

京津冀地区人为源 挥发性有机物源清 单建立与校验

谢绍东

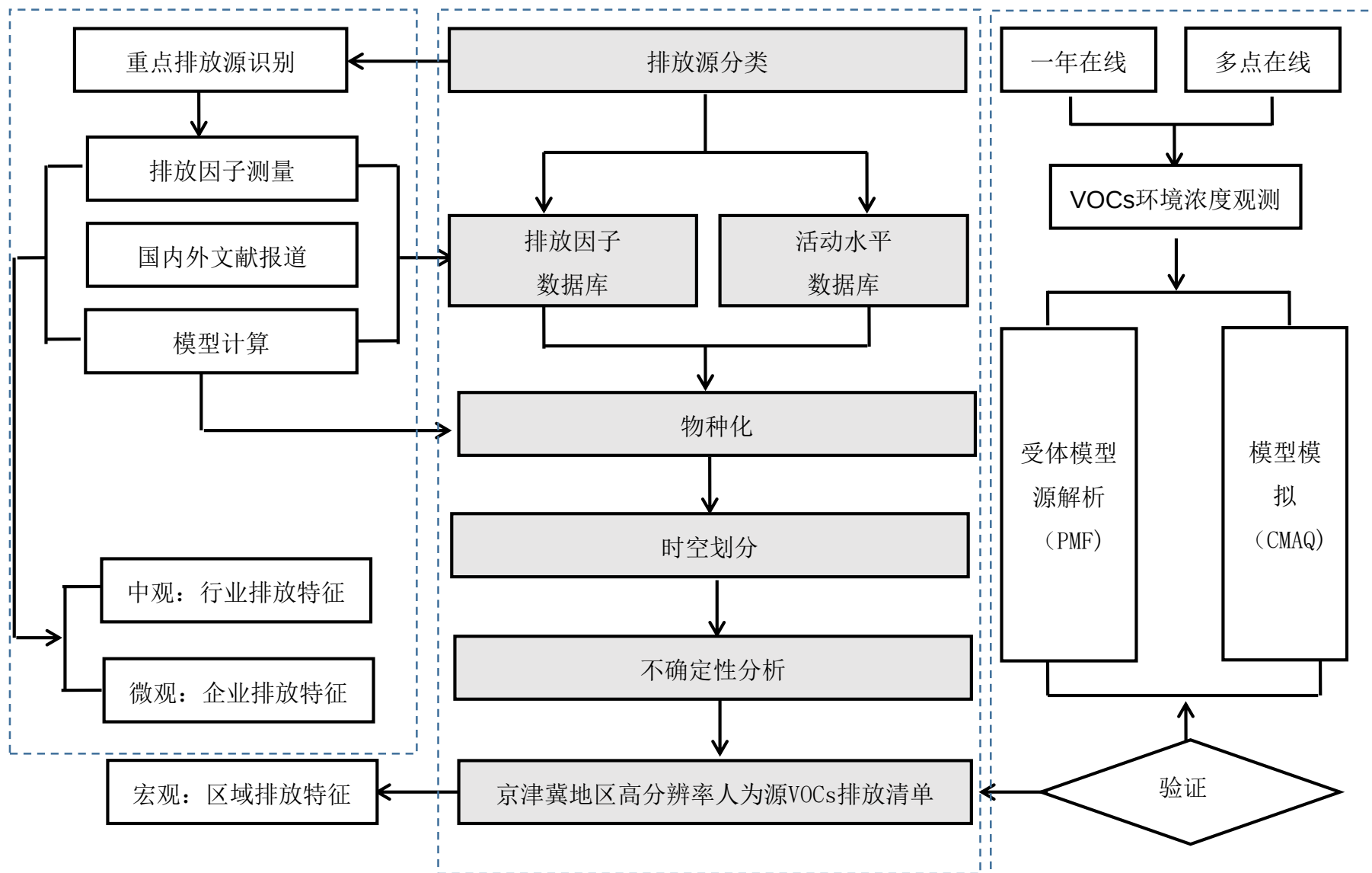
北京大学环境科学与工程学院



北京大学

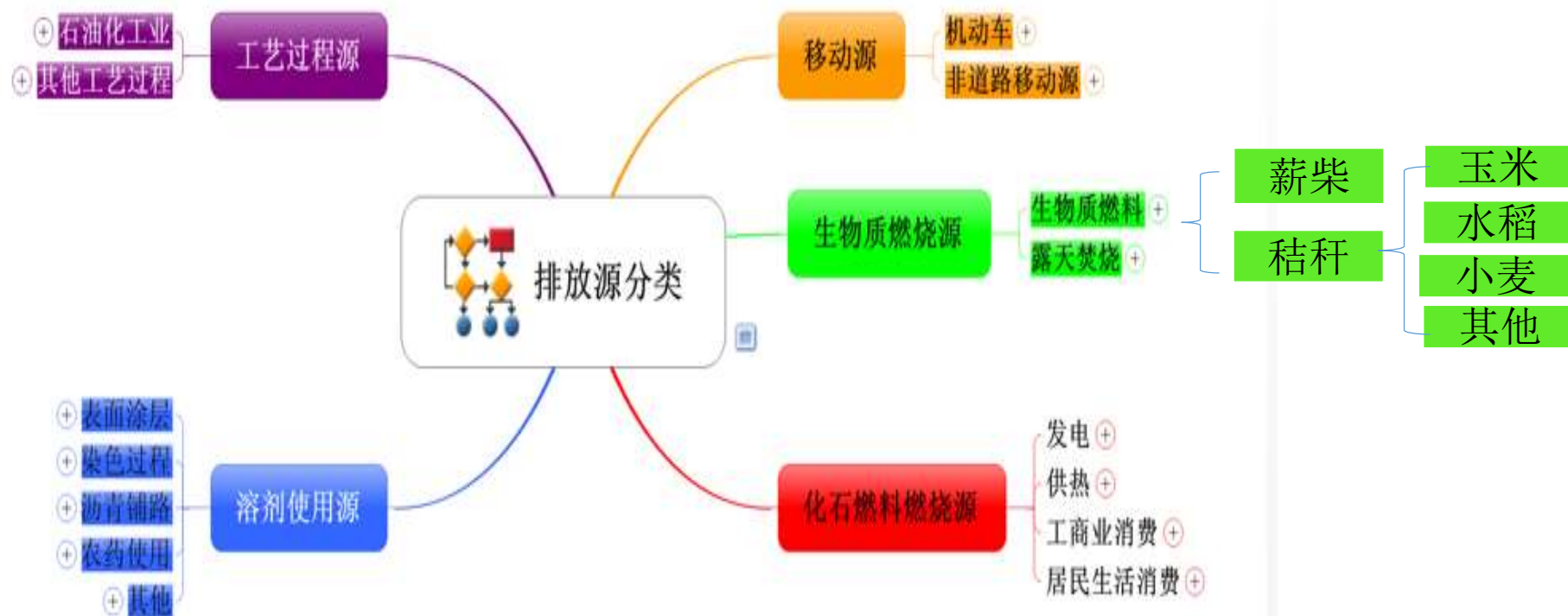


技术路线



构建京津冀地区的人为源VOCs排放清单编制方法

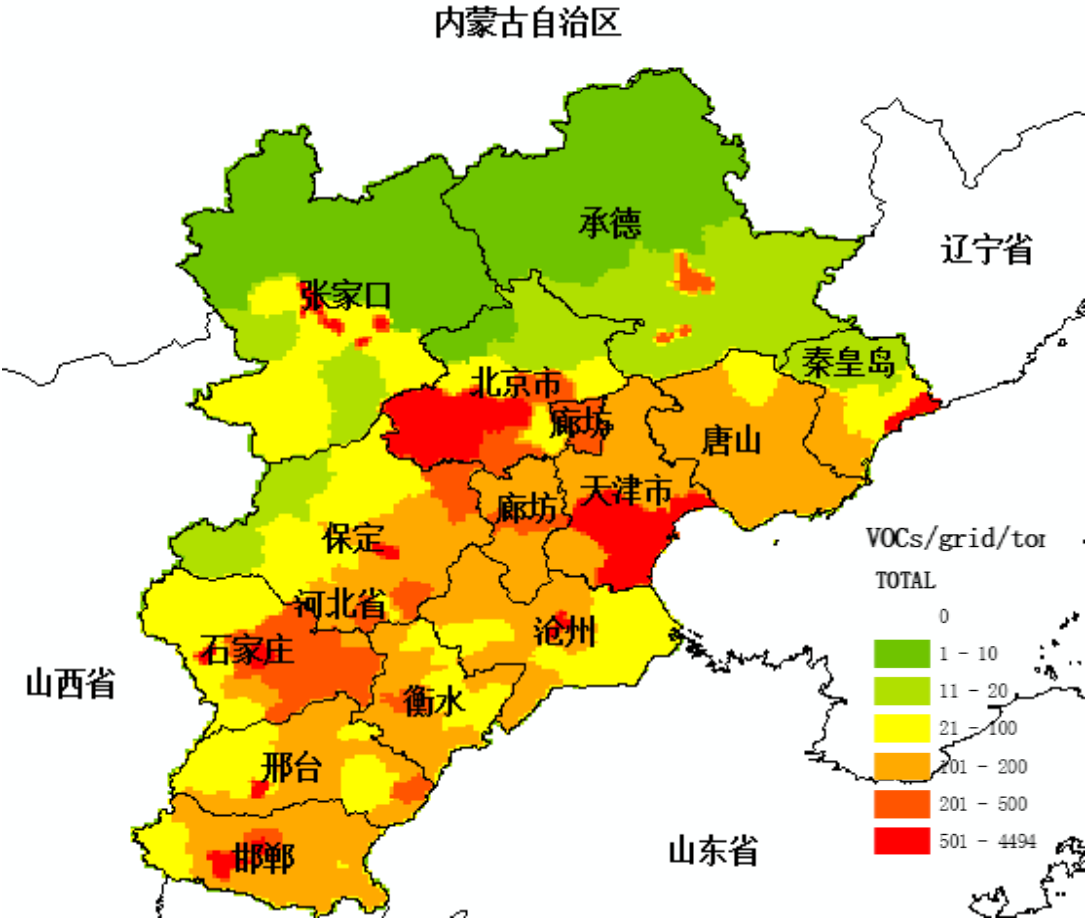
□ 五类四级排放源分类系统



2014年京津冀高分辨率人为源VOCs排放清单

空间分布

年排放量（万吨）	
北京市	40
天津市	65
河北省	197
合计	302



2014年京津冀人为源VOCs排放量空间分布（10km）

排放清单验证

VOCs排放清单验证方法

受体模型源解析



CMB

PMF

排放比

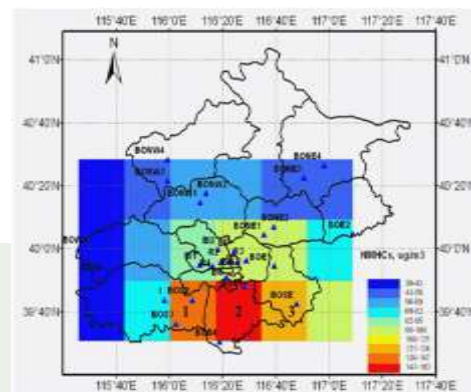
$$E_{VOC} = E_{Ref} \times ER_{VOC} \times MW_{VOC} / MW_{Ref}$$

