

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2014.0748

冯小琼, 王幸锐, 何敏, 等. 2015. 四川省 2012 年人为源氨排放清单及分布特征[J]. 环境科学学报, 35(2): 394-401

Feng X Q, Wang X R, He M, *et al.* 2015. A 2012-based anthropogenic ammonia emission inventory and its spatial distribution in Sichuan Province[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 35(2): 394-401

四川省 2012 年人为源氨排放清单及分布特征

冯小琼, 王幸锐*, 何敏, 韩丽

四川省环境保护科学研究院, 成都 610041

收稿日期: 2014-04-22 修回日期: 2014-05-22 录用日期: 2014-05-22

摘要: 根据收集到的各类人为源的活动水平数据, 采用合理的估算方法和排放因子, 建立了四川省 2012 年人为源氨排放清单, 并分析了氨排放的空间分布特征. 结果表明: 四川省 2012 年人为源氨排放总量为 994.8×10^3 t, 排放强度为 $2.12 \text{ t} \cdot \text{km}^{-2}$; 畜禽养殖为最主要的排放源, 分担率达 62.31%, 其次为氮肥施用, 分担率为 23.14%; 生猪和牛是畜禽养殖中主要贡献者, 共占畜禽排放总量的 64%; 成都市和达州市为氨排放量较大的城市, 均占四川省排放总量的 10%; 空间分布特征显示排放量较大的网格主要集中在四川省东部, 且多来自于城市周边区县.

关键词: 人为源氨; 排放清单; 四川省; 空间分布

文章编号: 0253-2468(2015)02-394-08 中图分类号: X511 文献标识码: A

A 2012-based anthropogenic ammonia emission inventory and its spatial distribution in Sichuan Province

FENG Xiaoqiong, WANG Xingrui*, HE Min, HAN Li

Sichuan Research Institute of Environmental Protection, Chengdu 610041

Received 22 April 2014; received in revised form 22 May 2014; accepted 22 May 2014

Abstract: Based on the best available activity data and emission factors, a 2012-based anthropogenic ammonia emission inventory was developed for the Sichuan Province with spatial resolution of $9 \text{ km} \times 9 \text{ km}$. Results showed that the total NH_3 emission from anthropogenic sources in Sichuan Province was 994.8×10^3 t, and the average ammonia emission intensity was $2.12 \text{ t} \cdot \text{km}^{-2}$. Livestock source was the largest contributor, accounting for 62.31% of the total anthropogenic NH_3 emissions, followed by nitrogen fertilizers with a contribution of 23.14%. Hog and cow were the major contributors under the category of livestock sources, together contributing to 64% of the livestock emissions. Ammonia emissions from Chengdu and Dazhou were larger than other cities, both contributing 10% to the total NH_3 emission in Sichuan province. In term of spatial distribution, there were higher emissions in the east of Sichuan and other suburban and rural areas.

Keywords: anthropogenic ammonia sources; emission inventory; Sichuan province; spatial distribution

1 引言 (Introduction)

氨是大气中重要的微量气体, 同时也是参与大气氮循环的关键成分之一. NH_3 可与大气中 SO_2 和 NO_x 等结合反应生成硝酸铵、硫酸铵等二次颗粒物, 这些物质均是大气中 $\text{PM}_{2.5}$ 的重要组成部分, 对灰霾污染的形成有重要作用 (Goebes *et al.*, 2003). 近年来, 随着大气灰霾污染日益突显, 无论在全球还是区域范围, 大气环境研究都对氨的排放和输送给予较大关注.

国外在氨排放源种类以及时空分布规律等方面都进行了较为全面的研究. Sutton 等 (2000) 建立了包括农业源、非农业源和天然源在内的英国国家氨排放清单, 并估算了氨排放量不确定性范围; Heeb 等 (2006; 2008) 通过不同道路工况研究测试了汽油车 NH_3 排放以及车速和尾气催化装置对排放的影响; 美国环境保护局的排放源清单改进计划 EIIP (Emission Inventory Improvement Program) 建立了以源清单处理模型 SCC (Source Classification Code) 分类代码为基础的网格化氨排放源清单开发方法体

基金项目: 四川省财政厅专项资助 (No. 2012001-2)

Supported by the Special Research Project of Sichuan Provincial Department of Finance (No. 2012001-2)

作者简介: 冯小琼 (1986—), 女, E-mail: f_xiaoqiong@126.com; * 通讯作者 (责任作者), E-mail: 894644145@qq.com

Biography: FENG Xiaoqiong (1986—), female, E-mail: f_xiaoqiong@126.com; * Corresponding author, E-mail: 894644145@qq.com

系;Chinkin 等(2003)对农业源和非农业源氨排放的季节变化、月变化和日变化均进行了研究.随着我国大气灰霾现象和气溶胶污染的频发,氨排放清单研究也逐渐得到了国内学者的关注.如王文兴等(1997)计算了 1991 年全国氨的排放量和排放强度地理分布;杨志鹏(2008)基于物质流方法对我国畜牧业氨排放因子进行了本地化修正,并提出了养殖场(户)尺度氨减排的具体措施建议;Huang 等(2012)建立了全国 2006 氨排放清单,并分析了其时空分布规律;董艳强等(2009)和尹沙沙等(2010)分别对长三角和珠三角地区的人为氨排放进行了研究.

