为 $Q1-1.5\times(Q3-Q1)$,
上界以外部分“+”表示异常值;北京市、天津市和上海市为单一个城市因此无箱体,只有单一值。

图3 我国沿海地区各省6项污染物质量浓度均值统计分布

Fig.3 Average concentrations of six criteria air pollutants in coastal areas of China

综合全域来看,我国沿海地区6项污染物空间分布特征不尽相同,在空间上呈一定聚集特点(见图4)。 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 在空间上分布连续性较强,环渤海湾的京津冀鲁地区呈由东向西逐渐降低的变化趋势,最高值出现在聊城市($90.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$),河北省南部和山东省西部污染相对严重($75.5\sim 90.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$),两省内部污染质量浓度分布层次明显。 $\rho(\text{PM}_{10})$ 分布状况与 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 较为接近,最高值出现在德州市($156.0\ \mu\text{g}/\text{m}^3$),高污染区域更加集中,河北省和山东省交界处(衡水市、邯郸市、聊城市、济南市、德州市)年均值

均已超过GB 3095—2012 PM_{10} 日浓度二级标准限值($150\ \mu\text{g}/\text{m}^3$)。 $\rho(\text{NO}_2)$ 高值区域主要集中在京津冀、长三角和珠三角地区,同时还包括了山东省中部部分城市,ZHANG等^[28]基于OMI数据的研究也得到了类似的结论。 $\rho(\text{O}_3)$ 高值区多集中在 $\rho(\text{NO}_2)$ 高值区周边并且呈离散分布状,如京津冀周边的张家口市、东营市、菏泽市和盐城市,长三角周边的盐城市、台州市、衢州市,珠三角周边的汕尾市和湛江市等。研究^[29]认为, O_3 前体物反应需要一定时间,经过下风向输送导致 $\rho(\text{O}_3)$ 高值区出现在城市周边地区。