↓ 排放量
↓ 排放比
↓ 分子量

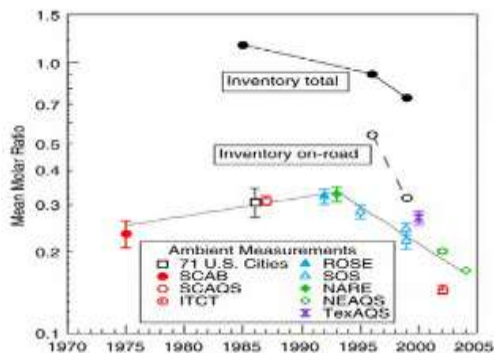
浓

排

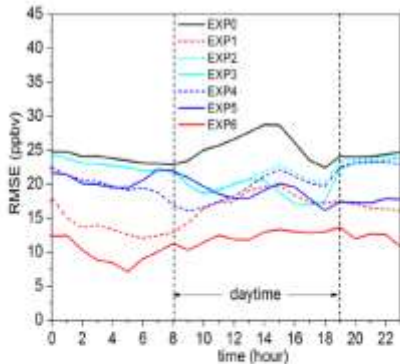
盒子模型



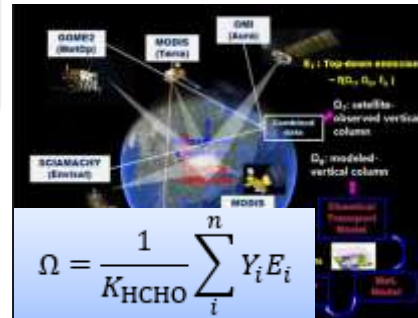
趋势分析



化学传输模型



卫星反演



VOCs排放清单验证方法

方法	条件	优点	缺点
受体模型	大量的VOCs物种观测数据、源示踪物的识别	独立于排放清单且不依赖气象条件、验证排放源贡献	不能直接提供污染物排放量、不考虑活性VOCs光化学损耗
排放比法	VOCs物种观测数据、参比化合物(CO)排放清单和观测数据	直接验证物种排放量	参比化合物排放量不准确、排放比难以准确定量
盒子模型	网格化VOCs观测数据、风速等	验证空间分布、操作简单	基于大量假设条件
趋势分析	多年VOCs物种观测数据	验证时间变化趋势	基于大量假设条件
CTM模型	VOCs观测数据、所有大气污染物高分辨率排放清单	验证污染源、物种、时空分布、定量校正	NO _x 清单不准确、模型参数不准确
卫星反演	卫星数据、反演算法、CTM模型	时空分辨率高、定量校正	观测反演物种有限

VOCs排放清单验证方法

PMF

VOCs在线观测数据



来源构成

VOCs在线观测数据

CO观测数据

CO排放量

排放比

$$E_{VOC} = E_{Ref} \times ER_{VOC} \times MW_{VOC} / MW_{Ref}$$

物种排放量

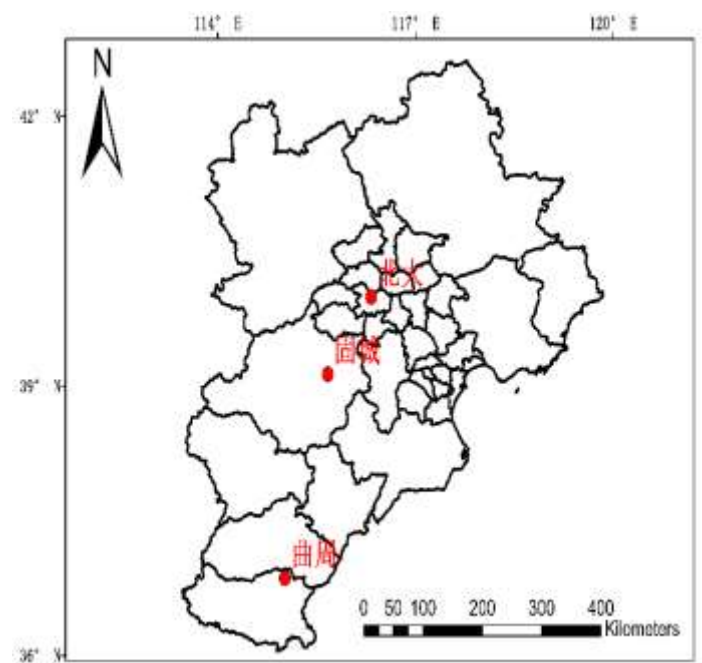
卫星反演对比

基于OMI对流层甲醛柱浓度反演排放清单

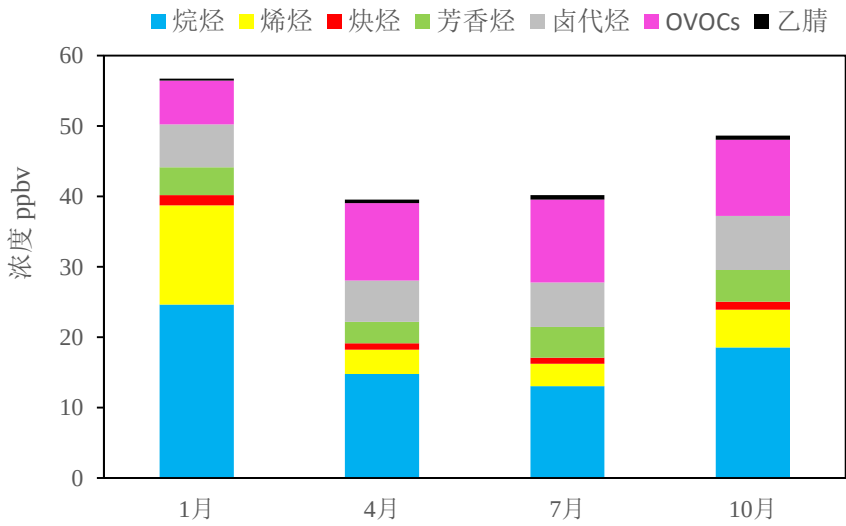
排放量

空间分布

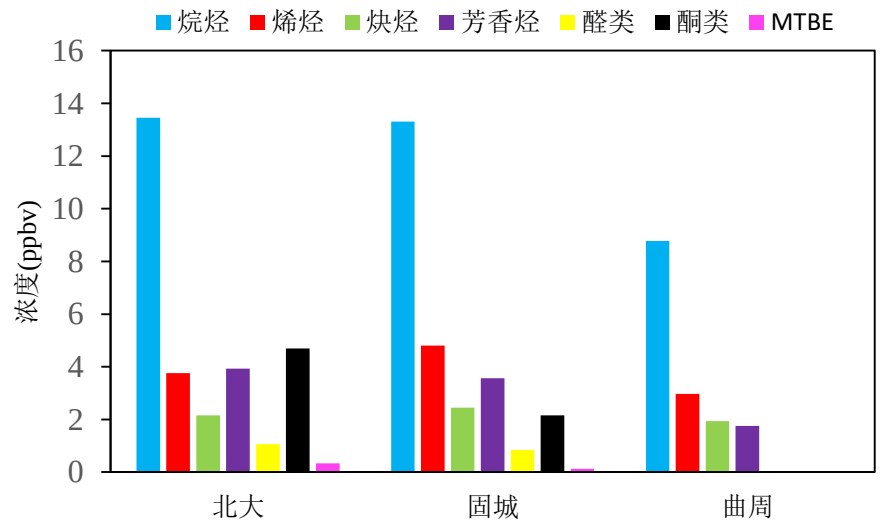
观测数据来源



站点	类型	观测时间	测量物种
北大	城区点	2015.1/4/7/10	VOCs (103种)
北大	城区点	2014.10-11	VOCs (103种)
北大	城区点	2015.8-9	VOCs (103种)
北大	城区点	2014.5	NMHCs+OVOCs (68种)
曲周	乡村点	2014.6.11-2014.7.9	NMHCs (56种)
固城	区域传输点	2013.6.5-2013.7.16	NMHCs+OVOCs (68种)