四川省是我国西部的重要省份,近年来工业化和城市化的快速推进,导致其大气污染特征发生重大变化,该地中心城市群已经呈现出区域性大气复合污染特征,以高浓度细粒子为代表的大气灰霾过程在这个地区时有发生(何敏等, 2013; 张普等, 2010).针对川西平原城市群大气灰霾现状,建立四川省人为源氨排放清单,并掌握大气氨排放的时空分布规律,将有助于了解该地区氨排放对灰霾污染的影响,具有重大的科学研究价值和现实指导意义.然而针对四川地区氨排放清单的研究甚是缺乏,目前只有李富春等(2009)详细估算了 1990—2004 年川渝地区农业生态系统各氨排放源的排放及其时空分布状况,还没有在全省范围内建立较为全面的人为源氨排放清单.为此,本研究综合国内外近年来的研究成果,根据四川省及我国的统计资料,考虑多种排放源,建立了四川省 2012 年人为源氨排放清单,分析其空间分布规律,以期识别区域复合大气污染来源和开展区域大气污染控制提供基础数据.

2.3.2 氮肥施用 研究表明,氮肥施放到农田后,可通过微生物作用或者自身的分解向大气排放出 NH_3 ,被作物吸收利用只占施入量的 30%~41%,其中氨挥发是肥料氮损失的一个重要途径(朱兆良, 2000; Zhang *et al.*, 2010).本研究根据不同氮肥施用

2 材料和方法 (Materials and methods)

2.1 研究区域及对象

本研究以 2012 年为基准年,研究区域为四川省,下辖成都、绵阳、德阳等 21 个地级市(州).估算的人为氨源包括畜禽养殖、氮肥施用、人体排泄、工业源、生物质燃烧、污水和垃圾处理、燃料燃烧和交通源.

2.2 数据来源

畜禽饲养、氮肥施用、人口、工业源、燃料燃烧、污水和垃圾处理的活动水平数据来自四川省统计年鉴(2013)(四川省统计局, 2013)和四川省 2012 年环境统计数据.生物质燃烧活动水平数据来自四川省统计年鉴 2013(四川省统计局, 2013)和中国能源统计年鉴(国家统计局, 2008).交通源中各类机动车活动水平数据来自四川省公安厅.

2.3 估算方法

本研究主要采用排放因子法对四川省人为源氨排放进行估算,计算公式为:

$$E_{ij} = \sum_j A_{ij} \times EF_j \quad (1)$$

式中, E 为氨排放量(t), i 为地区, j 为源类别, A 为活动水平, EF 为排放因子.在具体估算过程中,不同排放源详细的估算公式、活动水平数据处理、排放因子选取等均有所差异,下面分别做以介绍.

2.3.1 畜禽养殖 畜禽 NH_3 排放主要来自圈养、放牧、厩肥保存和施肥 4 个阶段,主要来源于饲料中蛋白质的消化代谢产物粪尿之中(杨志鹏, 2008; Klmont, 2000; 沈兴玲等, 2014).根据我国各类统计资料的统计口径和四川省现有统计资料,本研究将畜禽养殖源细分为生猪、牛、蛋鸡、肉鸡、鸭、羊、兔、马 8 类.排放因子选取北京大学杨志鹏对我国畜牧业氨排放因子的修正结果(杨志鹏, 2008),如表 1 所示.

表 1 畜禽养殖氨排放因子

畜禽种类	生猪	牛	蛋鸡	肉鸡	鸭	兔	羊	马
排放因子	2.82	20.62	0.49	0.18	0.19	0.20	4.93	18.60

比例(王文兴等, 1997; 孙庆瑞和王美蓉, 1997),结合排放因子,得到氮肥施用的平均排放因子(见表 2).尿素和碳酸氢铵的排放因子取国内学者研究结果的平均值(董艳强等, 2009),其他氮肥的排放因子则参考国外学者的研究成果(Goebes *et al.*,

2003; Klimont, 2000).

表 2 不同氮肥施用比例及氨排放因子

Table 2 Application of various N fertilizer and their emission factors

氮肥种类	碳酸氢铵	尿素	氨水	硝酸铵	硫酸铵	其他	平均
施用比例	49.53%	40.54%	0.4%	0.13%	0.23%	9.17%	
排放因子(NH ₃)	21.3%	17.4%	4%	2%	8%	4%	18.01%

由于缺少各市(州)氮肥施用量,本研究根据耕地面积按照自上而下的估算方法,将四川省氮肥施用总量分配到各市(州)(尹沙沙等, 2010).

2.3.3 人体排泄 人体排放氨的途径主要有呼吸、汗液和粪尿.本研究参考文献(Huang *et al.*, 2012), 排放因子取 $0.787 \text{ kg} \cdot \text{人}^{-1} \cdot \text{a}^{-1}$, 基于年末常住人口

采用公式(1)进行估算.