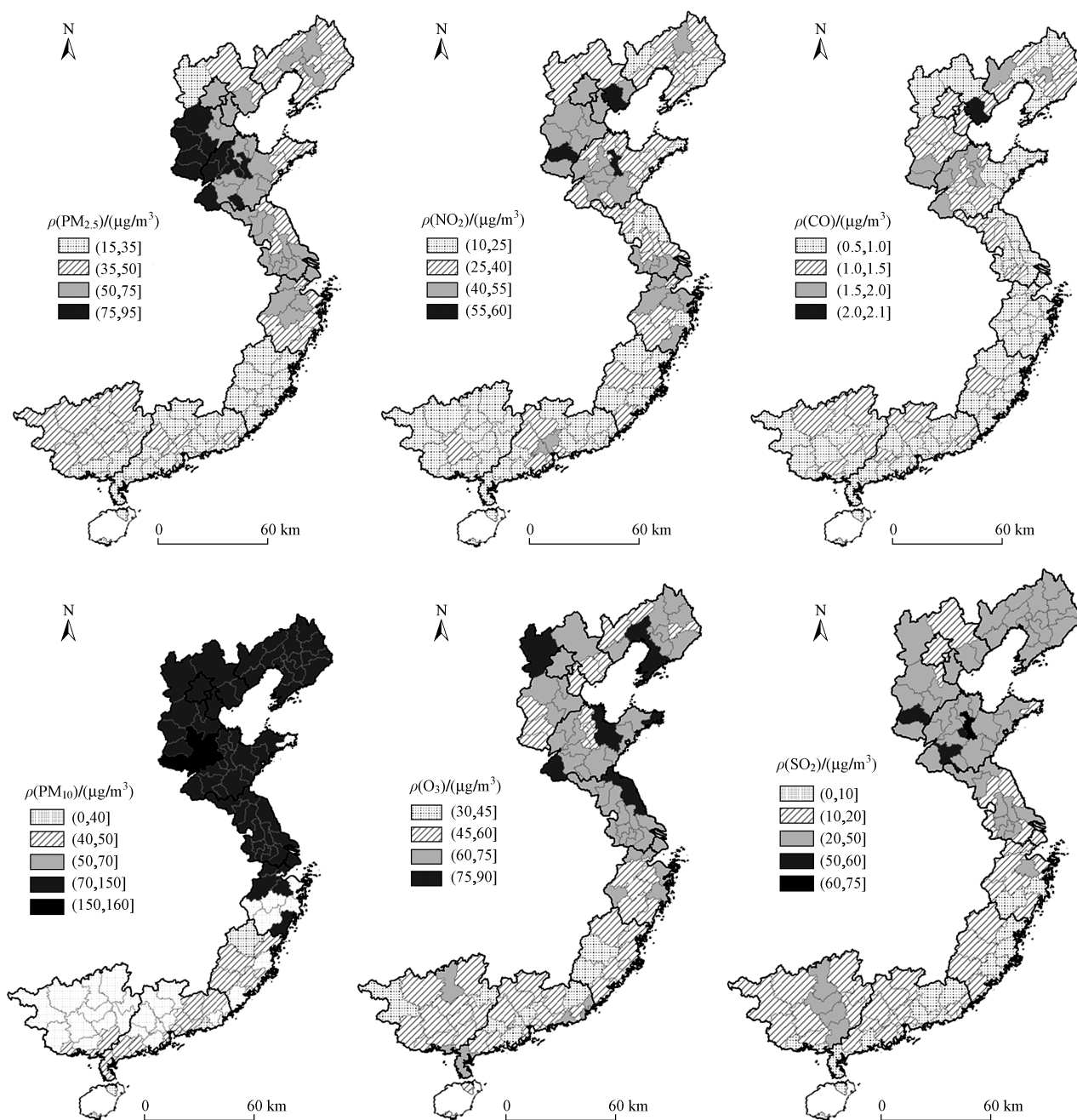


图 4 我国沿海地区 6 项污染物质量浓度空间分布情况

Fig.4 Spatial distribution of six criteria air pollutants concentrations in coastal areas of China

$\rho(\text{SO}_2)$ 高值区主要集中在环渤海经济圈,受重工业和生活燃煤影响排放量较高,同时江苏省南部和广西省中部亦有部分区域质量浓度较高,山东省中部淄博市等地、河北省南部衡水市等地受地势构造影响,污染难以扩散致使 SO_2 污染更加严重^[30]. 环渤海经济圈相对粗放的经济增长模式带来了较高的大气污染排放^[31],同时过去数年中海运业务频繁,而船舶排放是沿海地区空气污染物 (SO_x 、 NO_x 、元素碳、有机碳) 的重要来源之一^[32],加上机动车尾气排放,又易受到局地环流影响,污染物不易扩散^[33],空气质量不容

乐观.

2.4 我国沿海地区城市大气污染聚类分布特征

通过对 Z-score 标准化后的污染物小时浓度数据进行 PCA,前三因子累计贡献在 85% 以上(见表 1),满足主成分提取要求. 其中,因子 1 对各项污染物的因子载荷除 O_3 为负值以外差别不大,包含了总体污染水平信息;因子 2 对 $\rho(\text{O}_3)$ 的因子载荷较高,主要包含了 O_3 污染水平信息;因子 3 对 $\rho(\text{SO}_2)$ 因子载荷较高,达到了 0.87,主要包含了硫酸型污染水平信息. 前三因子主要包含的污染信息说明当前沿海省份各

表1 我国沿海地区污染物质量浓度因子载荷表

Table 1 Factor loading of principal component analysis in coastal areas of China

项目	因子1	因子2	因子3
$\rho(\text{PM}_{2.5})$	0.47	0.22	-0.34
$\rho(\text{PM}_{10})$	0.47	0.27	-0.30
$\rho(\text{NO}_2)$	0.43	-0.23	-0.15
$\rho(\text{O}_3)$	-0.15	0.91	0.09
$\rho(\text{CO})$	0.44	-0.03	0.09
$\rho(\text{SO}_2)$	0.39	0.06	0.87
特征值	3.59	1.05	0.54
方差/1%	59.94	17.49	8.94
累积方差/1%	59.94	77.43	86.37

