

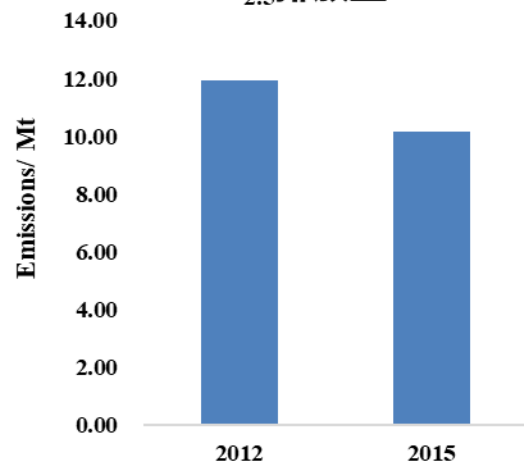
全国人为源排放清单建立中的关键问题

王书肖

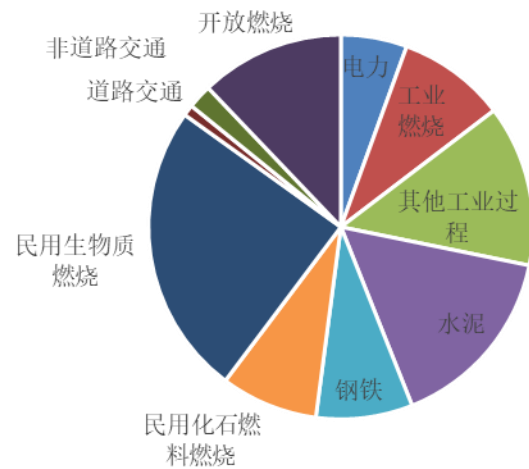
清华大学

全国人为源大气污染物排放及行业分布：PM_{2.5} & SO₂

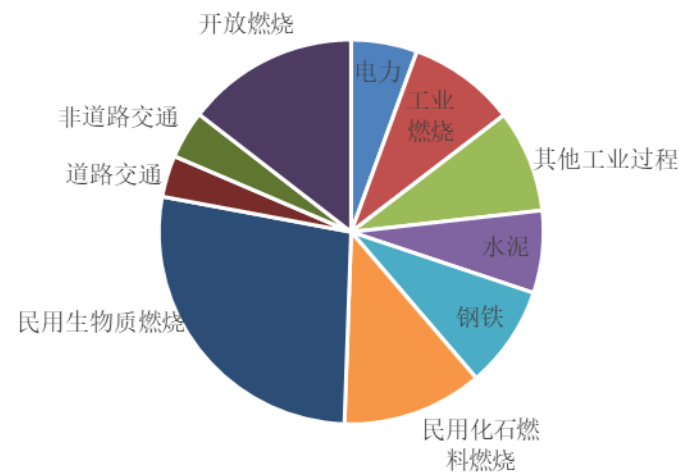
PM_{2.5}排放量



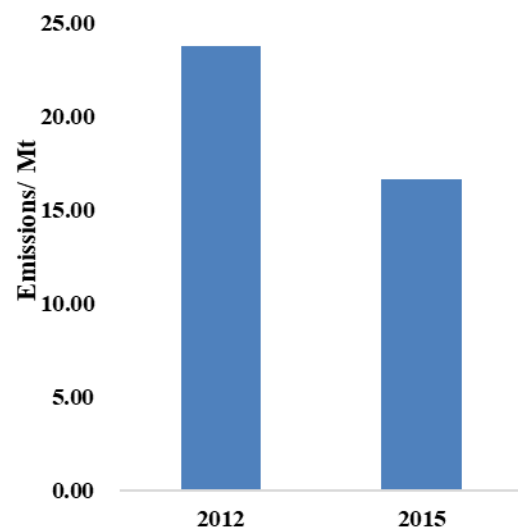
2012



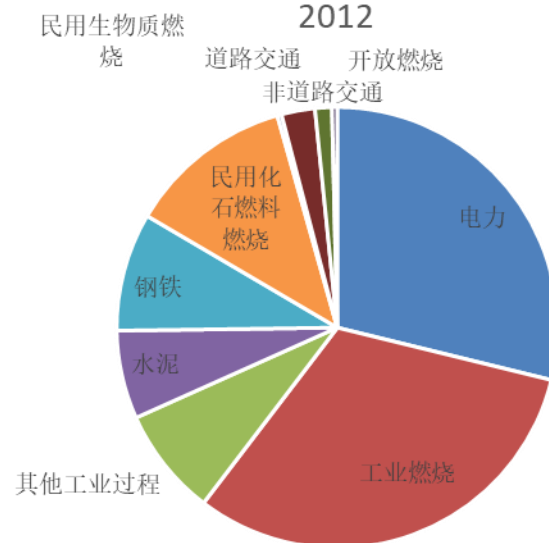
2015



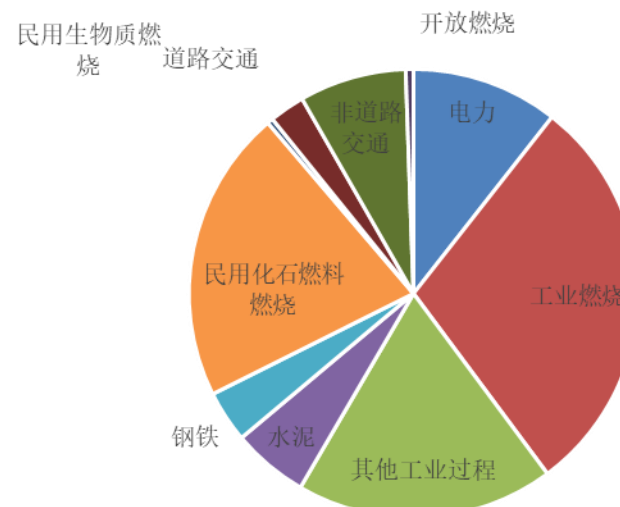
SO₂排放量



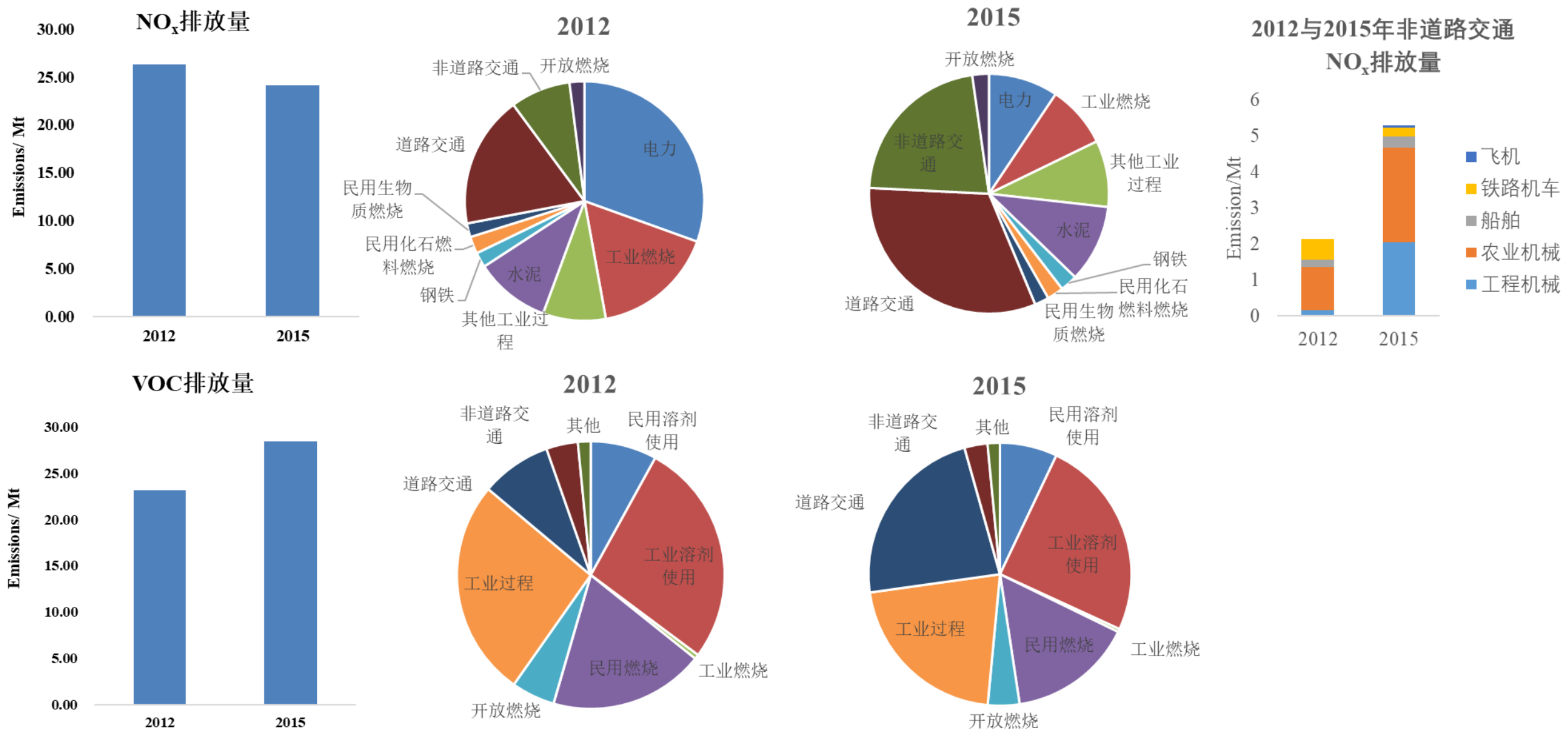