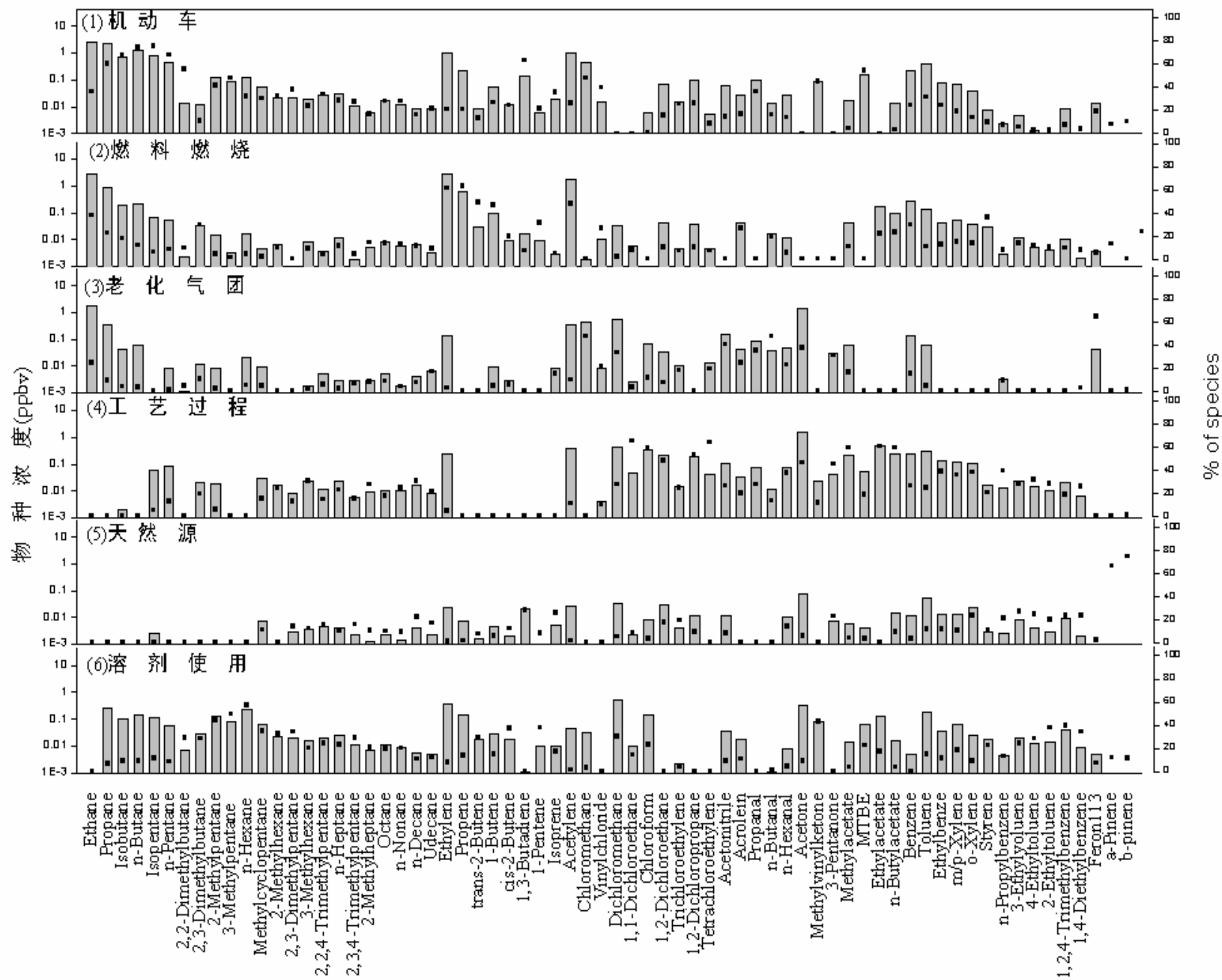


北大点2015年1月、4月、7月和10月VOCs化合物组浓度



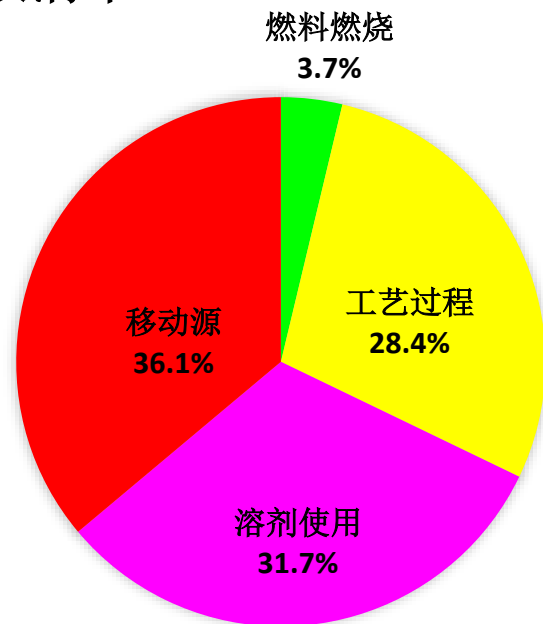
京津冀各站点夏季各类VOCs环境浓度

来源分析：北京城区2015年四个月

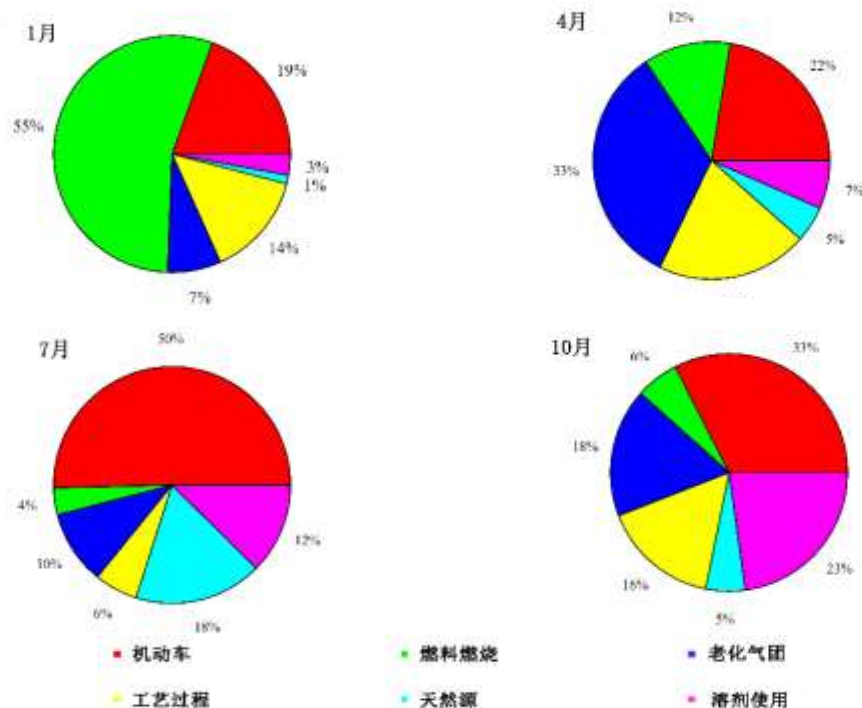


来源分析：北京城区2015年四个月

排放清单



PMF

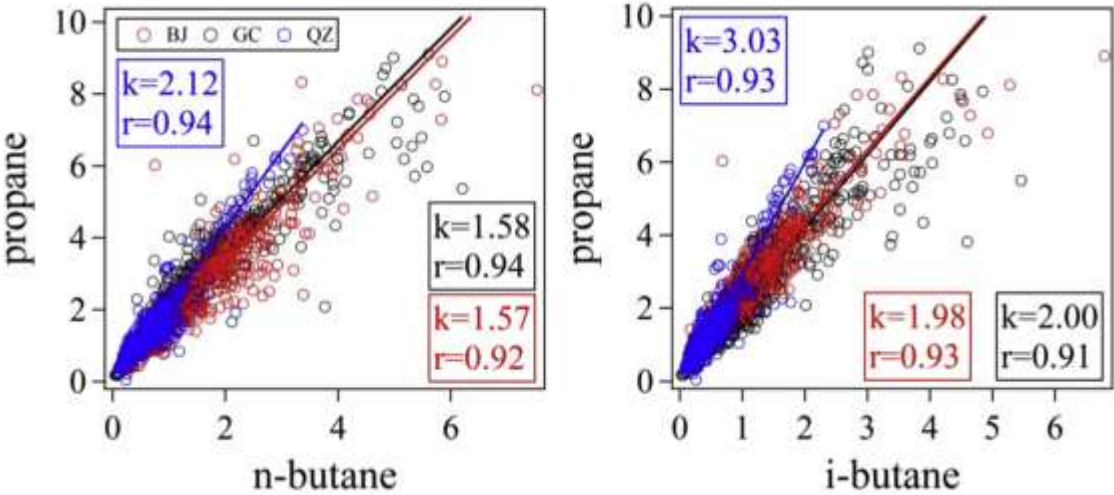


□本清单对移动源、溶剂使用源和工艺过程源的估算结果较为准确，但是通过统计数据和调查数据计算得到的燃料燃烧源严重低估了冬季燃料燃烧源的排放

北京市阅兵期间

	PMF (ppbv)			排放清单(tons/day)		
排放源	控制前	控制中	下降比例	控制前	控制中	下降比例
机动车	25.85	12.19	53%	374	180	52%
工业	6.33	2.27	64%	443	266	40%
燃料燃烧	4.64	3.55	23%	27	21	22%

来源分析：三站点夏季区域观测



排放清单和来源分析结果均表明机动车是京津冀地区重要的VOCs排放源

排放比法

$$E_{VOC} = E_{CO} \times ER_{VOC} \times MW_{VOC} / MW_{Ref}$$

其中， E_{VOC} 是VOC物种年排放量(Gg)

ER_{VOC} 是目标VOC物种相对于CO的排放比(ppbv (ppmv CO)⁻¹)

E_{CO} 是CO年排放量(Tg)

MW_{VOC} 和 MW_{CO} 分别是VOC和CO的相对分子量

CO排放量

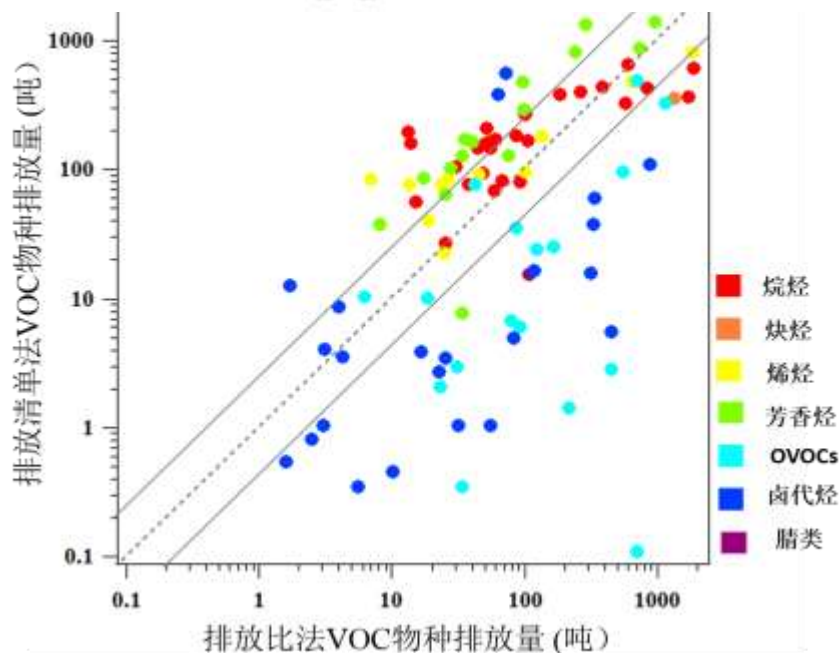
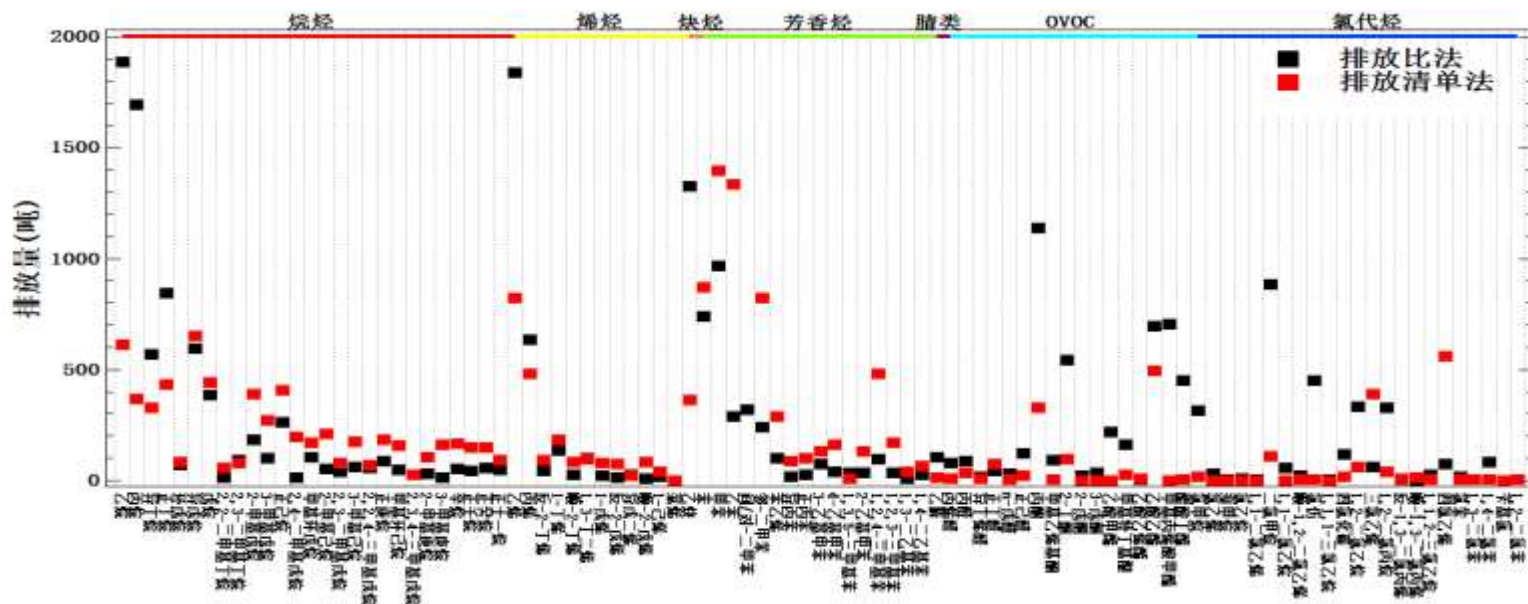
- MarcoPolo 2014年排放清单
(0.25° × 0.25°)