城市污染状况主要是整体性的空气质量问题,同时部分城市 O_3 、 SO_2 污染较为突出。

在利用 PCA 获取前三因子得分的基础上,对 115 个城市进行 k -mean 聚类,并计算改进 AIC。由图 5 可见,随着分类数的增加,AIC 呈“先减后增”的变化趋势(见图 5),并在 $k=3$ 时达到最小,说明在改进 AIC 准则下最佳分类数为 3。

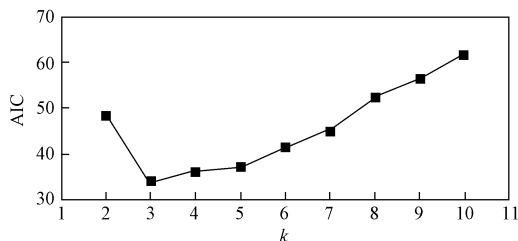


图5 AIC 与聚类数 k 的关系

Fig.5 Relationship between AIC value and the cluster number k

通过聚类分析,可将我国沿海地区 115 个城市按照大气污染水平分为 3 类,类间污染特征差异明显(见图 6)。由图 6 和 7 可见:类 I 空气质量最差,各项污染物质量浓度均处于较高水平, $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 和 SO_2 污染均较为突出,其质量浓度分别达到 (76.1 ± 9.2) (137.7 ± 14.3) (45.0 ± 7.4) (42.2 ± 10.3) $\mu\text{g}/\text{m}^3$;空间上主要分布在河北省南部、山东省西部及江苏省北部(共计 21 个城市),地理位置较为集中。类 II 空气质量次差,污染物质量浓度处于中间水平, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 、 $\rho(\text{PM}_{10})$ 和 $\rho(\text{NO}_2)$ 较高,分别达到 (50.1 ± 7.5) (85.8 ± 12.8) (35.7 ± 7.7) $\mu\text{g}/\text{m}^3$, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 较类 I 降低(34.2%)明显;空间上主要分布在辽宁省、山东省东部和长三角等地区(共计 42 个城市),地理位置相对类 I 偏向东,并且北京市、天津市和上海市 3

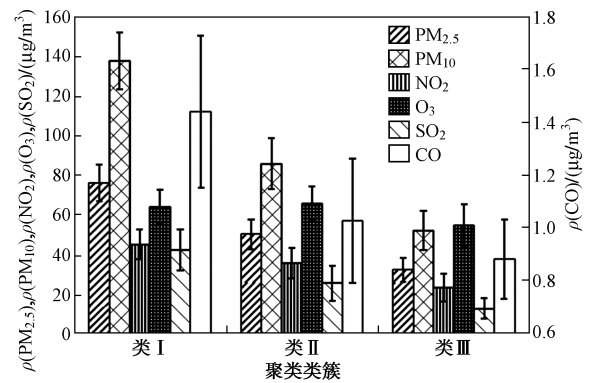


图6 各类簇 6 项大气污染物分布情况

Fig.6 Variations of six criteria air pollutants concentrations for three clusters

个直辖市均属此类。类 III 空气质量最好,污染物质量浓度最低, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 仅为 (32.2 ± 6.0) $\mu\text{g}/\text{m}^3$,不及类 I 的一半;同时,类 III 是 k -mean 聚类得到的 3 个类簇中城市数量最多的一类(共计 52 个城市),空间上主要分布在东南沿海一带,包括浙江省西南部、福建省、广东省、广西省大部分地区和海南省。类 I、类 II 和类 III 间 $\rho(\text{O}_3)$ 平均值相近但时间变化有所差异,类 I 和类 II $\rho(\text{O}_3)$ 峰值均出现在 6 月,但类 I $\rho(\text{O}_3)$ 变幅更大,类 III $\rho(\text{O}_3)$ 峰值出现在 10 月,全年变幅较小。