2.3.4 工业生产 工业氨排放源主要包括合成氨生产、氮肥生产、磷肥生产、复合肥生产、炼焦和石油加工等工艺过程,基于产品产量按照公式(1)进行计算.排放因子取值见表 3.

表 3 工业源氨排放因子

Table 3 Ammonia emission factors from industrial production

合成氨生产	氮肥生产	磷肥生产	复合肥生产	炼焦	石油加工
1 ^a	5 ^b	0.07 ^c	2.5 ^d	0.07 ^e	0.16 ^f

注:a. 王文兴等, 1997; b. EEA, 2009; c. 尹沙沙, 2011; d. Klmont, 2000; e. 董艳强等, 2009; f. US EPA, 1995.

2.3.5 生物质燃烧 人为氨生物质燃烧源主要包括家用薪材和秸秆燃烧、秸秆露天焚烧、森林火灾和草原火灾.家用薪材和秸秆燃烧基于燃烧量采用公式(1)进行计算.由于中国能源统计年鉴中 2007 年后没有统计家用薪材和秸秆燃烧量(国家统计局, 2008),本研究参考文献(叶宏和王幸锐, 2013), 根据其 2000—2007 年间的变化趋势,薪材燃烧量取每年递减 6.3%,秸秆燃料量取每年递减 13%进行估算,估算结果分别为每年 $904.83 \times 10^3 \text{ t}$ 和 $1962.1 \times 10^3 \text{ t}$.薪材燃烧量按照各市(州)农业人口数占四川省总人口数的比例,采用自上而下的思想分配到四川省各市(州),家用秸秆则按照各市(州)主要农作物种植面积占四川省总面积的比例进行分配(尹沙沙等, 2010).

由于尚未收集到四川省露天秸秆焚烧量,参考文献(He *et al.*, 2011; 曹国良等, 2005; 陆炳等, 2011),按公式(2)进行计算.

$$M = \sum_j P_j \times N_j \times R_j \times D \times F \quad (2)$$

式中, M 为每年秸秆露天焚烧量(t); P 为第 j 种农作物产量(t); N 为 j 种农作物谷草比; R 为 j 农作物谷草干燥比; D 为废弃秸秆焚烧比例; F 为焚烧效率.

农作物产量来自四川省统计年鉴 2013(四川省统计局, 2013),其他参数取值如表 4 所示.

表 4 秸秆露天焚烧相关参数

Table 4 Parameters used in the calculation of crop residue open burning

农作物	谷草比	谷草干燥比 ^b	废弃秸秆焚烧比例 ^c	焚烧效率 ^c
棉花	3 ^c	0.83	0.14	0.804
花生	0.8 ^a	0.94	0.14	0.82
油菜籽	2 ^c	0.83	0.14	0.804
麻类	1.9 ^a	0.83	0.14	0.804
甘蔗	0.3 ^c	1	0.14	0.68
烟叶	1.6 ^a	0.83	0.14	0.804
稻谷	0.9 ^a	0.89	0.14	0.93
小麦	1.37 ^c	0.89	0.14	0.92
玉米	2 ^c	0.87	0.14	0.92
豆类	1.6 ^a	0.91	0.14	0.68
薯类	0.5 ^a	0.45	0.14	0.68

注:a. 毕于运等, 2009; b. IPCC, 2007; c. 叶宏和王幸锐, 2013.

森林火灾和草原火灾燃烧生物量参考文献(He *et al.*, 2011; 陆炳等, 2011),按公式(3)进行计算:

$$M = A \times D \times F \quad (3)$$

式中, M 为每年火灾燃烧生物量(t); A 为燃烧面积(hm^2); D 为生物荷载量($\text{t} \cdot \text{hm}^{-2}$); F 为燃烧效率.

四川省森林火灾面积来自四川省统计年鉴(四川省统计局, 2013),草原火灾燃烧面积来自 2012 年四川省草原监测报告(四川省畜牧食品局, 2013).森林火灾和草原火灾生物荷载量取值分别为 $221.94 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ (李高飞和任海, 2004)和 $1.8 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ (陆炳

等, 2011); 燃烧效率取值分别为 33% (Ito and Penner, 2004) 和 95% (Yan *et al.*, 2006). 生物质燃烧相关排放因子如表 5 所示.

表 5 生物质燃烧氨排放因子

Table 5 Emission factors for biomass burning $g \cdot kg^{-1}$

家用薪材和 秸秆燃烧	露天秸秆焚烧	森林火灾	草原火灾
1.3 ^a	0.52 ^b	1.02 ^c	0.7 ^d

注: a. Andreae and Merlet, 2001; b. Li *et al.*, 2007; c. Yokelson *et al.*, 2009; d. Song *et al.*, 2010.

2.3.6 污水和垃圾处理 污水处理过程氨排放主要来自污水处理厂活性污泥中微生物吸收和消化污水营养处理过程和淤泥铺摊(尹沙沙, 2011). 垃圾处理主要包括市政垃圾和危险废物的填埋、堆肥和焚烧. 污水和垃圾处理氨排放量基于处理量按照

公式(1)进行计算, 排放因子见表 6.