排放比

- 03:00-07:00的VOCs物种数据和CO环境浓度进行正交最小二乘法线性拟合



排放比法

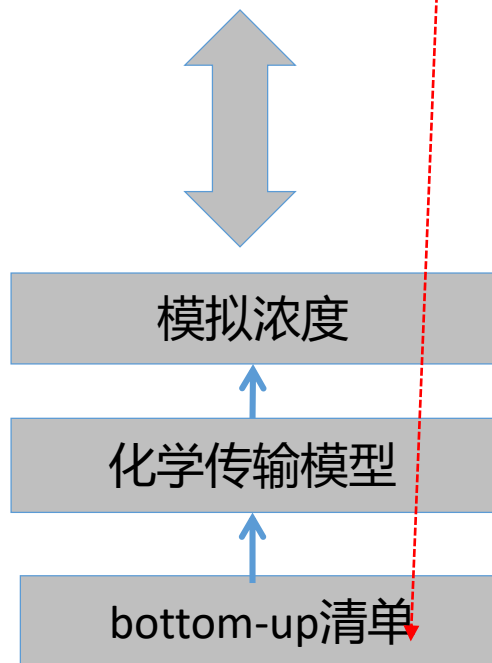


- 大部分NMHC年排放量较一致
- 乙烯、乙炔等不完全燃烧示踪物排放清单结果低于排放比结果
- 部分OVOCs和卤代烃排放清单结果低于排放比法计算结果。

卫星反演：反演算法

$$\text{VCD} = \text{SCD} / \text{AMF}$$

$$\Omega = \frac{1}{K_{\text{HCHO}}} \sum_i^n Y_i E_i$$



本研究所使用卫星反演排放清单基于OMI星载仪的HCHO柱浓度和IMAGESv2全球化学传输模型反演得到

该清单空间分辨率为 $0.25^\circ \times 0.25^\circ$

VCD：垂直柱浓度(molecules cm^{-2})

SCD：斜柱浓度(molecules cm^{-2})

AMF：大气质量因子

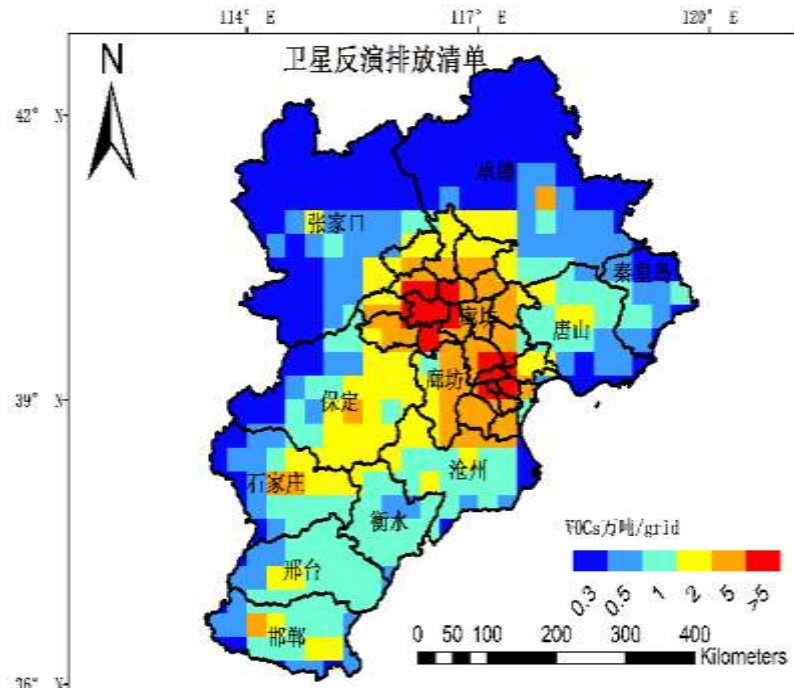
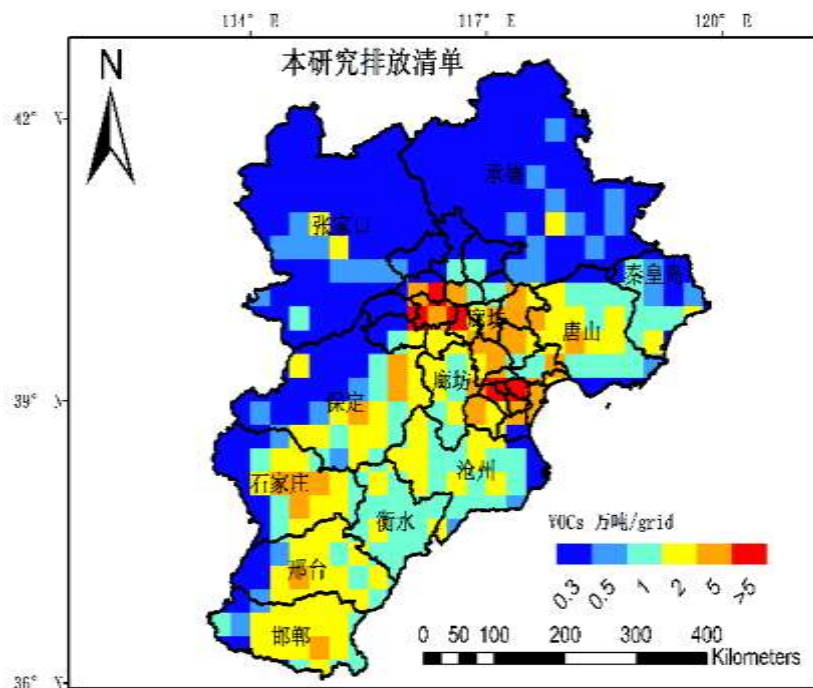
Ω ：卫星观测甲醛柱浓度(molecules cm^{-2})

Y_i ：VOCs物种*i*对应的甲醛产率(C^{-1})

E_i ：VOCs物种*i*的排放通量($\text{C cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)

K_i ：光解反应和氧化反应的一级消耗速率(s^{-1})

卫星反演：清单对比



- ❑ 本研究排放清单网格VOC排放量与卫星反演排放清单网格排放量相关性显著 ($p < 0.01$), 相关系数为0.754
- ❑ 两种方法排放计算VOCs排放量偏差为30%, 在合理误差范围内。
- ❑ 两种排放清单VOCs排放量高值和低值区的分布也较一致

清单校正

化石燃料固定燃烧源

- PMF受体模型源解析结果以及排放比结果均表明本研究建立排放清单对燃料燃烧源的贡献偏低，冬季偏低现象尤为明显。
- 统计数据或调查数据中居民燃料燃烧量与实际燃烧量的偏差，可能是导致本排放清单对冬季燃料燃烧源VOCs排放量存在较大低估的原因

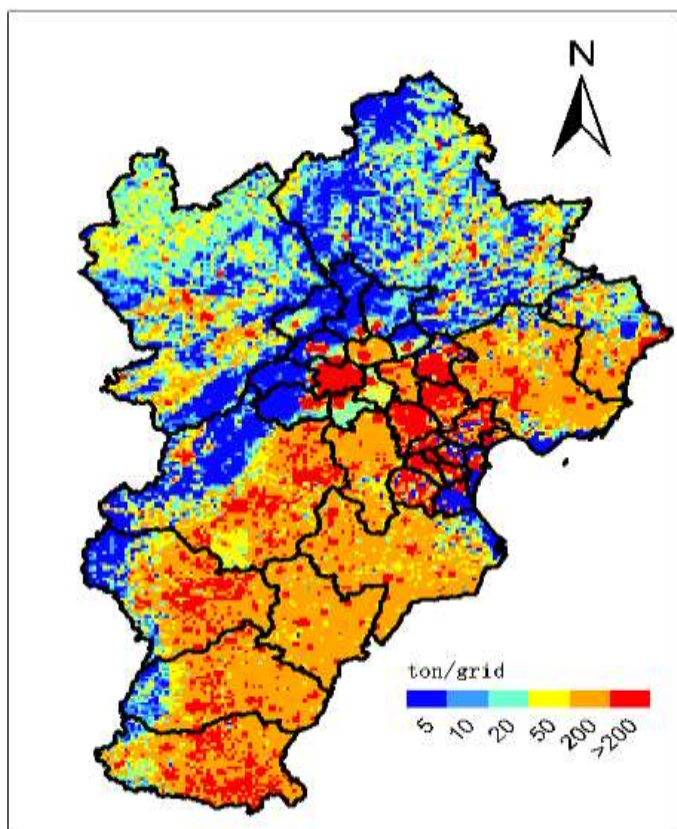
煤类型	炉类型	排放因子(g/kg)	来源
块煤	无烟道金属煤炉	0.0928	Zhang et al., 2000
		0.0468	Tsai et al., 2003
	有烟道金属煤炉	0.00543	Zhang et al., 2000
蜂窝煤	无烟道金属煤炉	0.0506	Tsai et al., 2003
	有烟道金属煤炉	0.000324	Zhang et al., 2000
		0.0019	Tsai et al., 2003
未加工粉煤	无烟道金属煤炉	2.41	Zhang et al., 2000
		6.48	Tsai et al., 2003
	有烟道金属煤炉	1.3	Zhang et al., 2000
		4.977	Tsai et al., 2003
洗过的粉煤	有烟道金属煤炉	1.99	Zhang et al., 2000

- 利用PMF解析结果校正排放清单化石燃料固定燃烧源排放量
PMF源解析也存在一定不确定性，本研究尝试使用PMF解析结果校正该排放源排放量，以期获得更接近真实排放量的结果。

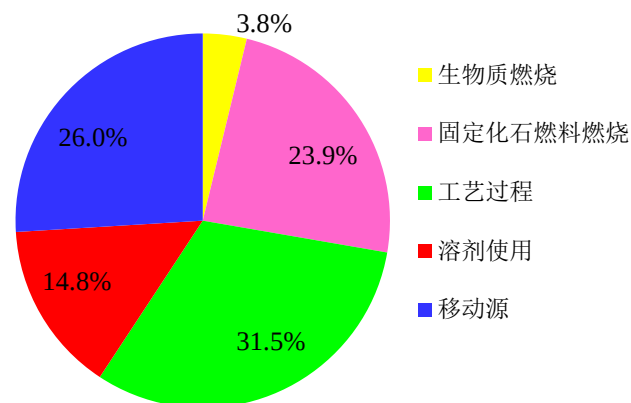
排放清单 京津冀地区人为源VOCs总体排放特征

2014年人为源VOCs排放量 (万吨)