进一步分析发现,我国沿海地区区域污染特征显著。福建省、广东省和海南省内部城市分类较为统一,均属于类 III,大气污染物质量浓度水平低,空气质量较好,但秋季易受季风和外来源影响, $\rho(\text{O}_3)$ 相对偏高^[34]。辽宁省和长三角地区均处于污染水平居中的类 II, $\rho(\text{PM})$ 和 $\rho(\text{O}_3)$ 偏高,但长三角地区 NO_2 污染程度高于辽宁省,而辽宁省 $\rho(\text{CO})$ 和 $\rho(\text{SO}_2)$ 相对长三角地区较高,且渤海沿海区域 $\rho(\text{O}_3)$ 较高,说明辽宁省兼有复合型污染与煤烟型污染的部分特征。同时,广西省柳州市也属于类 II,与周边城市相比呈现不一样的聚类特征, $\rho(\text{PM})$ 和 $\rho(\text{SO}_2)$ 相对较高,为大气污染热点之一,同时也是沿海地区相对靠近内陆的区域,需要引起注意。环渤海地区整体上污染水平均处于较差的两类,并且由东向西呈现类 III→类 II→类 I 的渐变过渡,污染水平逐渐加重,污染在空间上的聚集性明显。目前有关“京津冀”城市群大气污染来源及特征的研究较多,但聚类结果表明,区域大气污染防治仅考虑京津冀地区可能是不够的,在区域大气污染防治方面应将整个环渤海经济圈纳入考虑,尤其是山东省中西部地区,与河北省南部地区呈现较为相似的污染特征。

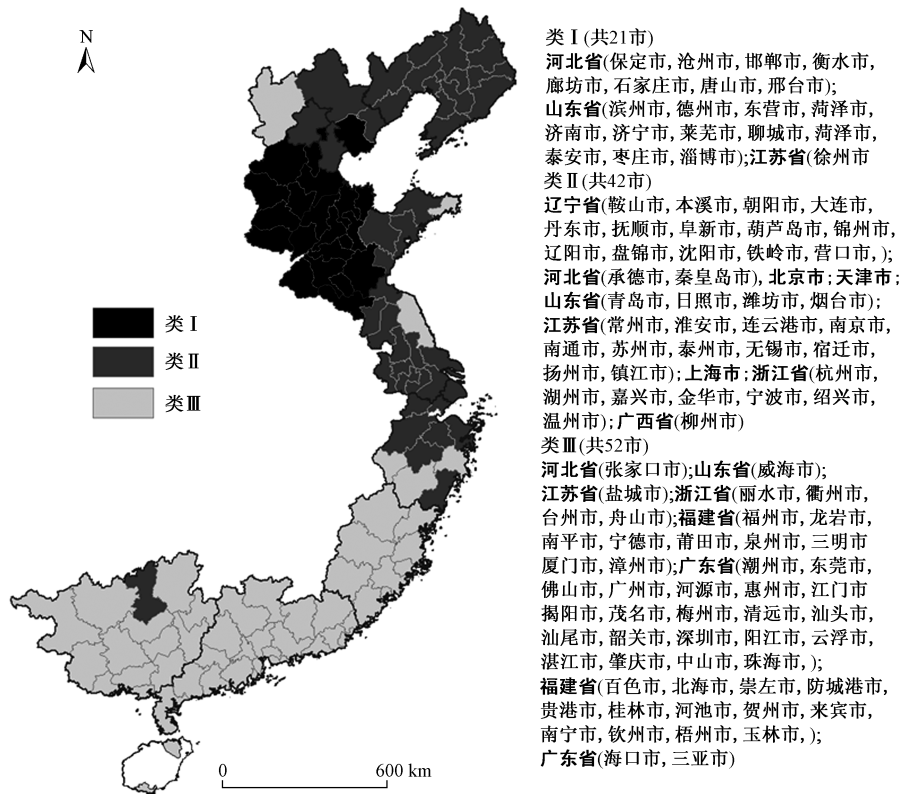


图 7 沿海地区 115 个城市大气污染状况聚类空间分布

Fig.7 The clustering spatial distribution of 115 cities in coastal areas of China