2012



2015



全国人为源大气污染物排放及行业分布：NO_x & VOCs



人为源排放清单建立的三个关键问题

➤ 降低排放量估算的不确定性

- 准确的排放因子和活动水平

➤ 提升源排放清单的时空分辨率

- 工业大点源、民用燃烧源、农业 NH_3 源

➤ 建立本地化的动态源排放化学成分谱

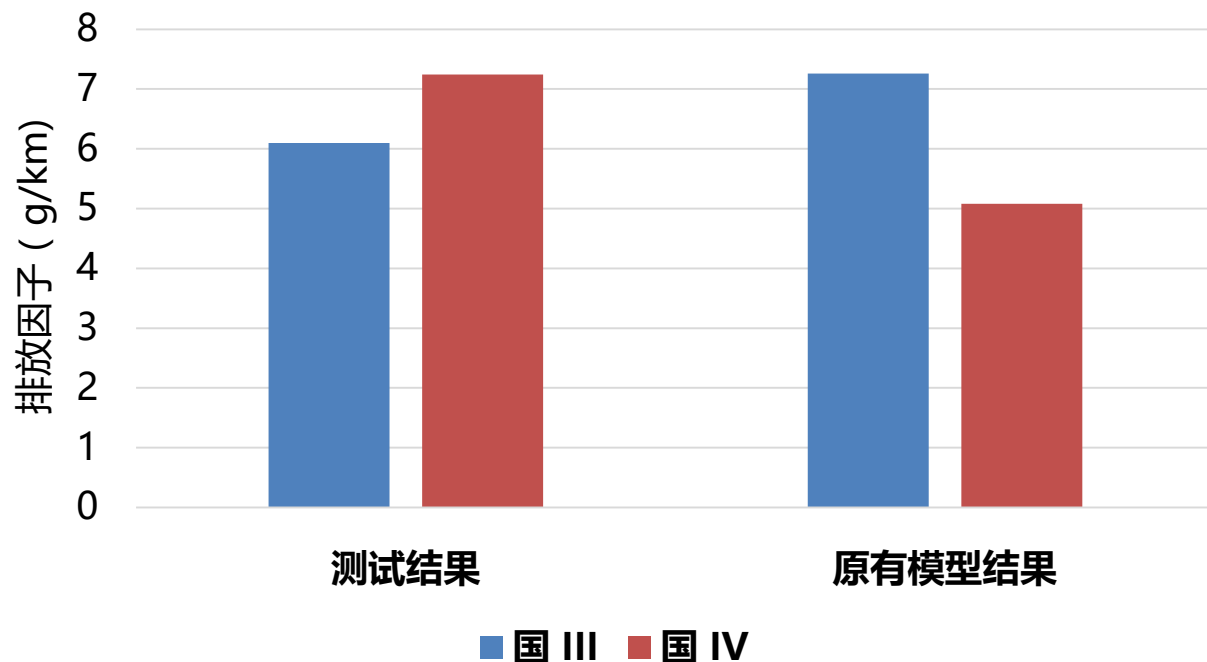
- 活性组分、PM、VOCs

交通源：更新排放因子和蒸发排放

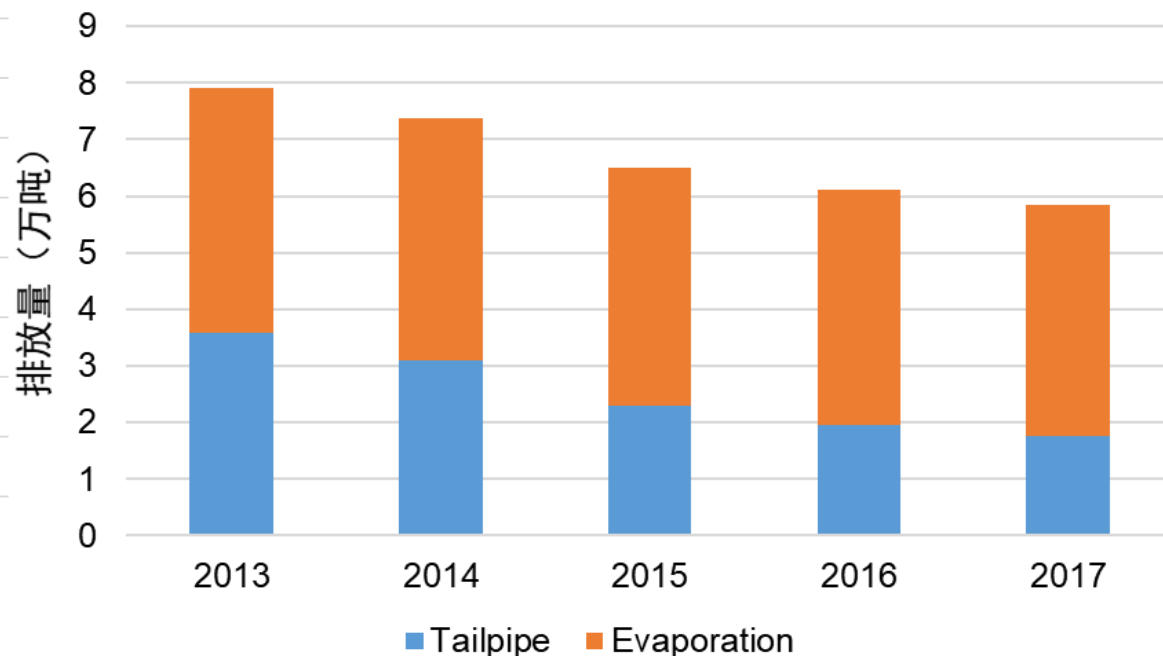
实际道路测试结果表明：在 SCR 正常工作下，国 IV 柴油车和国 III 柴油车排放水平相当；SCR 不工作时，国 IV 柴油车排放甚至高于国 III 柴油车