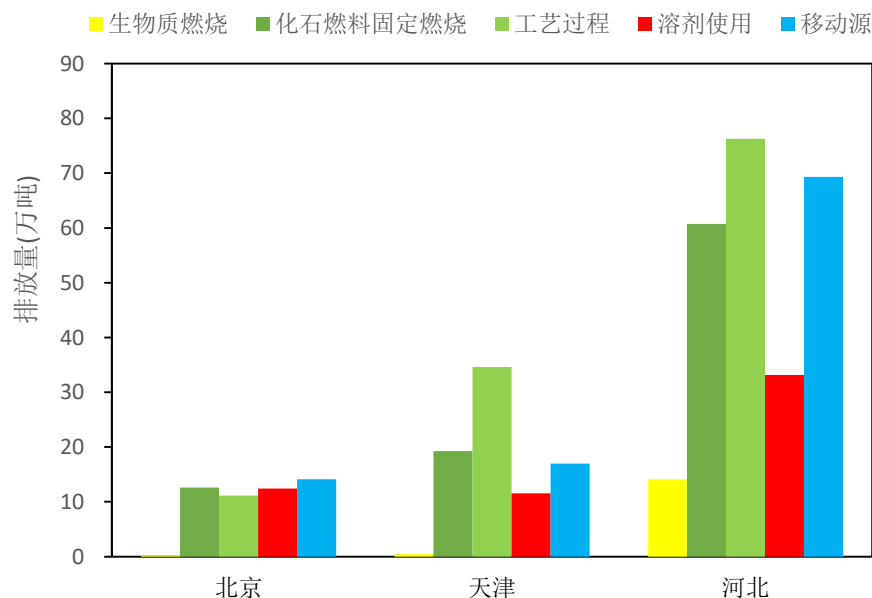
北京市	50.39
天津市	82.86
河北省	253.37
合计	386.75



2014年京津冀人为源VOCs排放量空间分布(3km×3km)

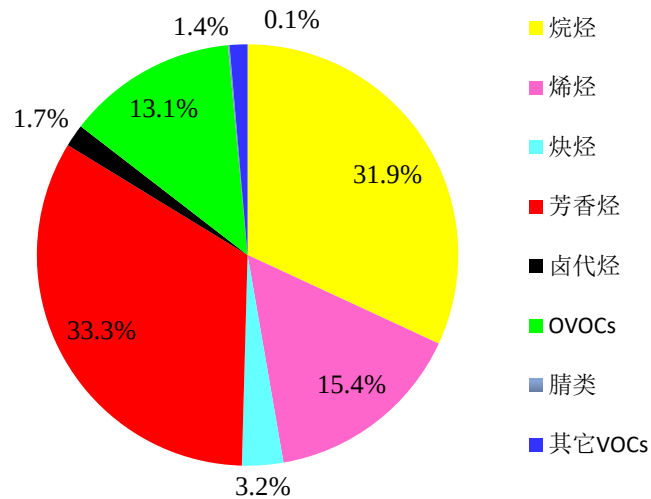


2014年京津冀地区人为源VOCs排放源贡献

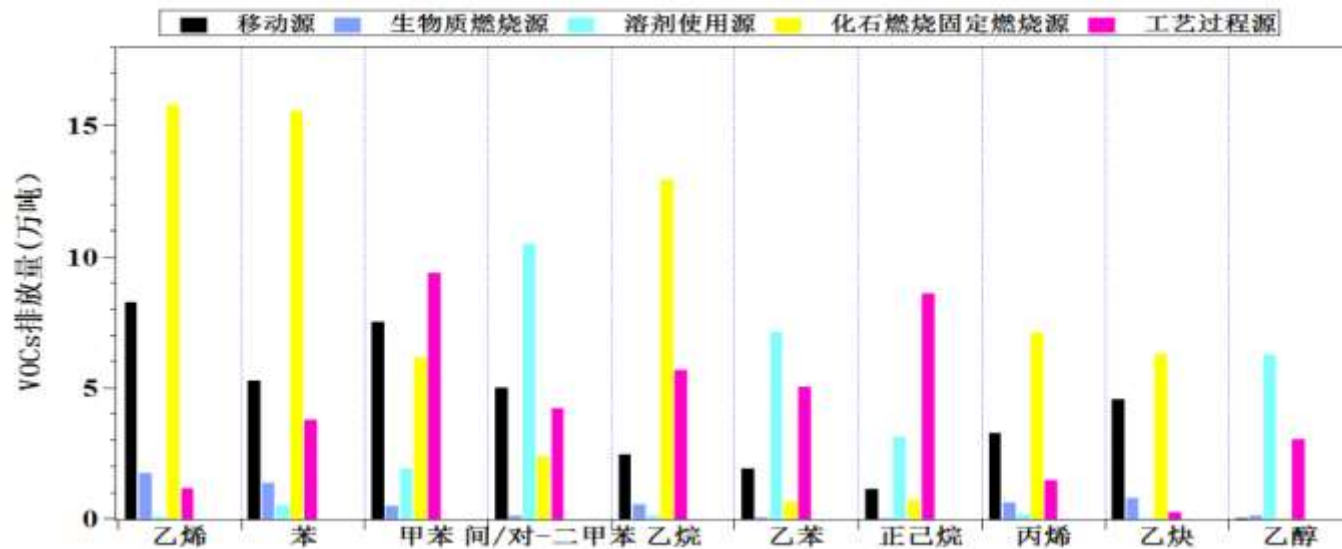


2014年京津冀各省、直辖市人为源VOCs排放量贡献率

京津冀地区人为源VOCs总体排放特征



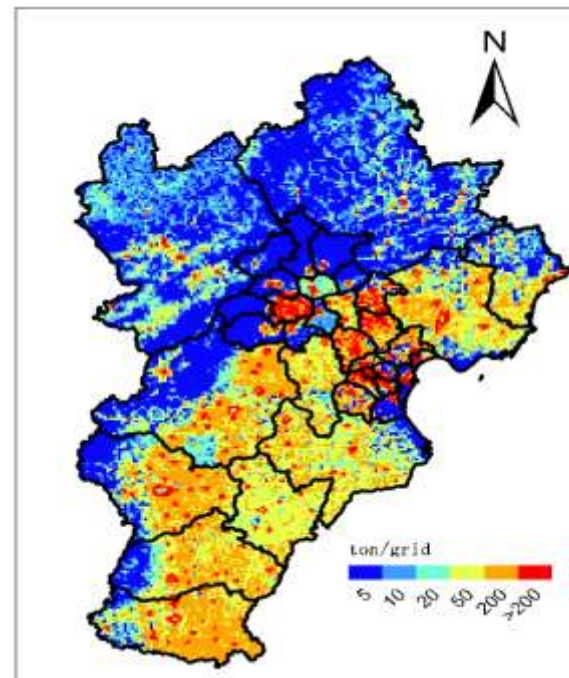
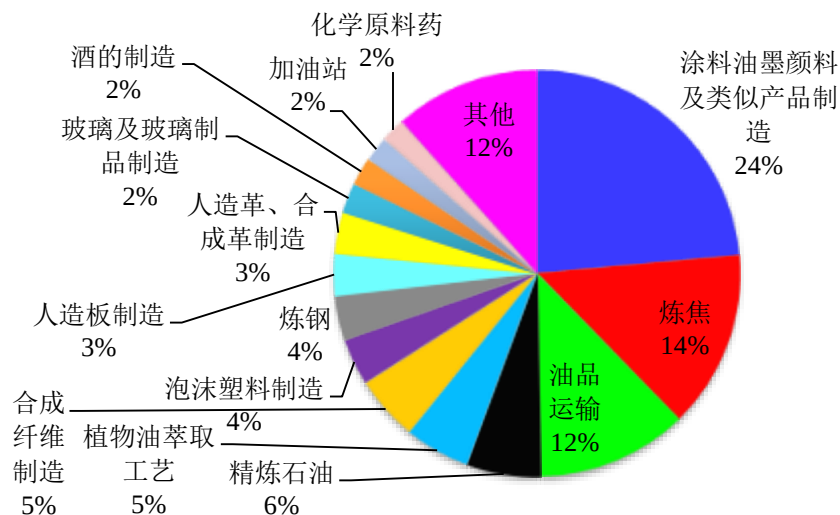
2014年京津冀地区工艺过程源VOCs排放化学组成



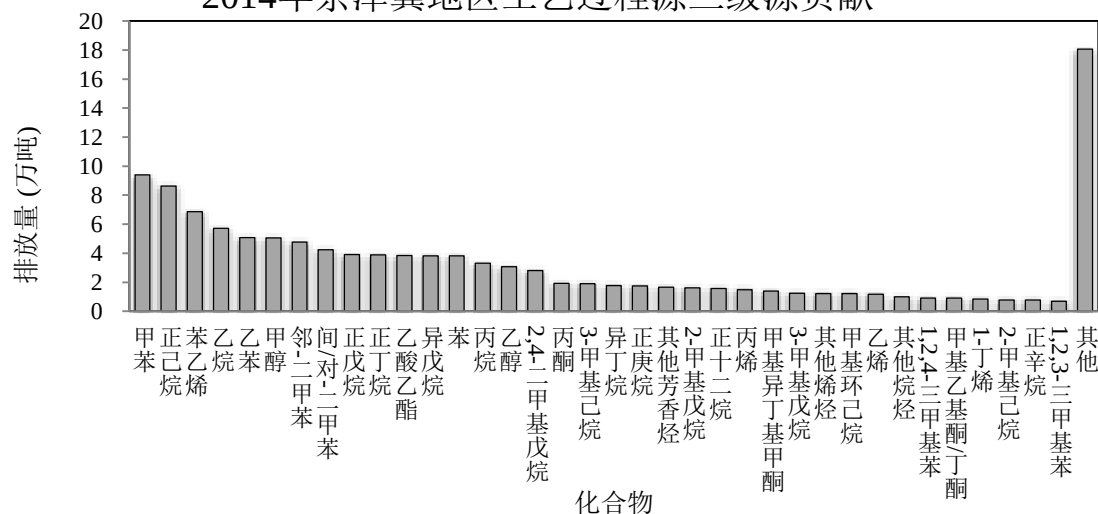
2014年京津冀地区排放量前十VOC物种及其来源

工艺过程源

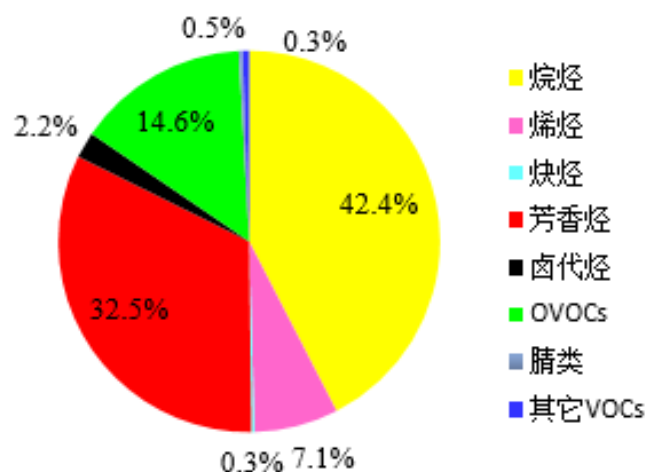
京津冀工艺过程源排放量为122.05万吨，北京、天津和河北分别排放11.11万吨、34.64万吨和76.30万吨