3 结论

a) 2015—2016 年间沿海省份 115 个城市首要污染物主要为 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} , 分别有 80 和 62 个城市未达 GB 3095—2012 二级标准限值, 分别占比 70% 和 54%。6 项污染物中, 除 $\rho(O_3)$ 外均呈冬季高、夏季低的变化趋势, 并且不同城市间冬季污染物质量浓度差异较大。

b) 不同污染物在空间分布上呈现一定聚集特点: $\rho(PM_{2.5})$ 在京津冀鲁地区呈现由西向东递减的变化趋势, 河北省南部和山东省西部质量浓度最高, 达 $75.5 \sim 90.0 \mu g/m^3$; $\rho(PM_{10})$ 与 $\rho(PM_{2.5})$ 分布状况接近, 但质量浓度较高的城市在空间分布上更为集中, 即河北省与山东省交界处的衡水市、邯郸市、聊城市、济南市和德州市。质量浓度较高, 达 $150.3 \sim 156.0 \mu g/m^3$; 京津冀、长三角和珠三角地区 $\rho(NO_2)$ 较高, 其周边地区年均 $\rho(O_3)$ 较高; 环渤海经济圈、江苏省南部和广西省中部的 $\rho(SO_2)$ 较高。

c) 全部 115 个城市按 6 项大气污染物质量浓度水平可以分聚为 3 类: 类 I 空气质量最差, 主要分布在河北省南部和山东省西部地区, 本地源污染物质量浓度较高, 并且受周边地区影响; 类 II 空气污染程度次之, 主要分布在辽宁省、山东省东部和长三角等地

区, 受工业和散煤燃烧影响 SO_2 污染特征明显, 同时受海运船舶和陆路交通源影响 NO_2 污染较为突出, 且 $\rho(O_3)$ 相对较高; 类 III 空气质量最好, 主要分布在福建省、广东省等我国东南沿海地区, 受到季风和外来源影响, 秋季 $\rho(O_3)$ 较高。

d) 环渤海经济圈空气质量整体较差, 地域上相邻的山东省西部与江苏省北部均与河北省南部呈现出较为相似的污染特征, 应纳入“京津冀”区域大气污染防治考虑范围; 柳州市 SO_2 污染相对周边城市较为突出, 为广西省污染热点, 需引起注意。

参考文献 (References):

- [1] FU Hongbo, CHEN Jianmin. Formation, features and controlling strategies of severe haze-fog pollutions in China[J]. Science of the Total Environment, 2016, 578: 121-138.
- [2] LAI H K, HEDLEY A J, THACH T Q, *et al.* A method to derive the relationship between the annual and short-term air quality limits: analysis using the WHO Air Quality Guidelines for health protection[J]. Environment International, 2013, 59(3): 86-91.
- [3] 刘丽霞, 凌霄露, 郭维栋. 长三角城市群区大气污染对气象要素及地表能量平衡的影响研究[J]. 南京大学学报(自然科学), 2014, 50(6): 800-809.
LIU Lixia, LING Xiaolu, GUO Weidong. A study of the impacts of aerosols on micrometeorological characteristics and energy budget in the western Yangtze River Delta[J]. Journal of Nanjing University,