表 6 污水和垃圾处理氨排放因子

Table 6 Emission factors for waste disposal

污水处理/ ($mg \cdot m^{-3}$)	垃圾填埋/ ($kg \cdot t^{-1}$)	垃圾焚烧/ ($kg \cdot t^{-1}$)	垃圾堆肥/ ($kg \cdot t^{-1}$)
3.2 ^a	0.56 ^b	0.21 ^c	1.275 ^b

注: a. 尹沙沙, 2011; b. Huang *et al.*, 2012; c. Sutton *et al.* 2000.

2.3.7 燃料燃烧 燃料燃烧源主要包括工业和生活燃煤、燃油和天然气等燃烧过程的排放, 其中工业过程燃料燃烧主要来自工业锅炉用料, 包括电厂和工业企业, 本研究采用环境统计数据中每家企业燃料消耗量按照点源逐一估算; 生活燃煤、燃油和天然气, 基于不同燃料燃烧量采用公式(1)进行估算, 排放因子如表 7 所示.

表 7 燃料燃烧氨排放因子

Table 7 Emission factors for fuel emission

工业燃煤/ ($kg \cdot t^{-1}$)	工业燃油/ ($kg \cdot kL^{-1}$)	工业天然气/ ($mg \cdot m^{-3}$)	生活燃煤/ ($kg \cdot t^{-1}$)	生活燃油/ ($kg \cdot kL^{-1}$)	生活天然气/ ($mg \cdot m^{-3}$)
0.015 ^a	0.096 ^a	51.3 ^a	0.908 ^a	0.12 ^a	320.51 ^a

注: a. Roe *et al.*, 2004.

2.3.8 交通源 参考文献(尹沙沙等, 2010; Huang *et al.*, 2012), 本研究将车辆类型分为轻型汽油车、轻型柴油车、重型汽油车、重型柴油车和摩托车按公式(4)进行估算, 排放因子取值参考文献(Huang *et al.*, 2012; Roe *et al.*, 2004), 具体如表 8 所示.

$$E = \sum_i 10^{-6} \times B_{ij} \times M_{ij} \times EF_j \quad (4)$$

式中, E 为交通源 NH_3 排放量(t); i 为地区; j 为车辆类型; B 为分车型机动车保有量(辆); M 为分车型机动车年均行驶里程(km); EF 为分车型排放因子($g \cdot km^{-1} \cdot 辆^{-1}$).

表 8 交通源氨排放因子

Table 8 Emission factors for vehicles $g \cdot km^{-1} \cdot 辆^{-1}$

轻型 汽油车	轻型 柴油车	重型 汽油车	重型 柴油车	摩托车
0.026	0.004	0.028	0.017	0.007

3 结果与讨论(Results and discussion)

3.1 四川省人为源氨排放清单

四川省人为源氨排放清单如表 9 所示, 从表中可以看出, 畜禽养殖是四川省 NH_3 排放量最大的人为源, 排放量达 619.8×10^3 t, 占氨排放总量的

62.3%. 氮肥施用是第二大类排放源, 氨排放量为 230.2×10^3 t, 占排放总量的 23.1%. 畜禽养殖和氮肥施用排放量之和占总排放量的 85%, 由此说明, 农业源是四川省氨排放的最主要来源, 原因在于四川是我国农业大省, 畜牧业和种植业均位于全国前列, 畜禽养殖量和施肥量都很大. 另一方面, 非农业源氨的排放量也不可忽视, 人体排泄、生物质燃烧、工业源和其他源(燃料燃烧、污水和垃圾处理、交通源)的排放量分别占氨排放总量的 6.4%、4.0%、2.3%和 1.9%.

表 9 2012 年四川省人为源氨排放清单

Table 9 Anthropogenic ammonia emission inventory for the year 2012 in Sichuan province

排放源	排放量/ 10^3 t	分担率
畜禽养殖	619.8	62.31%
氮肥施用	230.2	23.14%
工业源	23.0	2.31%
燃料燃烧	5.7	0.57%
人体排泄	63.6	6.39%
生物质燃烧	39.9	4.01%
污水和垃圾处理	9.7	0.98%
交通源	2.9	0.30%
排放总量	994.8	100.00%

由于畜禽养殖是四川省氨排放的最主要来源,本研究对其进行进一步分析.各类牲畜氨排放量占畜禽养殖总量的百分比如图1所示.由图可知,生猪和牛是畜禽养殖中主要贡献者,氨排放量分别为 202×10^3 t和 194×10^3 t,分别占畜禽养殖氨排放总量的32.6%和31.3%.此外,羊的贡献率也较高,其氨排放量占畜禽养殖总量的13.3%,而蛋鸡、肉鸡、鸭、兔等的贡献率相对较低.从养殖数量来看,鸭、肉鸡和兔是四川省2012年养殖量最大的牲畜种类,氨排放量较低是因为其年平均氮排泄量远低于生猪、牛和羊等牲畜(杨志鹏, 2008).