2015年全国的机动车HC排放中有将近40%来自蒸发排放，在北京等新车比例更高的大城市中，蒸发排放的占比已经过半

NO_x 排放因子

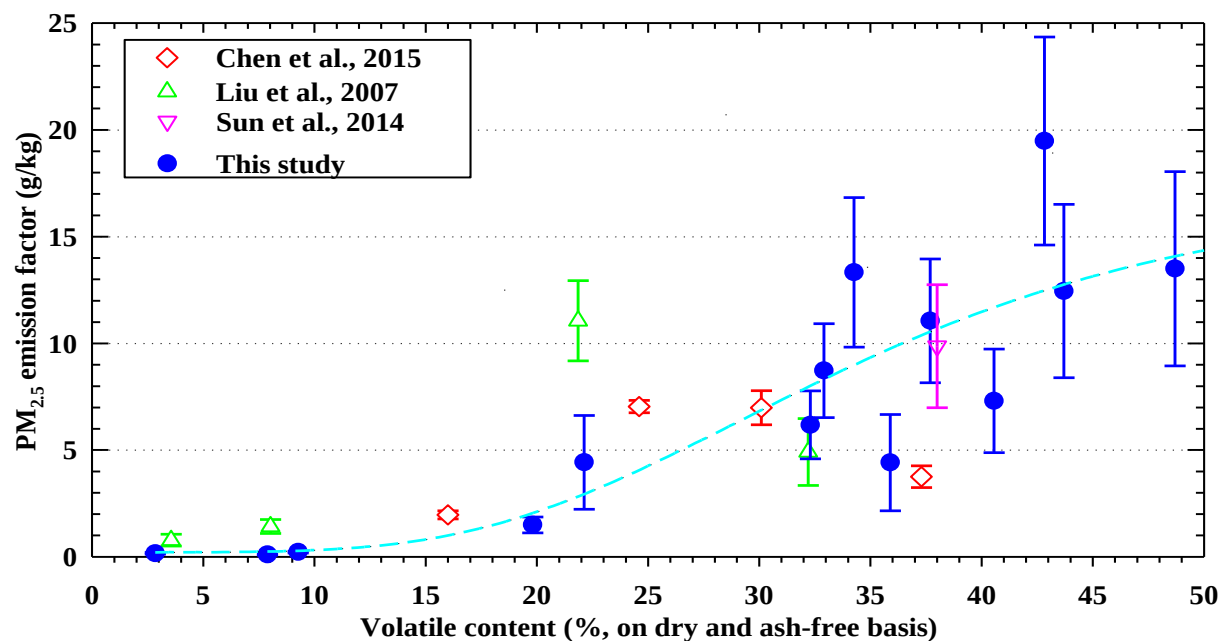


THC



民用燃烧源：燃料/炉型对排放因子的影响

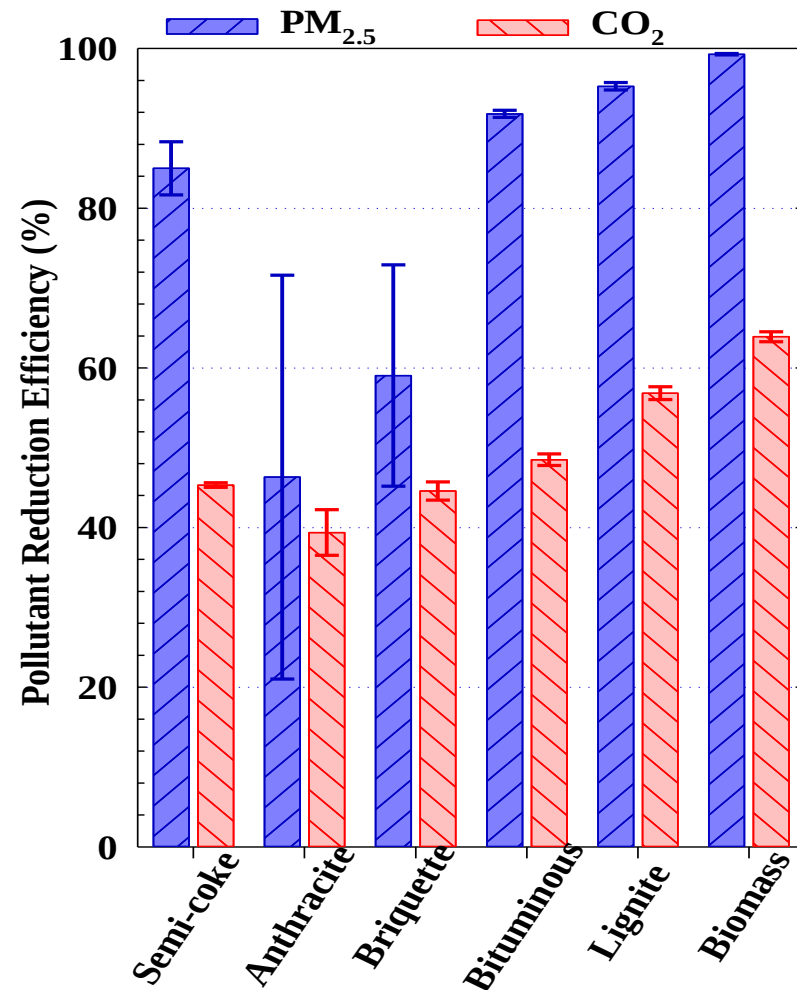
传统采暖炉：
排放因子随煤的挥发分含量增加



基于这些对比结果，在民用燃煤和生物物质的排放清单中考虑燃料的挥发分含量和燃烧采用的技术。

Fuel, 2016, 182, 780

不同燃料燃烧技术：
排放因子差异较大

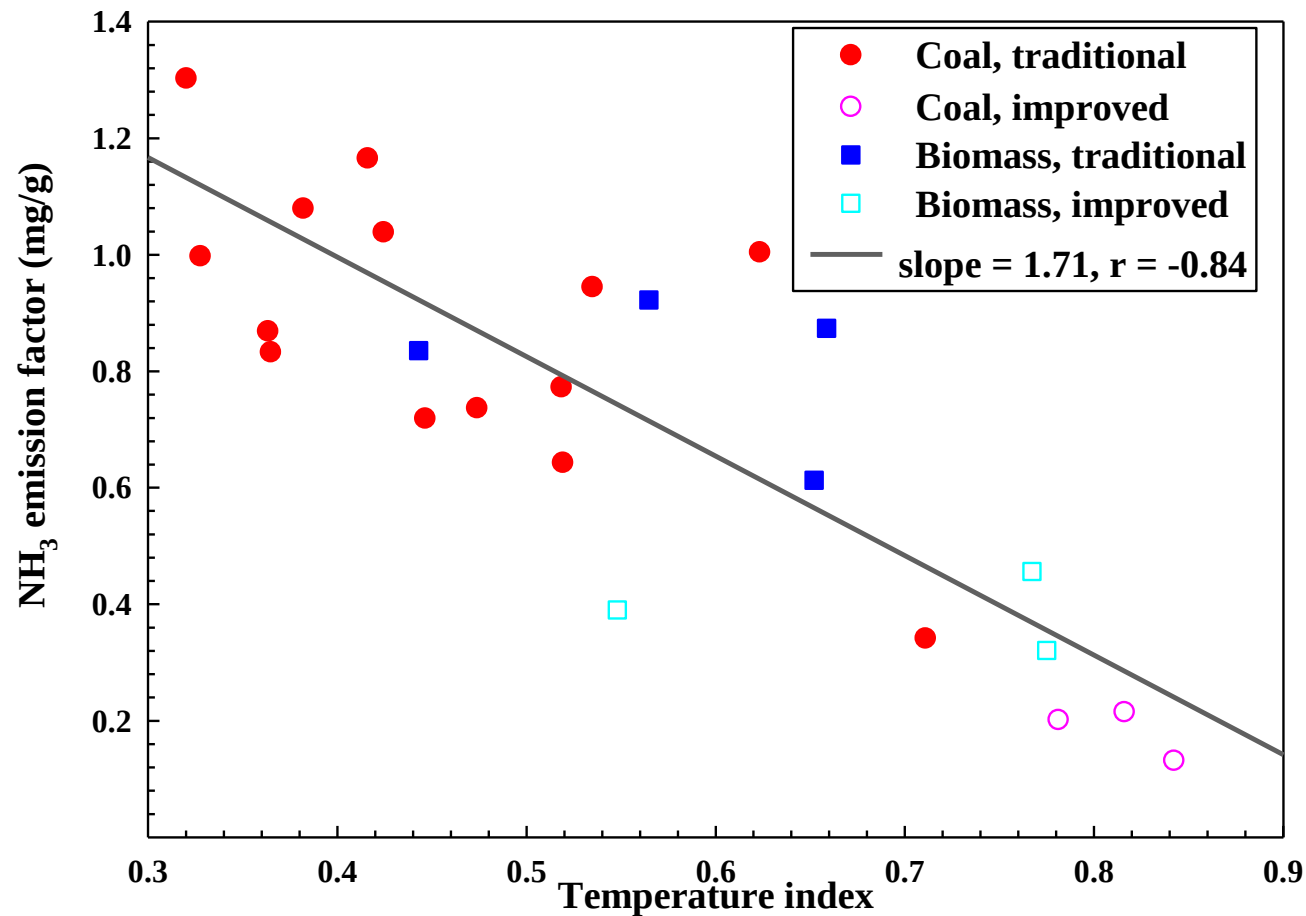


EST Lett.
2016, 3, 369

民用燃烧源：NH₃排放因子

由于不充分燃烧，传统民用炉具的氨气排放因子达到 0.87 ± 0.23 mg/g，高燃烧效率的炉具为 0.29 ± 0.12 mg/g，两者均远高于工业燃煤电厂的排放因子 ~ 0.02 mg/g。

在非农业氨排放源中，民用燃煤和生物质的氨气排放量不可忽略。



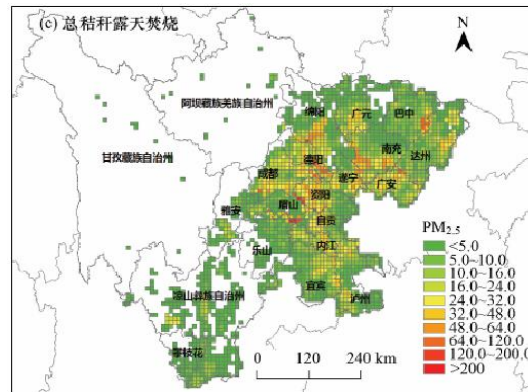
生物质开放燃烧源：排放清单计算方法

1. 传统定量算法：

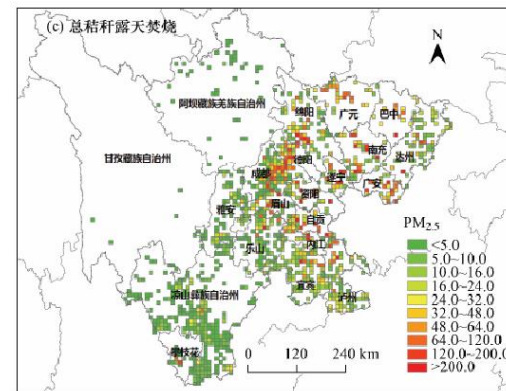
- **不确定性大**：生物质燃烧量不易确定。
- **空间分辨率低**：将排放总量按照人口、农田和火点分配。
- **时间分辨率低**：经验分配或按照农田耕作时间分配。
- **难以动态更新**：排放因子和燃烧效率等均取恒定值。

2. 基于卫星火点的算法：

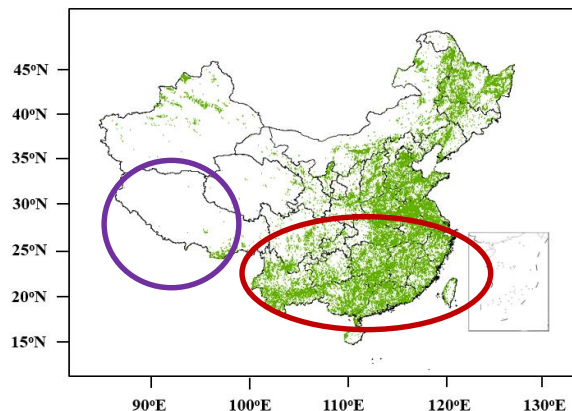
- **卫星过境时间影响**：在上午10:30到下午1:30之外的燃烧活动无法探测到。
- **气象条件影响**：在重污染，云雨天气时，会对火点探测构成干扰。
- **其他燃烧源的影响**：基于热异常的卫星探测难以分辨火点是否是生物质燃烧