- 2014,50(6):800-809.
- [4] MAIONE M, FOWLER D, MONKS P S, *et al.* Air quality and climate change: designing new win-win policies for Europe [J]. *Environmental Science & Policy*, 2016, 65: 48-57.
- [5] ZHENG Jiajia, JIANG Ping, QIAO Wen, *et al.* Analysis of air pollution reduction and climate change mitigation in the industry sector of Yangtze River Delta in China [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2016, 114(1): 314-322.
- [6] 刘鹏华,姚尧,梁昊,等.耦合卡尔曼滤波和多层次聚类的中国 PM_{2.5}时空分布分析 [J]. *地球信息科学学报*, 2017, 19(4): 475-485.
- LIU Penghua, YAO Yao, LIANG Hao, *et al.* Analyzing spatiotemporal distribution of PM_{2.5} in China by integrating kalman filter and multilevel clustering [J]. *Journal of Geo-Information Science*, 2017, 19(4): 475-485.
- [7] ZHAO Suping, YU Ye, YIN Daiying, *et al.* Annual and diurnal variations of gaseous and particulate pollutants in 31 provincial capital cities based on in situ air quality monitoring data from China National Environmental Monitoring Center [J]. *Environment International*, 2016, 86: 92-106.
- [8] SHANG Dongjie, HU Min, GUO Qingfeng, *et al.* Effects of continental anthropogenic sources on organic aerosols in the coastal atmosphere of East China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 229: 350-361.
- [9] QIAO Xue, YING Qi, LI Xinghua, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} for 25 Chinese provincial capitals and municipalities using a source-oriented community multiscale air quality model [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 612: 462 - 471.
- [10] LIU Yuewei, XIE Shuguang, YU Qing, *et al.* Short-term effects of ambient air pollution on pediatric outpatient visits for respiratory diseases in Yichang city, China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 227: 116.
- [11] LI Xiaolan, MA Yanjun, WANG Yangfeng, *et al.* Temporal and spatial analyses of particulate matter (PM₁₀ and PM_{2.5}) and its relationship with meteorological parameters over an urban city in northeast China [J]. *Atmospheric Research*, 2017, 198: 185-193
- [12] LI Deping, LIU Jianguo, ZHANG Jiashi, *et al.* Identification of long-range transport pathways and potential sources of PM_{2.5} and PM₁₀ in Beijing from 2014 to 2015 [J]. *Journal of Environmental Science*, 2017, 56(6): 214-229.
- [13] ZHANG Jing, ZANG Lanyue, DU Ming, *et al.* Identifying the major air pollutants base on factor and cluster analysis, a case study in 74 Chinese cities [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, 144: 37-46.
- [14] GAO Jiajia, WANG Kun, WANG Yong, *et al.* Temporal-spatial characteristics and source apportionment of PM_{2.5} as well as its associated chemical species in the Beijing-Tianjin-Hebei region of China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 233: 714-724.
- [15] CHENG Zhen, WANG Shuxiao, JIANG Jingkun, *et al.* Long-term trend of haze pollution and impact of particulate matter in the Yangtze River Delta, China [J]. *Environmental Pollution*, 2013, 182(6): 101-110.
- [16] ZHAO Xiaofeng, DENG Chunlei, HUANG Xianjin, *et al.* Driving forces and the spatial patterns of industrial sulfur dioxide discharge in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 577: 279-288.
- [17] 江曲图,何俊昱,王占山,等.基于 LUR/BME 的海岸带地区 PM_{2.5}时空特性研究 [J]. *中国环境科学*, 2017, 37(2): 424-431.
- JIANG Qutu, HE Junyu, WANG Zhanshan, *et al.* Spatiotemporal analysis of PM_{2.5} in large coastal domains by combining land use regression and bayesian maximum entropy [J]. *China Environmental Science*, 2017, 37(2): 424-431.
- [18] 吕剑,骆永明,章海波.中国海岸带污染问题与防治措施 [J]. *中国科学院院刊*, 2016, 31(10): 1175-1181.
- [19] 国家统计局.中国统计年鉴:2017 [M].北京:中国统计出版社, 2017: 3-16.
- [20] 王振,余益军,徐圃青,等.基于快速聚类方法分析常州市区 PM_{2.5}的统计特性 [J]. *环境科学*, 2016, 37(10): 3723-3729.
- WANG Zhen, YU Yijun, XU Puqing, *et al.* Statistical characteristics of urban Changzhou PM_{2.5} based on *k*-means analysis [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2016, 37(10): 3723-3729.
- [21] CHEN Mei, WANG Pengfei, CHEN Qiang, *et al.* A clustering algorithm for sample data based on environmental pollution characteristics [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, 107: 194-203.
- [22] DENG Min, LIU Qiliang, WANG Jiaqiu, *et al.* A general method of spatio-temporal clustering analysis [J]. *Science China Information Sciences*, 2013, 56(10): 1-14.
- [23] 张宪超.数据聚类 [M].北京:科学出版社, 2017: 42-44
- [24] 张璐,王式功,张文宗,等.河北南部空气污染特征及其气象条件分析 [J]. *东北农业大学学报*, 2015(3): 87-94.
- ZANG Jun, WANG Shigong, ZHANG Wenzong, *et al.* Analysis of air pollution characteristics and meteorological conditions in the southern of Hebei [J]. *Journal of Northeast Agricultural University*, 2015(3): 87-94.
- [25] YANG Ting, GBAGUIDI A, YAN Pingzhong, *et al.* Model elucidating the sources and formation mechanisms of severe haze pollution over Northeast mega-city cluster in China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 230(2): 692-700.
- [26] 尉鹏,任阵海,苏福庆,等.中国 NO₂ 的季节分布及成因分析 [J]. *环境科学研究*, 2011, 24(2): 155-161.
- WEI Peng, REN Zhenhai, SU Fuqing, *et al.* Seasonal distribution and cause analysis of NO₂ in China [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2011, 24(2): 155-161.
- [27] SONG Congbo, WU Lin, XIE Yaochen, *et al.* Air pollution in China: status and spatiotemporal variations [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 227: 334.
- [28] ZHANG X Y, LU X H, LIU L, *et al.* Dry deposition of NO₂ over China inferred from OMI columnar NO₂ and atmospheric chemistry transport model [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, 169: 238-249.
- [29] SHEN Jin, ZHANG Yuanhang, WANG Xuesong, *et al.* An ozone episode over the Pearl River Delta in October 2008 [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, 122: 852-863.
- [30] 王潇,曹念文,段笑瞳,等.2014年中国 SO₂ 污染分布特征及其原因分析 [J]. *环境科学与技术*, 2017, 40(8): 115-122.
- WANG Xiao, CAO Nianwen, DUAN Xiaotong, *et al.* Distributions