2014年京津冀地区工艺过程源三级源贡献



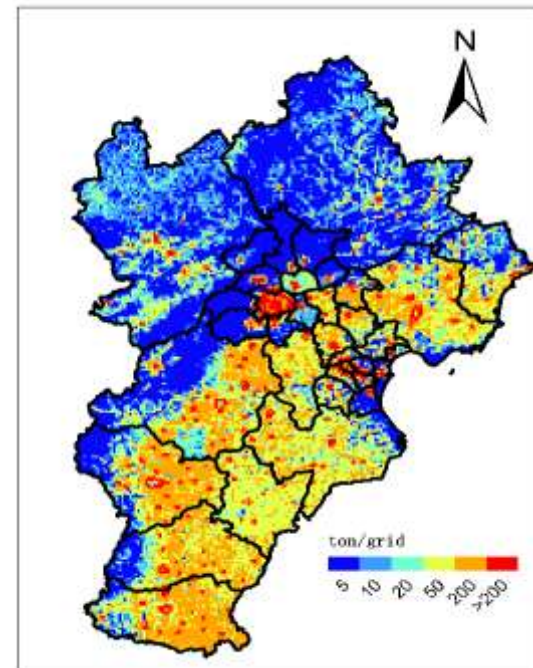
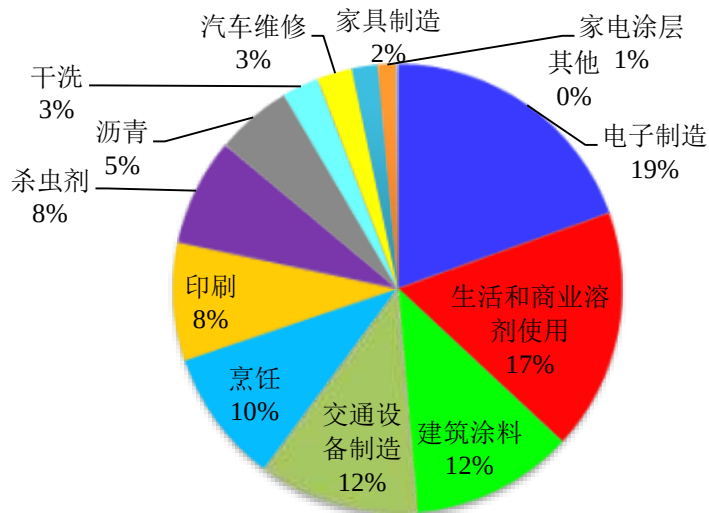
2014年京津冀地区工艺过程源VOCs物种排放量



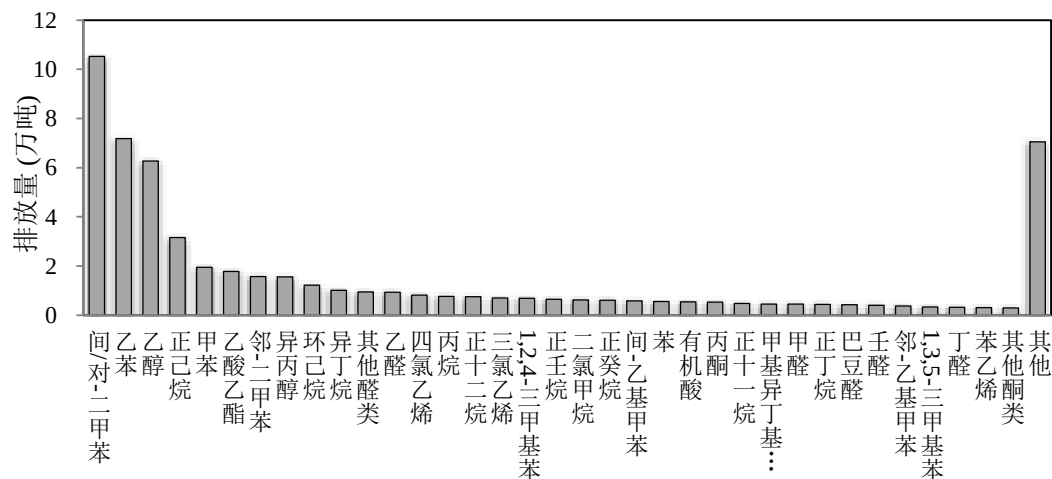
2014年京津冀地区工艺过程源VOCs排放化学组成

溶剂使用源

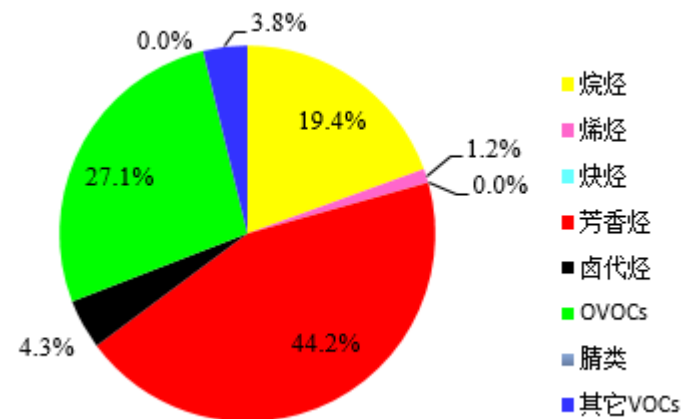
京津冀溶剂使用源排放量为57.15万吨，北京、天津和河北分别排放12.41万吨、11.55万吨和33.18万吨



2014年京津冀地区溶剂使用源三级源贡献



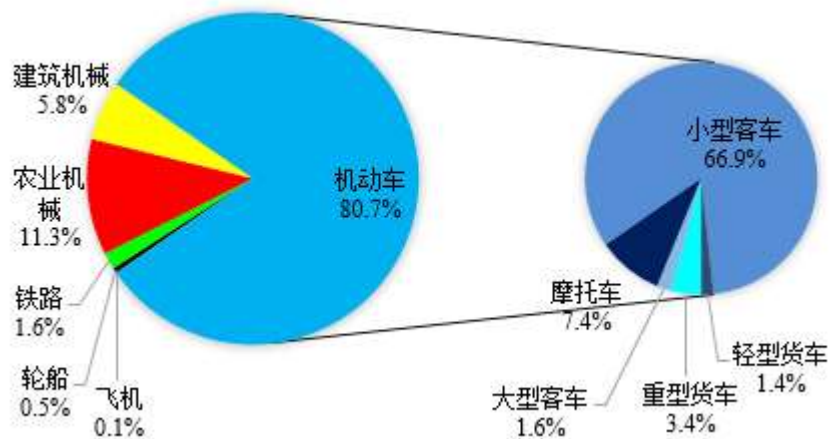
2014年京津冀地区溶剂使用源VOCs物种排放量



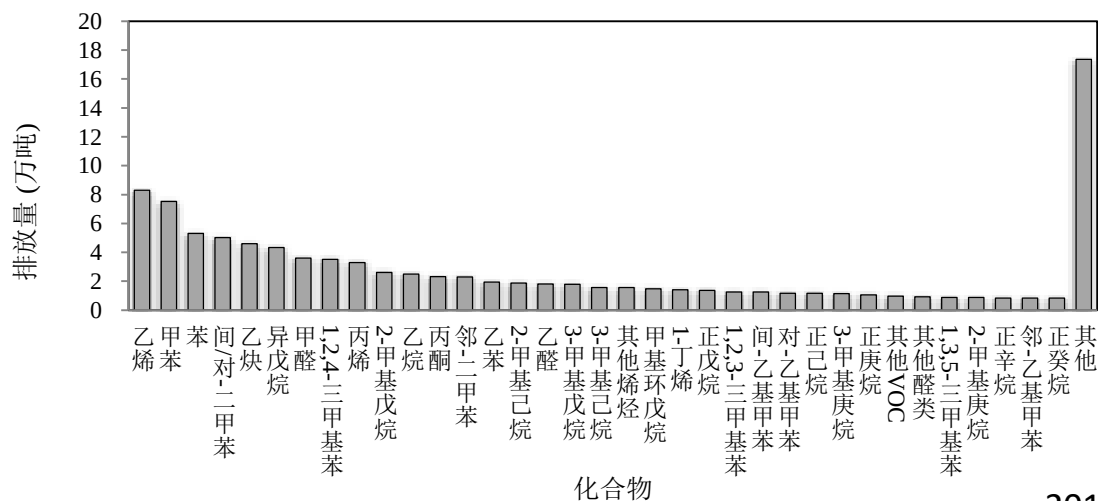
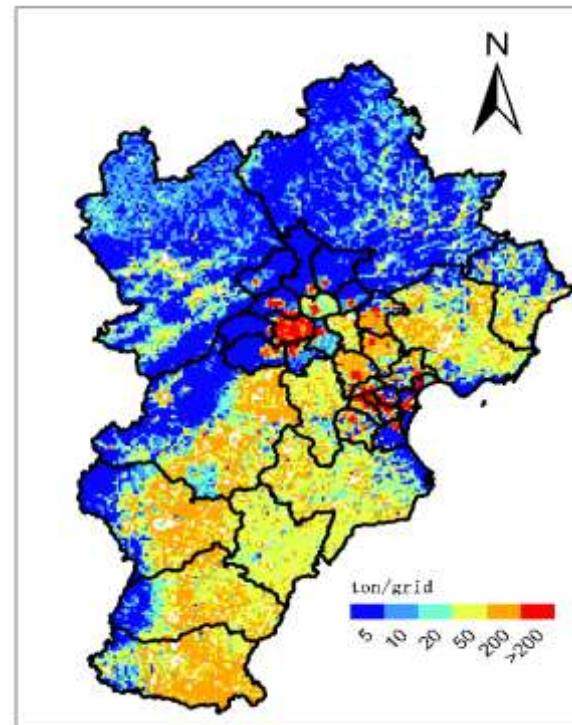
2014年京津冀地区溶剂使用源VOCs排放化学组成

移动源

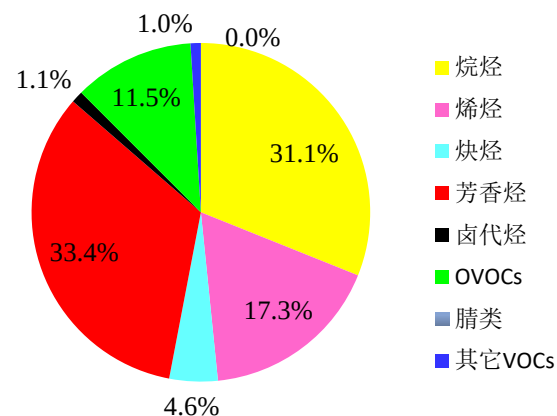
京津冀地区移动源VOCs排放量为100.46万吨，北京、天津和河北分别排放14.12万吨、17.00万吨和69.34万吨