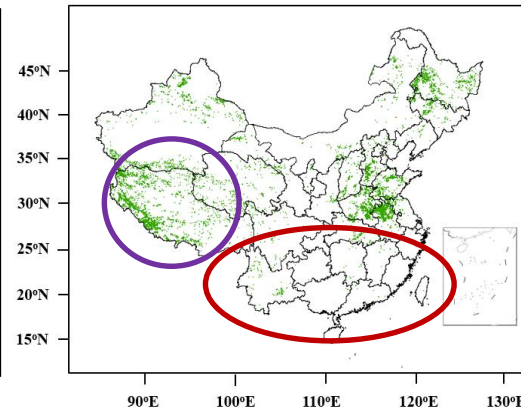
基于农田分配



基于火点分配



MODIS Active Fire Product：基于热感应技术，受**卫星过境时间**的影响，**可以探测到非常小的火点**。不受气象条件的影响。



MODIS Burned Area Product：基于地表反射变化，**不受卫星过境影响**，但受**云遮掩和极端天气**的影响。

生物质开放燃烧源：动态排放清单计算方法

通过多源卫星数据融合，结合本地化的排放因子数据、植被图数据以及由植被指数图建立的动态燃烧效率参数，计算得到全国高时空分辨率的开放生物质燃烧排放清单。

$$E_i = \sum_{j=1}^n BA_{x,t} \times BL_x \times FB \times EF_{i,j}$$

燃烧面积

本地化生物量

燃烧效率

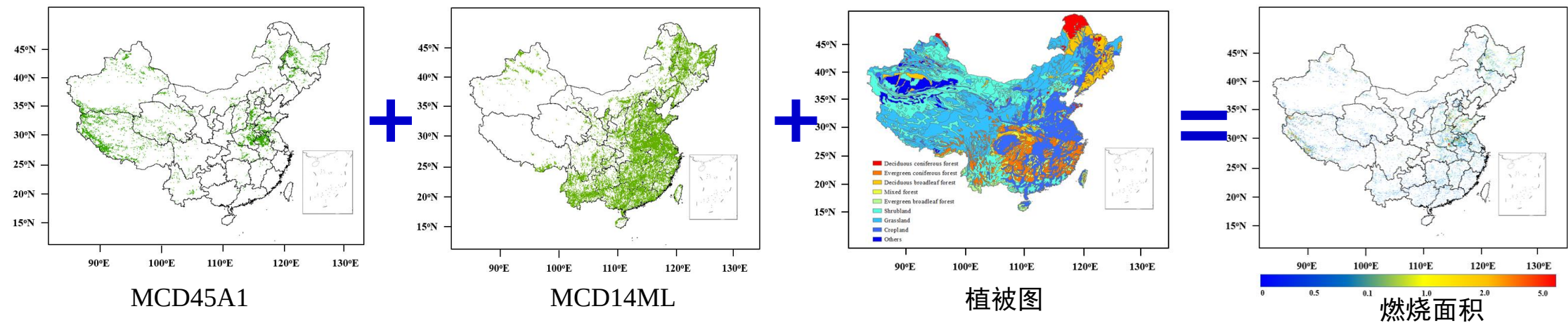
本地化排放因子

$$BA_{sf}(i, t, v) = FC_{out}(i, t, v) \times \alpha_{r,s,v} \times \gamma_{r,s,v}$$