- characteristics and causes of SO₂ pollution in China during 2014 [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 40(8):115-122.
- [31] 周曙东, 欧阳伟清, 葛继红. 京津冀 PM_{2.5} 的主要影响因素及内在关系研究[J]. *中国人口资源与环境*, 2017, 27(4):102-109. ZHOU Shudong, OUYANG Weiqing, GE Jihong. Study on the main influencing factors and their intrinsic relations of PM_{2.5} in Beijing-Tianjin-Hebei[J]. *China Population, Resources and Environment*, 2017, 27(4):102-109.
- [32] ZHANG Yan, YANG Xin, BROWN R, *et al.* Shipping emissions and their impacts on air quality in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 581-582:186.
- [33] ZHANG Jinqiang, CHEN Jing, XIA Xiangao, *et al.* Heavy aerosol loading over the Bohai Bay as revealed by ground and satellite remote sensing[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, 124:252-261.
- [34] 沈劲, 黄晓波, 汪宇, 等. 广东省臭氧污染特征及其来源解析研究[J]. *环境科学学报*, 2017, 37(12):4449-4457. SHEN Jin, HUANG Xiaobo, WANG Yu, *et al.* Study on ozone pollution characteristics and source apportionment in Guangdong Province[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, 37(12):4449-4457.

(责任编辑:刘 方)