2014年京津冀地区移动源VOCs排放量贡献



2014年京津冀地区移动源VOCs物种排放量



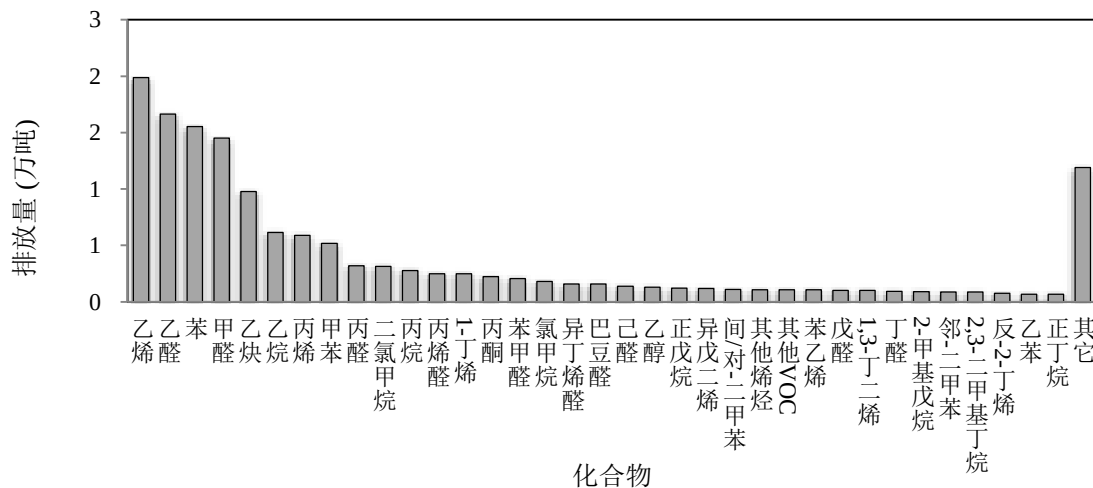
2014年京津冀地区移动源VOCs排放化学组成

生物质燃烧源

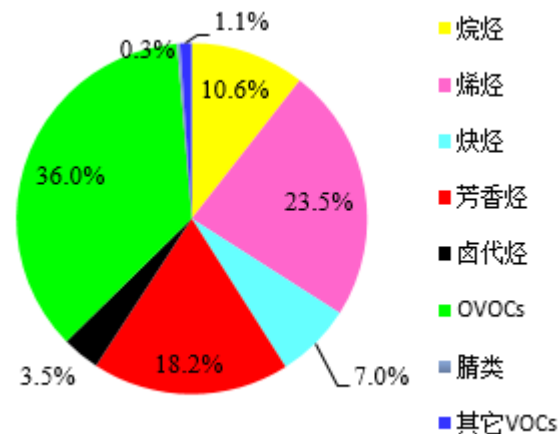
京津冀地区生物质燃烧源排放量为14.65万吨，北京、天津和河北分别排放0.15万吨、0.42万吨和14.09万吨



2014年京津冀地区生物质燃烧源贡献

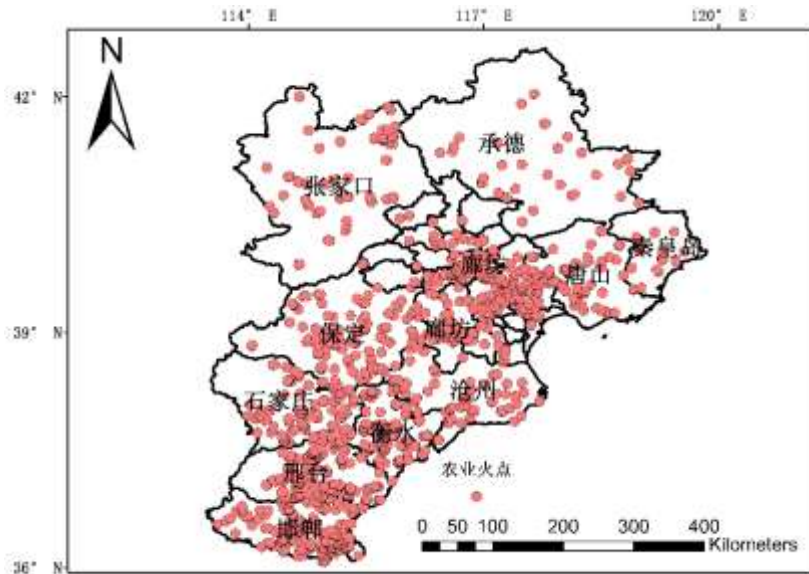


2014年京津冀地区生物质燃烧源VOCs物种排放量



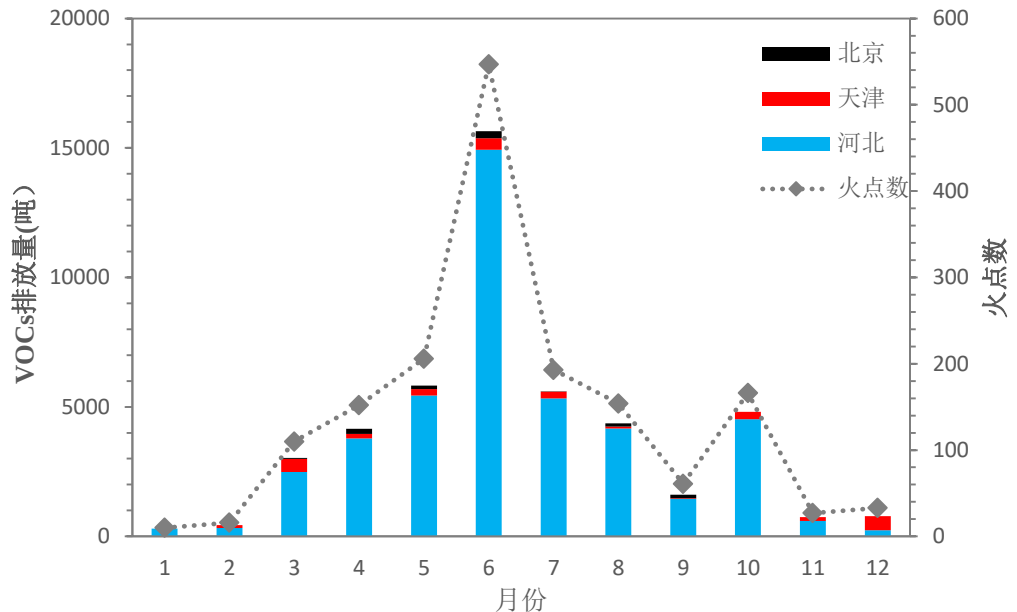
2014年京津冀地区生物质燃烧源VOCs排放化学组成

生物质燃烧源：秸秆露天焚烧



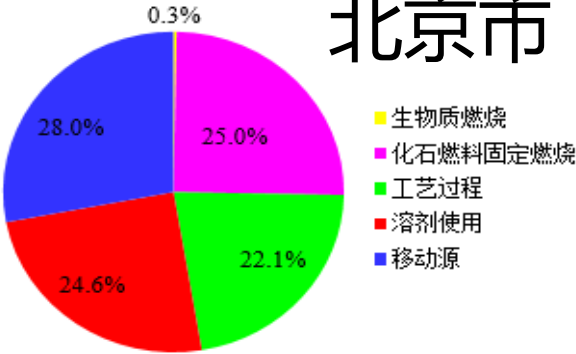
- 2014年北京市、天津市和河北省农业火点数分别为74、128和1473个
- 秸秆焚烧现象主要集中于河北省，尤其是邯郸市和邢台市

- 2014年京津冀地区秸秆焚烧主要集中于小麦收割的6月份；5月、7月和10月也有较多秸秆露天焚烧现象发生；1月、2月、11月和12月秸秆露天焚烧排放污染物较少。