每个火点所占面积

梯度系数

火点燃烧面积：

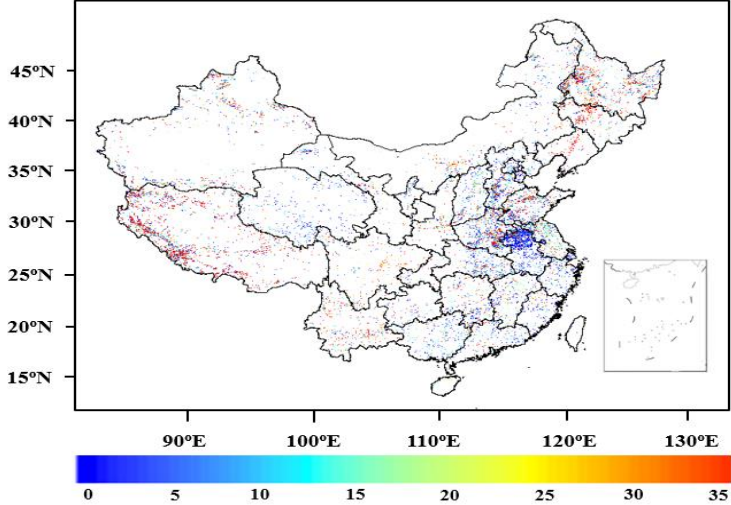


提取火点燃烧位置及燃烧面积

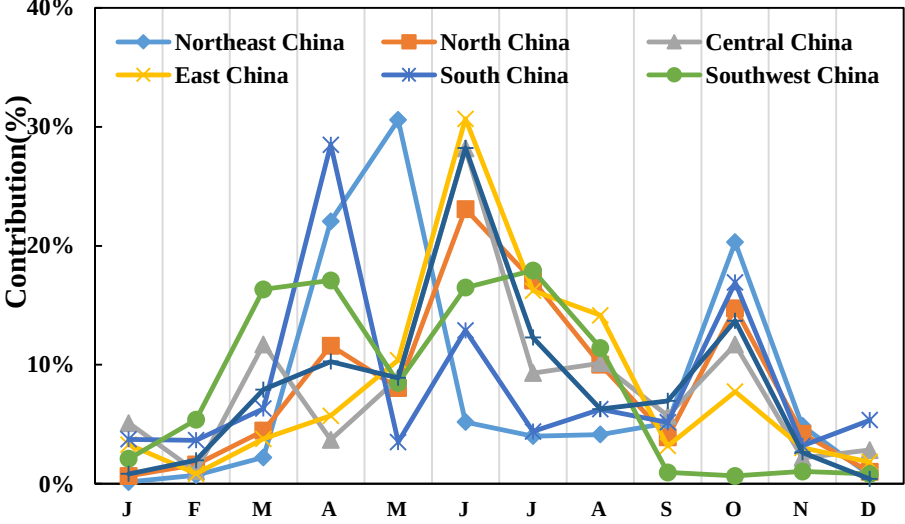
识别在植被区域燃烧的火点及计算植被覆盖率

生物质开放燃烧源：清单的提升和对模拟结果的改善

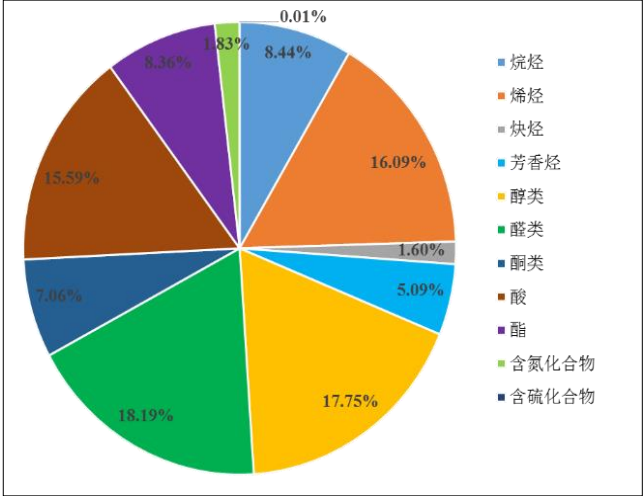
空间分辨率:1km*1km



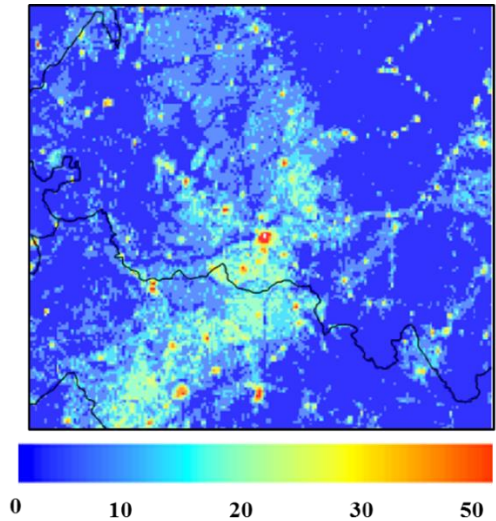
时间变化



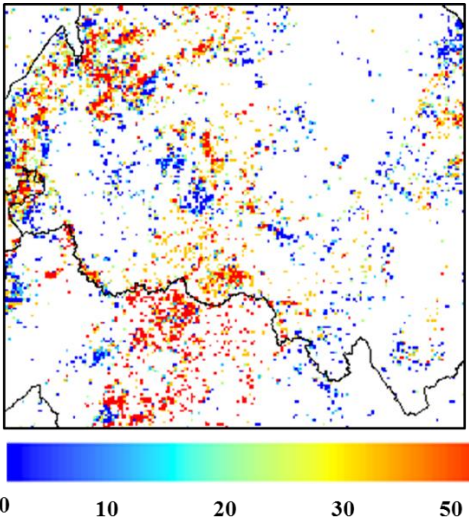