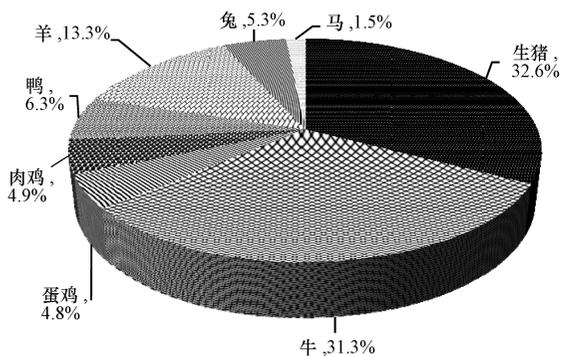


图1 各类牲畜分担率

Fig.1 Emission contribution of livestock source by categories

3.2 排放城市分布特征

由于经济发展水平的差异,四川省各城市氨排放特征有所不同,图2显示了各市(州)氨排放量

的构成及排放强度.从图中可以看出,成都市和达州市为四川省氨排放量最高的城市,排放量分别为 101.1×10^3 t和 99.8×10^3 t,均占四川省排放总量的10%.成都市由于城市化建设,人口基数大,造成其人体排泄、污水和垃圾处理、燃料燃烧和交通源氨排放量均高于其他城市.此外,成都市为四川省生猪饲养量最高的城市,其他牲畜饲养量也较大,造成其畜禽养殖氨排放量也较高.达州市2012年畜禽养殖量占四川省畜禽养殖总量的12%,为四川省最高,因此其畜禽养殖氨排放量是四川省最高的城市.同时,由于其经济发展特点,氮肥施用和生物质燃烧氨排放量也较大.南充市氨排放量位于第三位,这主要是由于其农业面积大,使得氮肥施用氨排放量是四川省最高的城市,而根据四川省统计年鉴(2013)(四川省统计局,2013),南充市2012年年末常住人口数仅次于成都市,故其人体氨排放量也较高.甘孜州、阿坝州、攀枝花市和雅安市是四川省氨排放量较低的地区,只占四川省氨排放总量的0.25%、0.55%、1.07%和1.56%.甘孜州和阿坝州位于四川省西部,由于地理位置和历史原因,除了草原火灾氨排放量主要集中在这两个地区外,其他人为源氨排放量均为四川较低的城市,例如其工业生产产品产量和人口数均为四川省最低,造成其工业源、人体排泄、污水和垃圾处理、燃料燃烧源氨的排放量均低于其他城市.其他城市氨排放量的分担率在3%~6%之间.

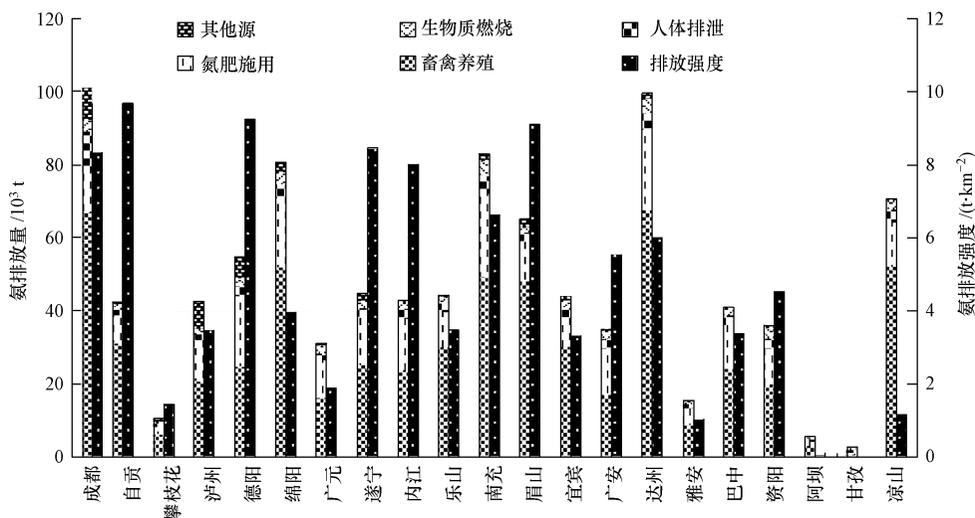


图2 四川省各地区氨排放量及排放强度(注:其他源包括工业源、燃料燃烧、污水和垃圾处理、交通源)

Fig.2 Anthropogenic ammonia emission inventory and emission intensities by cities in Sichuan province

从排放强度看,2012 年四川省平均排放强度为 $2.12 \text{ t}\cdot\text{km}^{-2}$, 排放强度大于 $8 \text{ t}\cdot\text{km}^{-2}$ 的城市为自贡、遂宁、内江、眉山、德阳和成都, 其中, 自贡排放强度最大, 为 $9.71 \text{ t}\cdot\text{km}^{-2}$. 无论是排放总量还是排放强度, 成都市均位于四川省前列.