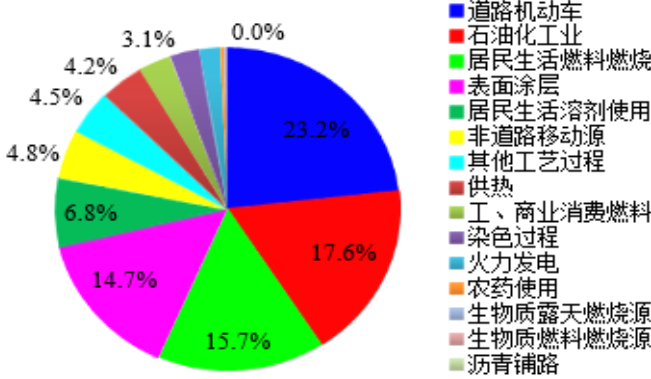


北京市人为源VOCs排放量为50.39万吨

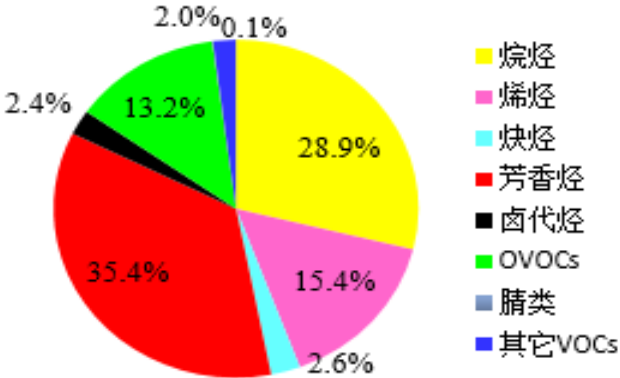
北京市



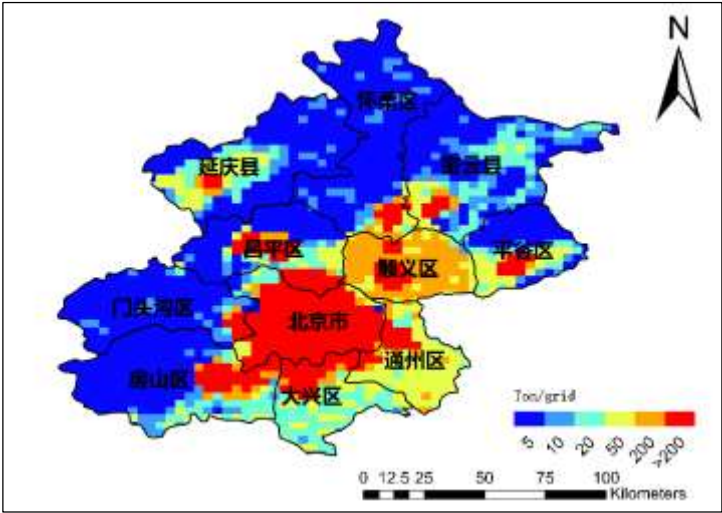
2014年北京市人为源VOCs一级排放源贡献比例



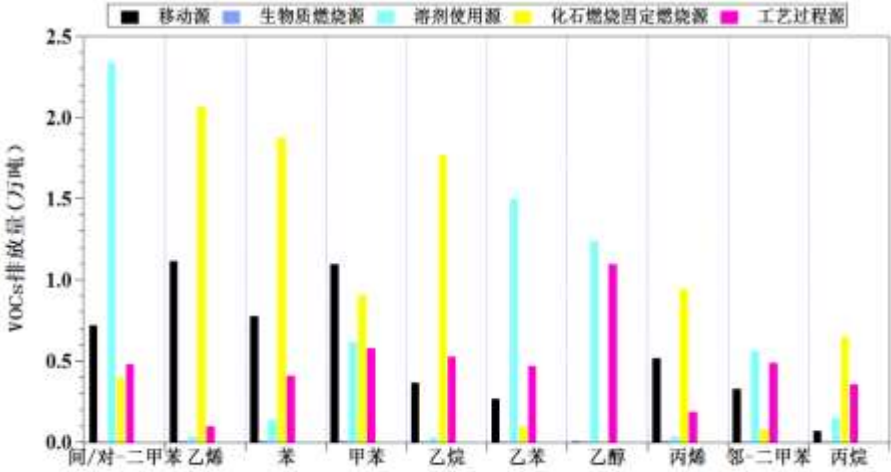
2014年北京市人为源VOCs二级子源排放量贡献比例



2014年北京市VOCs排放化学组成

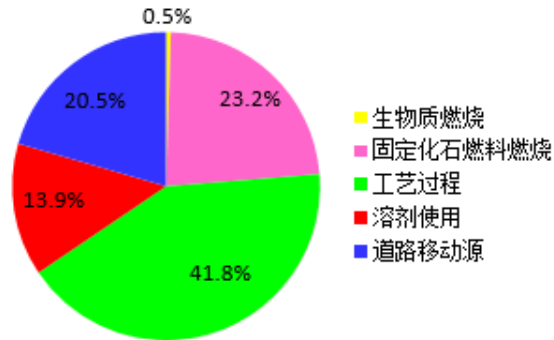


北京市人为源VOCs排放量空间分布(3km×3km)

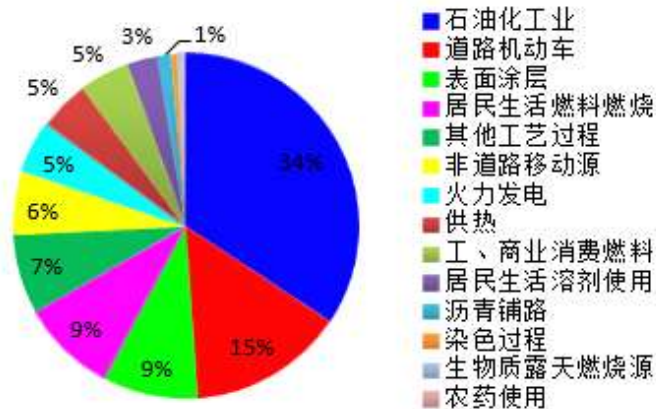


2014年北京市排放量前十VOC物种及其来源

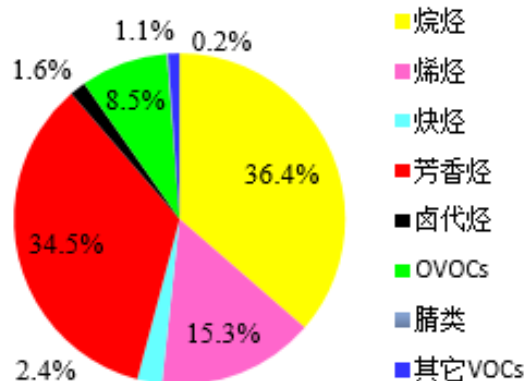
天津市人为源VOCs排放量为82.86万吨



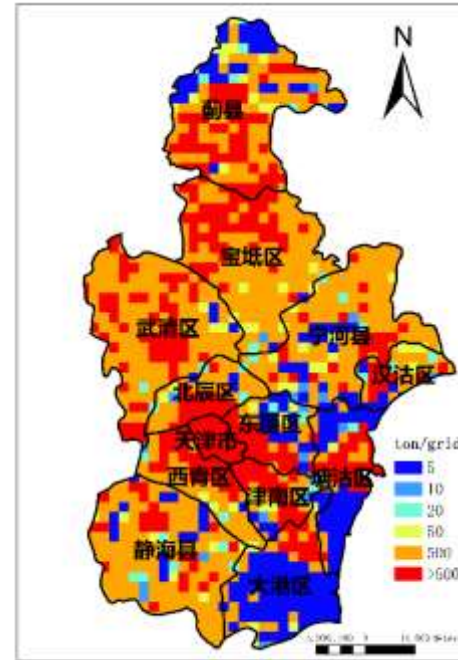
2014年天津市人为源VOCs排放源贡献比例



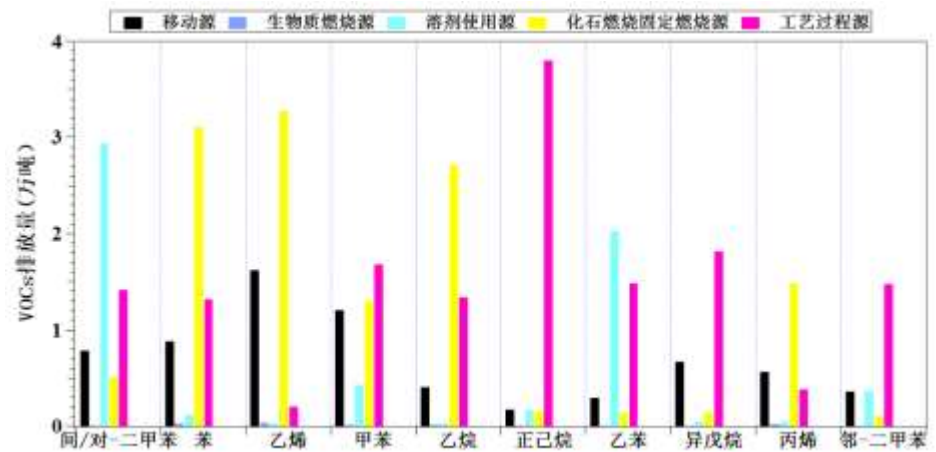
2014年天津市人为源VOCs二级排放源贡献比例



2014年天津市VOCs排放化学组成



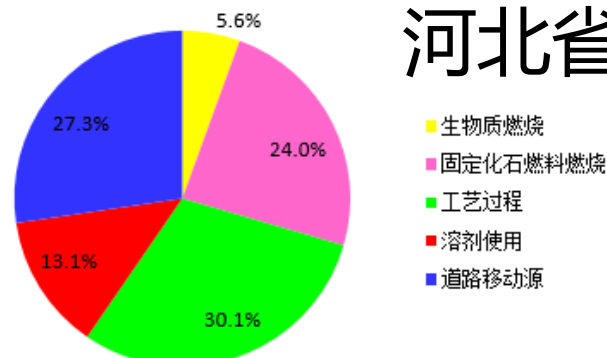
天津市人为源VOCs排放量空间分布(3km×3km)



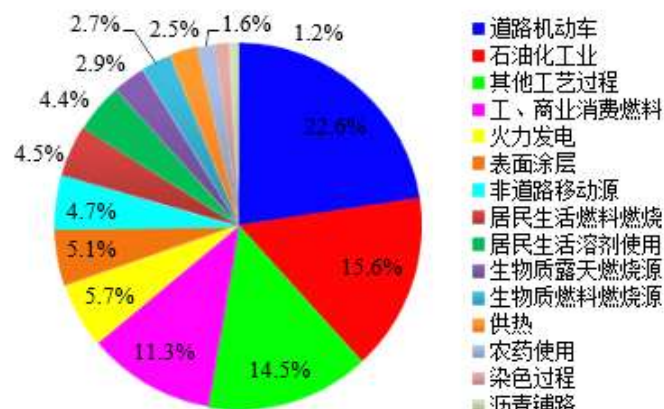
2014年天津市排放量前十VOC物种及其来源

河北省人为源VOCs排放量为253.67万吨

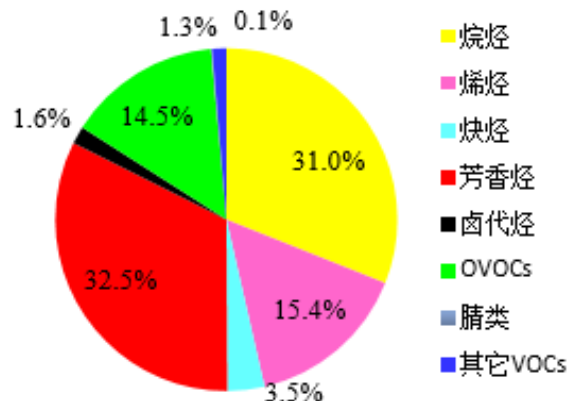
河北省



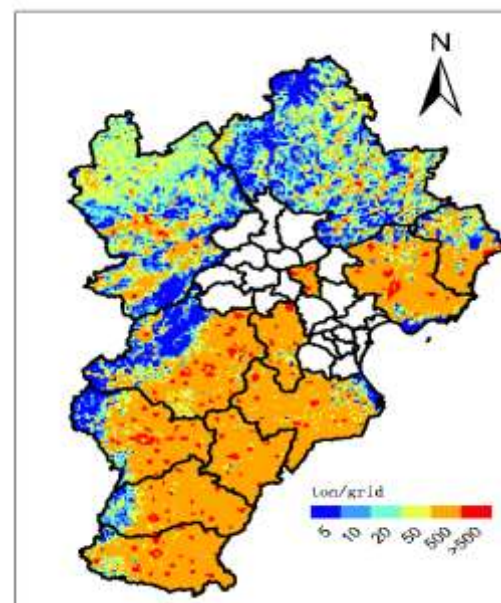
2014年河北省人为源VOCs排放源贡献比例



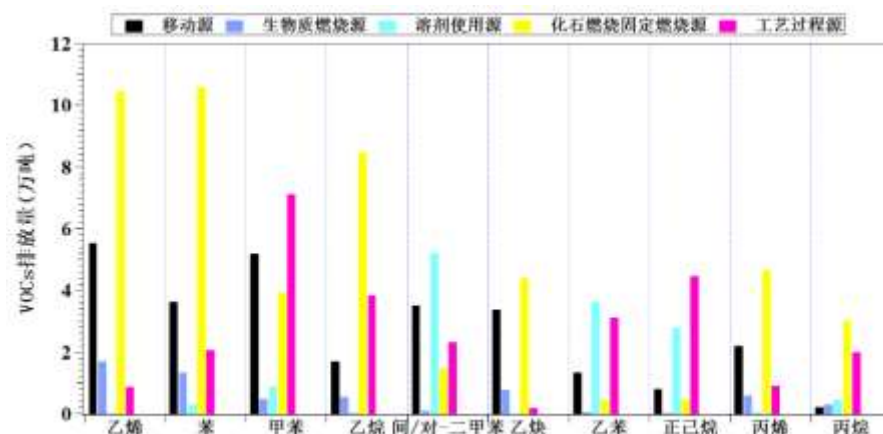
2014年河北省人为源VOCs二级排放源贡献比例



2014年河北省VOCs排放化学组成



河北省人为源VOCs排放量空间分布(3km×3km)



2014年河北省排放量前十VOC物种及其来源

谢谢

请各位专家批评指正！