化学物种



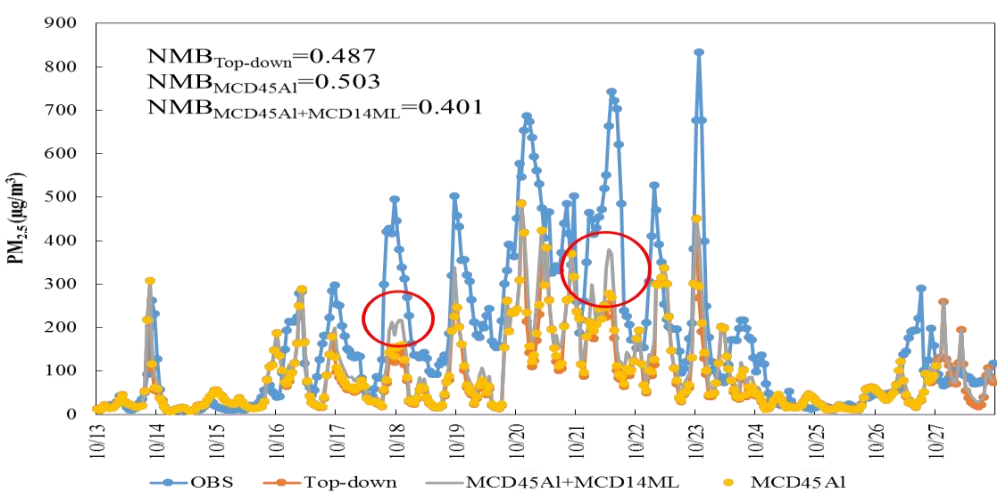
以黑龙江省为例:



传统方法



动态排放清单



动态清单能显著改善重污染峰值时的模拟效果

扬尘排放清单

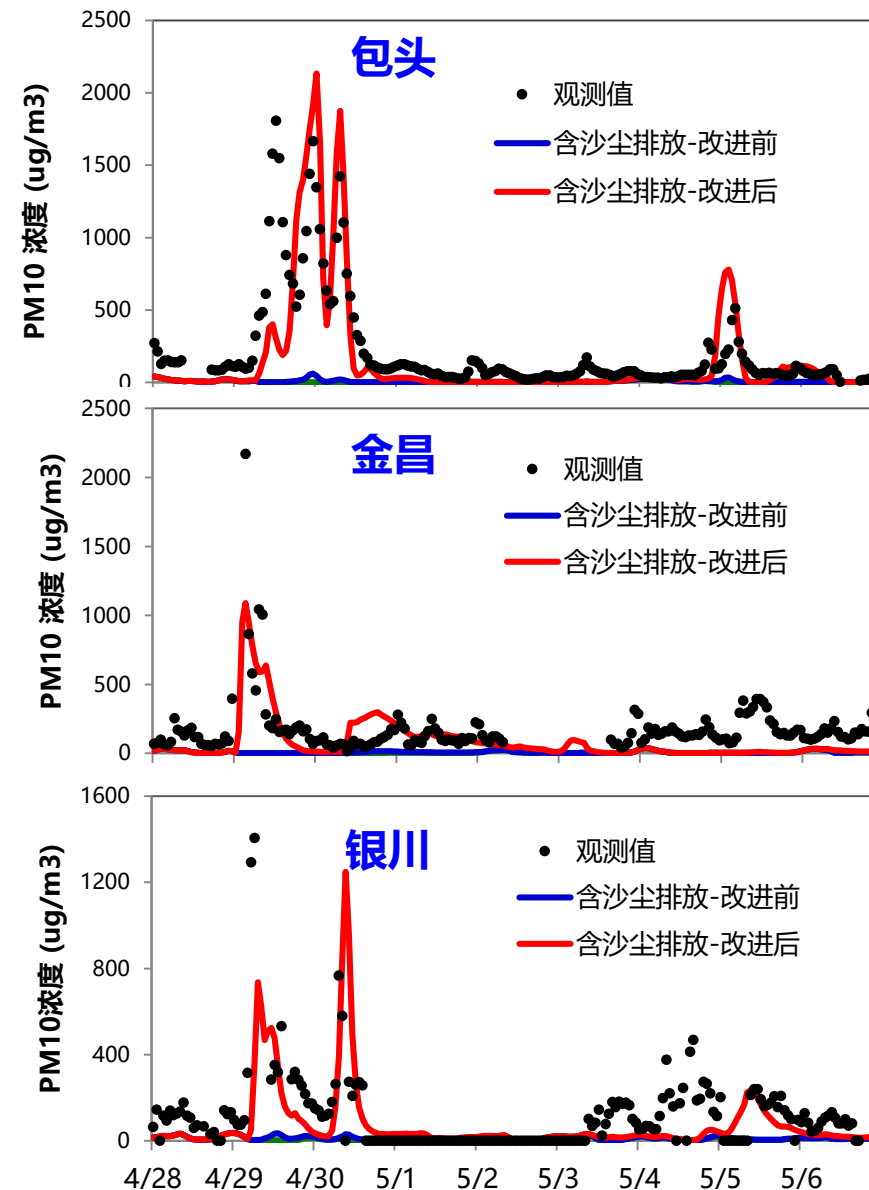
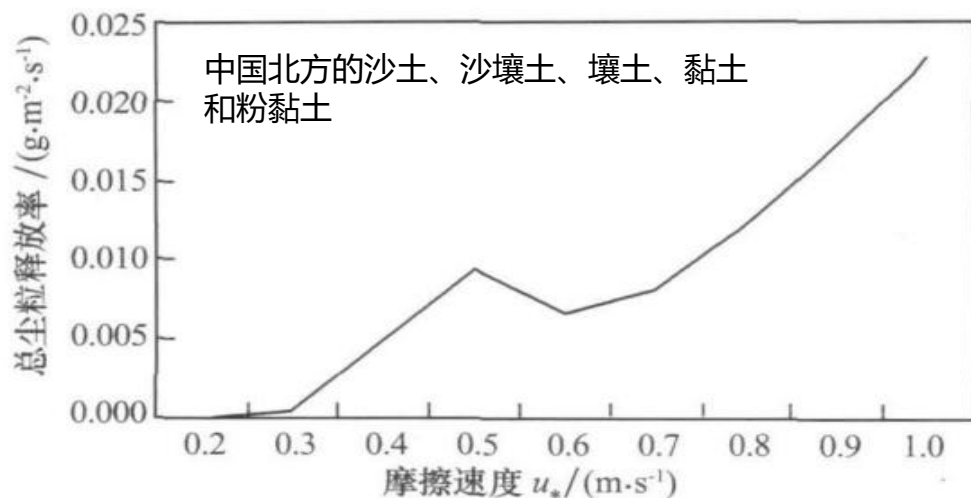
$$F = \sum_{i,j} K \times A \times \frac{\rho}{g} \times S_i \times SEP \times \mu_* \times (\mu_*^2 - \mu_{*ti,j}^2)$$