3.3 结果对比

表 10 列出了本研究与其他研究学者的结果比较. 与其他学者在四川省的研究结果对比发现, 差异主要体现在畜禽养殖、氮肥施用和人体排泄上. 从畜禽养殖氨排放量来看, 本研究与董文焯等 (2010) 的估算结果较为接近, 高于 Huang 等 (2012) 的估算结果. 造成差异的原因主要是估算的牲畜种类和选取的排放因子不一致, 且估算的基准年不一致也导致了活动水平数据的差异. 氮肥施用氨排放量与 Huang 等 (2012) 的研究结果差别不大, 低于董文焯

等 (2010) 的研究结果. 这主要是由于本研究考虑了不同氮肥的施用比例, 而董文焯等 (2010) 的研究中直接采用氮肥施用量乘以排放因子得到排放量. 人体排泄氨排放量的差异则是由于人口数量的增长. 从总排放量来看, 本研究估算结果远高于广东省 (沈兴玲等, 2014) 和长三角 (董艳强等, 2009) 等地的氨排放量, 这主要是由于四川省是农业大省, 牲畜量和氮肥施用量均较高, 这与全国氨排放分布的研究结果一致 (董文焯等, 2010). 从排放强度来看, 本研究与董文焯等 2006 年的结果较为接近, 低于广东省 ($3.69 \text{ t}\cdot\text{km}^{-2}$) 和长三角地区 ($4.2 \text{ t}\cdot\text{km}^{-2}$). 这主要是因为四川省面积远大于广东省和长三角地区, 尤其是甘孜州、阿坝州等地, 其氨排放量只占四川省排放总量的 0.8%, 但面积却占四川省总面积的 50%.

表 10 与其他同类研究结果比较
Table 10 Comparison with other studies

排放源	10^3 t				
	本研究	四川 Huang ^a	董文焯 ^b	广东省 沈兴玲 ^c	长三角 董艳强 ^d
基准年	2012	2006	2006	2010	2004
畜禽养殖	619.8	394.8	615.7	257.5	203.3
氮肥施用	230.2	159.0	439.8	235.6	227.3
工业源	23.0	16.8	10.3	0.5	—
燃料燃烧	5.7	—	—	5.9	—
人体排泄	63.6	20	49.6	34.9	4.1
生物质燃烧	39.9	5.3	—	30.9	7.8
污水和垃圾处理	9.7	3.7	—	5.3	—
交通源	2.9	3	—	12.1	18.1 ^e
总量	994.8	638.7	1115.4	582.9	460.7
排放强度/ $(\text{t}\cdot\text{km}^{-2})$	2.12	—	2.45	3.69	4.20

注: a. Huang *et al.*, 2012; b. 董文焯等, 2010; c. 沈兴玲等, 2014; d. 董艳强等, 2009; e. 包括工业源和交通源.

3.4 不确定性分析

由于国内学者对氨排放清单研究较少, 清单建立的不确定性主要来自排放因子的选取, 部分排放源由于缺少各市 (州) 数据, 采用自上而下的方法进行分配, 也带来一定的不确定性. 本研究中, 畜禽养殖活动水平数据来自四川省统计年鉴和环境统计数据, 排放因子选取国内学者修正后的本地化因子, 不确定性较小. 氮肥施用是本研究中氨排放清单最主要的不确定性来源, 各市 (州) 施用量采用自上而下进行分配, 且没有根据不同氮肥划分, 排放因子是折算的平均值, 故其不确定性较大. 工业源、人体排泄、燃料燃烧、污水和垃圾处理、交通源均采用自下而上的方法进行估算, 可以认为活动水平数据

相对较为可靠, 不确定性主要来自于排放因子. 生物质燃烧中家用薪材和秸秆的燃烧量是通过估算得出, 然后采用自上而下的方法进行分配, 存在着一定的误差. 此外, 秸秆露天焚烧、森林火灾和草原火灾的燃烧量计算中的相关参数和排放因子的选取, 由于缺少本地实测数据, 只能参考国外或其他地区研究结果, 这也增大了估算结果的不确定性.

3.5 空间分布特征

3.5.1 空间分配方法 本研究基于 ArcGIS 空间分析技术和数据调研, 根据污染源空间分布规律和土地利用类型等数据, 采用适宜的权重因子, 建立了四川省 $9 \text{ km}\times 9 \text{ km}$ 人为源氨排放网格化清单. 空间分配方法包括: ①基于地理坐标信息; ②基于人口

密度权重;③基于土地利用类型.在估算的污染源中,工业源、污水和垃圾处理、工业燃料燃烧直接根据企业的经纬度坐标信息进行空间分配.人体排泄、生活燃料燃烧和交通源基于人口密度权重进行分配.畜禽养殖、氮肥施用、生物质燃烧,根据排放源活动范围的地域地点,按照四川省土地利用信息进行空间分配,土地利用分类参考土地利用遥感解译中使用的土地分类体系.其中,畜禽养殖按照农村居民点和耕地面积权重因子进行分配;氮肥施用根据耕地面积权重因子进行分配;生物质燃烧中的露天秸秆焚烧根据耕地面积权重因子进行分配,家用薪材和秸秆燃烧根据农村居民点权重因子进行分配,森林火灾根据林地面积权重因子进行分配,草原火灾根据草地面积权重因子进行分配.由于畜禽养殖排放量远高于其他污染源,为提高空间分布的准确性,将其空间分布细化到区县,其他污染源则根据市(州)进行分配.