空气密度 ρ 可侵蚀潜势 SEP 摩擦速度 μ_*

常数 K 可侵蚀土地面积 S_i 临界摩擦速度 $\mu_{*ti,j}$

临界摩擦速度：控制了沙尘排放的起始条件和密度

$$\mu_{*ti,j} = \mu_{*ti,j}' \times f_{di,j} \times f_{mi,j}$$



人为源排放清单建立中的三个关键问题

➤ 降低排放量估算的不确定性

- 准确的排放因子和活动水平

➤ 提升源排放清单的时空分辨率

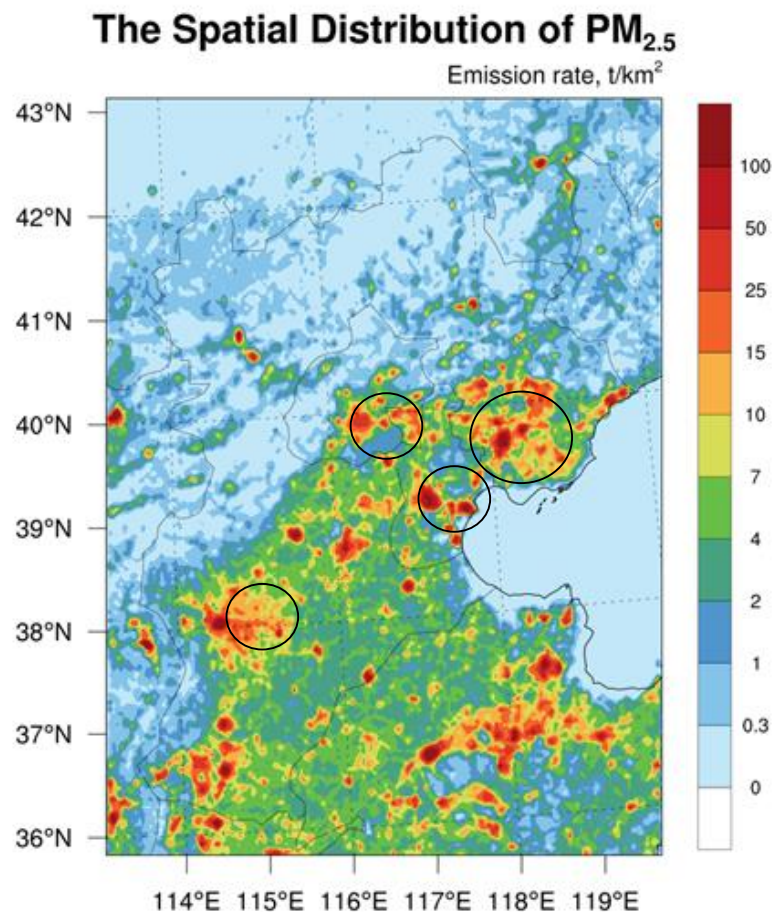
- 工业大点源、民用燃烧源、农业 NH_3 源

➤ 建立本地化的动态源排放化学成分谱

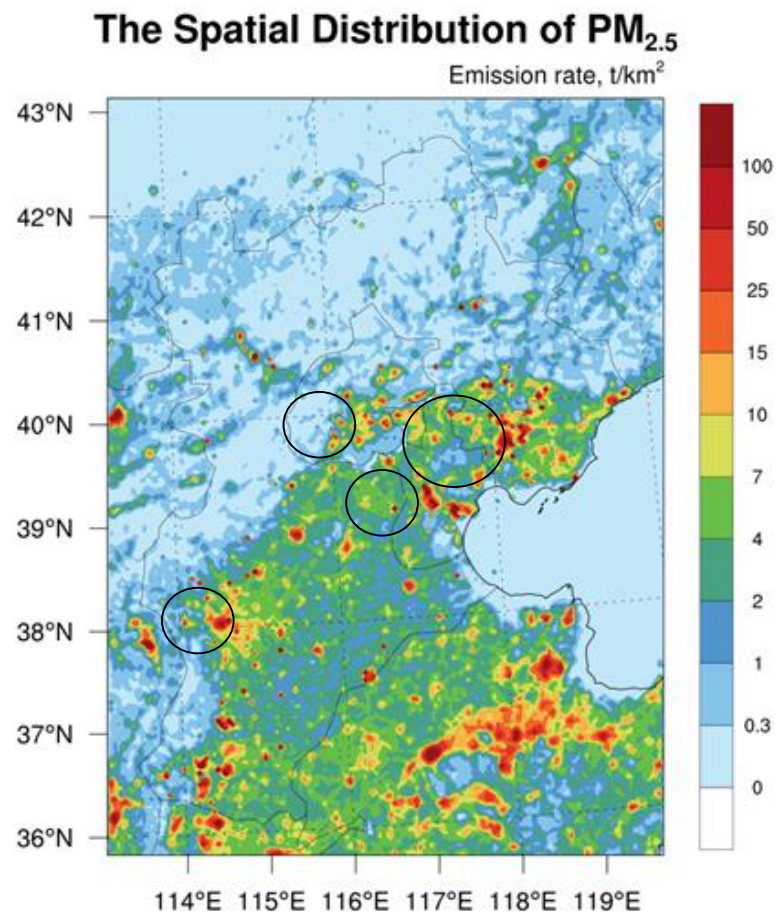
- 活性组分、PM、VOCs

点源化清单与传统清单空间分布对比

传统清单：
以路网、人口