3.5.2 空间分布特征 基于上述空间分配方法,得到了四川省2012年氨排放空间分布,如图3所示.从图中可以看出,若以绵阳-成都-雅安沿线作为分界,氨排放则主要分布在沿线以东,而广阔的川西地带包括阿坝州、甘孜州等地,氨排放量较小.由于畜禽养殖和氮肥施用这两个主要排放源根据农村居民点和耕地面积进行分配,而各城市均分布有农村居民点和耕地,致使排放量较高的网格分布相对较为零散,各个城市均有分布(甘孜州、阿坝州除

外).此外,由于农业源是大气氨排放的主要来源,因此排放量较高的区域多集中在各城市的周边区县,主城区排放相对较少.以成都市为例,排放量较高的网格多位于大邑县、蒲江县、金堂县和彭州市.

4 结论(Conclusions)

1) 本研究通过收集汇总四川省各市(州)的农业、工业生产基础信息以及生活能源消耗数据,建立了2012年四川省人为源氨排放清单.四川省2012年人为源氨排放总量为 994.8×10^3 t,排放强度为 $2.12 \text{ t} \cdot \text{km}^{-2}$.

2) 畜禽养殖和氮肥施用是四川省氨排放的主要来源,排放量分别为 619.8×10^3 t和 230.2×10^3 t,共占氨排放总量的85.4%.

3) 畜禽源中,生猪是最大的排放源,占畜禽养殖排放总量的33%,其次是牛,分担率为31%.

4) 成都市、达州市、南充市和绵阳市依次为排放量最大的4个城市,自贡为排放强度最大的城市,而无论是排放量还是排放强度,成都市均位于四川省前列.

5) 从空间分布特征来看,氨排放主要集中在四川省东部,且主城区排放量较小,城市周边地区排放量较大.

责任作者简介:王幸锐(1960—),男,研究员,长期从事城市和区域大气环境研究,先后获得四川省科技进步二等奖和三等奖各1项,出版与大气污染相关论文与专著共计16篇.

参考文献(References):

- Andreas M O, Merlet P. 2001. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 15(4): 955-966
- 毕于运,高春雨,王亚静,等. 2009. 中国秸秆资源数量估算[J]. *农业工程学报*, 25(12): 211-216
- 曹国良,张小曳,王丹,等. 2005. 中国大陆生物质燃烧排放的污染物清单[J]. *中国环境科学*, 25(4): 389-390
- Chinkin L R, Ryan P A, Coe D L. 2003. Recommended improvements to the CMU ammonia emission inventory model for use by LADCO [R]. USA: Lake Michigan Air Directors Consortium
- 董文煊,邢佳,王书肖. 2010. 1994—2006年中国人源大气氨排放时空分布[J]. *环境科学*, 31(7): 1457-1463
- 董艳强,陈长虹,黄成,等. 2009. 长江三角洲地区人为源氨排放清单及分布特征[J]. *环境科学学报*, 29(8): 1611-1617
- European Environment Agency (EEA). 2009. EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook [OL]. 2009-06-19. <http://www.eea.europa.eu/publications/emep-eea-emission-inventory-guidebook-2009>
- Goebes M D, Strader R, Davidson C. 2003. An ammonia emission

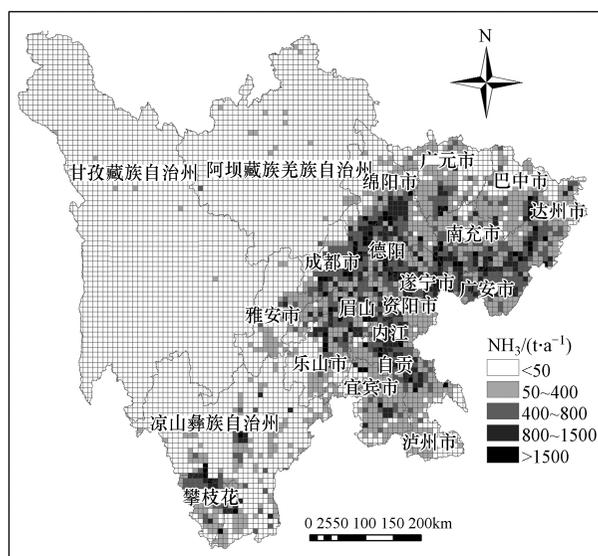


图3 四川省 NH_3 排放空间分布

Fig.3 Spatial distribution anthropogenic ammonia in Sichuan Province

- inventory for fertilizer application in the United States [J]. *Atmospheric Environment*, 37(18): 2539- 2550
- 国家统计局. 2008. 中国能源统计年鉴 2008[M]. 北京: 中国统计出版社
- 何敏, 王幸锐, 韩丽. 2013. 四川省大气固定污染源排放清单及特征 [J]. *环境科学学报*, 33(11): 3127-3137
- He M, Zheng J Y, Yin S S, *et al.* 2011. Trends, temporal and spatial characteristics, and uncertainties in biomass burning emissions in the Pearl River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 45 (24): 4051-4059
- Heeb N V, Forss A M, Brühlmann S, *et al.* 2006. Three-way catalyst-induced formation of ammonia-velocity-and acceleration-dependent emission factors [J]. *Atmospheric Environment*, 40 (31): 5986-5997
- Heeb N V, Saxer C J, Forss A M, *et al.* 2008. Trends of NO⁻, NO₂⁻, and NH₃-emissions from gasoline-fueled Euro-3- to Euro-4 passenger cars [J]. *Atmospheric Environment*, 42(10): 2543-2554
- Huang X, Song Y, Li M M, *et al.* 2012. A high-resolution ammonia emission inventory in China [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 26, doi: 10.1029/2011GB004161
- IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change). 2007. Greenhouse Gas Inventory Reference Manual. Revised 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories [Z]. IPCC/OECD/IES, UK. Meteorological Office, Bracknell, UK
- Ito A, Penner J E. 2004. Global estimates of biomass burning emissions based on satellite imagery for the year 2000 [J]. *Journal of Geophysical Research*, 109(D14), doi: 10.1029/2003JD004423
- Klimont Z. 2000. Current and Future Emissions of Ammonia in China [Z]. Laxenburg, Austria: 1-8
- 李富春, 韩圣慧, 杨俊, 等. 2009. 川渝地区农业生态系统 NH₃排放 [J]. *环境科学*, 30(10): 2823-2831
- 李高飞, 任海. 2004. 中国不同气候带各类型森林的生物量和净第一性生产力 [J]. *热带地理*, 24(4): 306-310
- Li X H, Wang S X, Duan L, *et al.* 2007. Particulate and trace gas emissions from open burning of wheat straw and corn stover in China [J]. *Environmental Science and Technology*, 41(17): 6052-6058
- 陆炳 孔少飞, 韩斌, 等. 2011. 2007 年中国大陆地区生物质燃烧排放污染物清单 [J]. *中国环境科学*, 31(2): 186-194
- Roe S M, Spivey M D, Lindquist H C, *et al.* 2004. Estimating ammonia emissions from anthropogenic nonagricultural sources- draft final report [R]. Washington, D. C., U. S.: Emission Inventory Improvement Program(EIIP). 1-87
- 沈兴玲, 尹沙沙, 郑君瑜, 等. 2014. 广东省人为源氨排放清单及减排潜力研究 [J]. *环境科学学报*, 34(1): 43-53
- 四川省统计局. 2013. 四川统计年鉴(2013) [M]. 北京: 中国统计出版社
- 四川省畜牧食品局. 2013. 2012 年四川省草原监测报告 [R]. 成都: 四川省畜牧食品局
- Song Y, Chang D, Liu B, *et al.* 2010. A new emission inventory for nonagricultural open fires in Asia from 2000 to 2009 [J]. *Environmental Research Letters*, 5(1), doi: 10.1088/1748-9326/5/1/014014
- 孙庆瑞, 王美蓉. 1997. 我国氨的排放量和时空分布 [J]. *大气科学*, 21(5): 590-598
- Sutton M A, Dragosits U, Tang Y S, *et al.* 2000. Ammonia emissions from non-agricultural sources in the UK [J]. *Atmospheric Environment*, 34(6): 856-863
- US EPA. 1995. Comlilation of air pollutant emission factors. Vol 1: Stationary point and area sources (5th edition) [R]. U.S.: Office of air quality planning and standards office of air and radiation
- 王文兴, 卢筱凤, 庞燕波, 等. 1997. 中国氨的排放强度地理分布 [J]. *环境科学学报*, 17(1): 2-7
- Yan X Y, Oharab T, Akimotoa H. 2006. Bottom-up estimate of biomass burning in mainland China [J]. *Atmospheric Environment*, 40 (27): 5262-5273
- 杨志鹏. 2008. 基于物质流方法的中国畜牧业氨排放估算及区域比较研究 [D]. 北京: 北京大学
- 叶宏, 王幸锐. 2013. 四川省环境污染防治技术水平与绩效评估——大气污染防治卷(2012) [M]. 四川: 四川科学技术出版社
- 尹沙沙. 2011. 珠江三角洲人为源氨排放清单及其对颗粒物形成贡献的研究 [D]. 广州: 华南理工大学
- 尹沙沙, 郑君瑜, 张礼俊, 等. 2010. 珠江三角洲人为氨源排放清单及特征 [J]. *环境科学*, 31(5): 1146-1151
- Yokelson R J, Crounse J D, DeCarlo P F, *et al.* 2009. Emissions from biomass burning in the Yucatan [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9: 5785-5812
- 张普, 周末东, 王治渊. 2010. 成都市城区灰霾污染现状初探 [A] // 成都市科技年会分会场——世界现代田园城市空气环境污染防治学术交流会议论文集 [C]. 成都. 12-18
- Zhang Y, Dore A J, Ma L, *et al.* 2010. Agricultural ammonia emissions inventory and spatial distribution in the North China Plain [J]. *Environmental Pollution*, 158(2): 490-501
- 朱兆良. 2000. 农田中氮肥的损失与对策 [J]. *土壤与环境*, 9(1): 1-6