和GDP为主要的
分配指标，
将分省排放进
行空间分配



传统清单



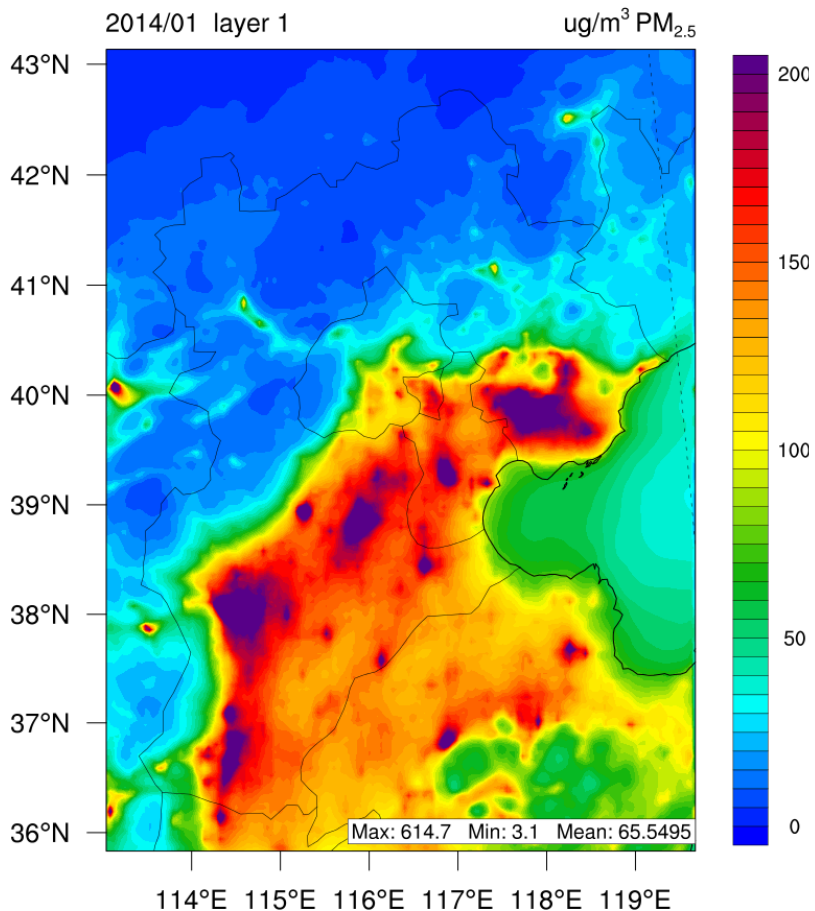
点源化清单

点源化清单：
电厂、钢铁厂、
水泥厂和工业锅
炉为点源排放，
其他行业的排放
量根据路网、人
口和GDP分配

京津冀地区2014年PM_{2.5}排放的空间分布

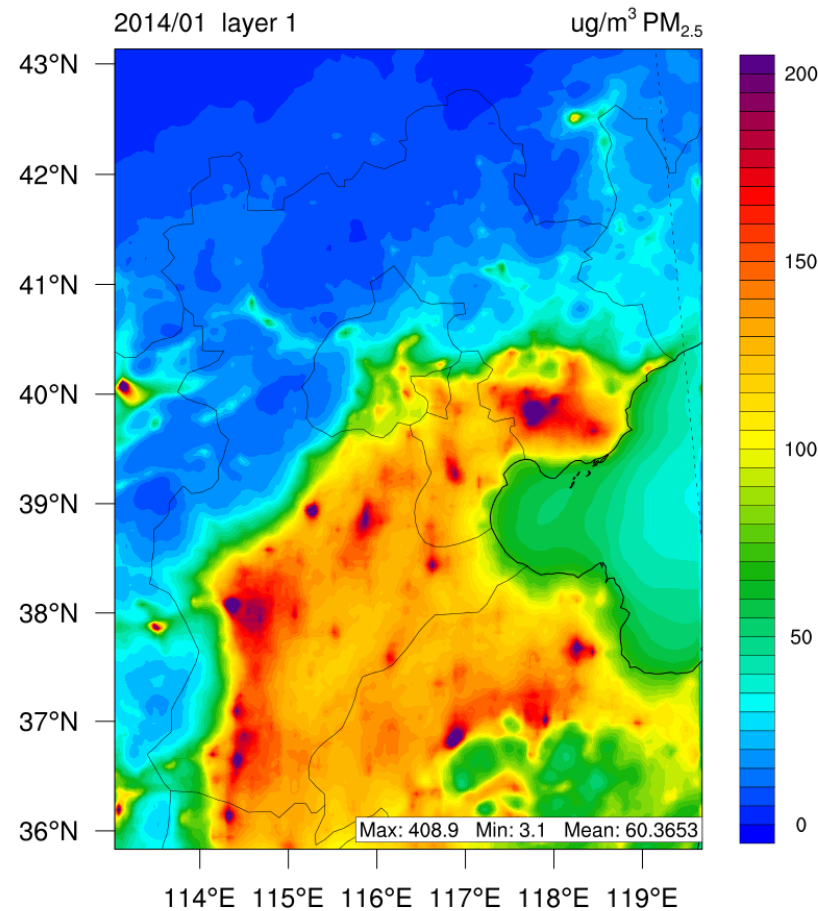
点源化清单与传统清单空气质量模拟结果的对比

CMAQ: Monthly Average Concentration



传统清单

CMAQ: Monthly Average Concentration



点源化清单

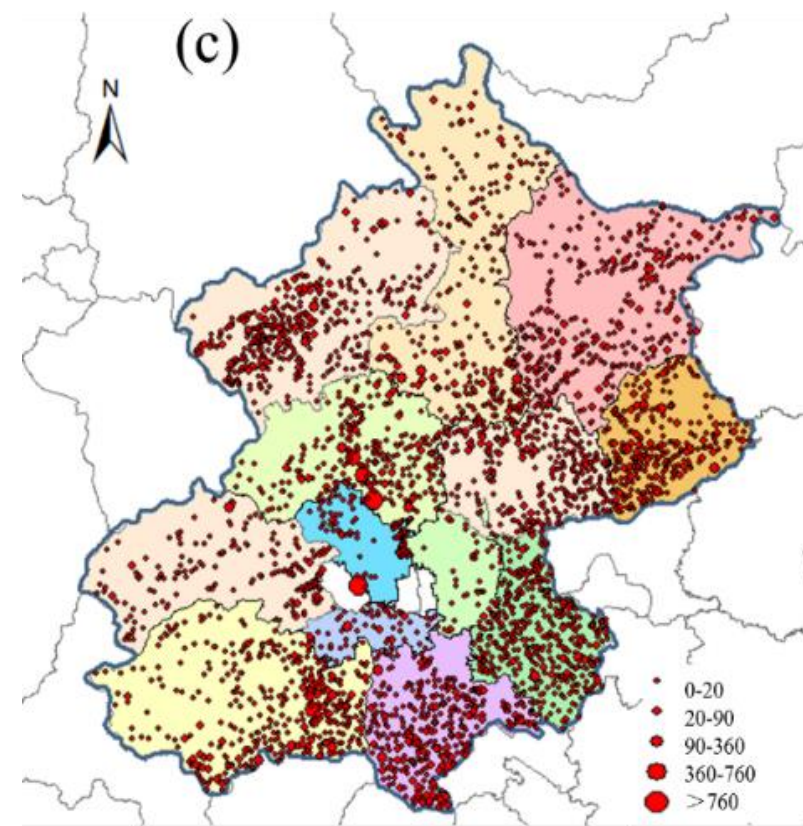
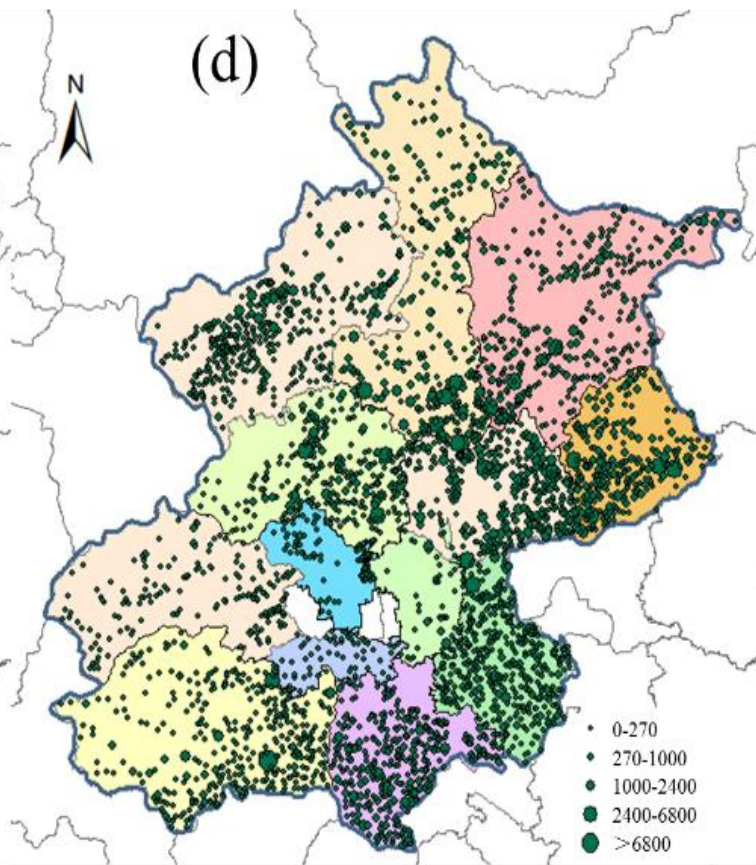
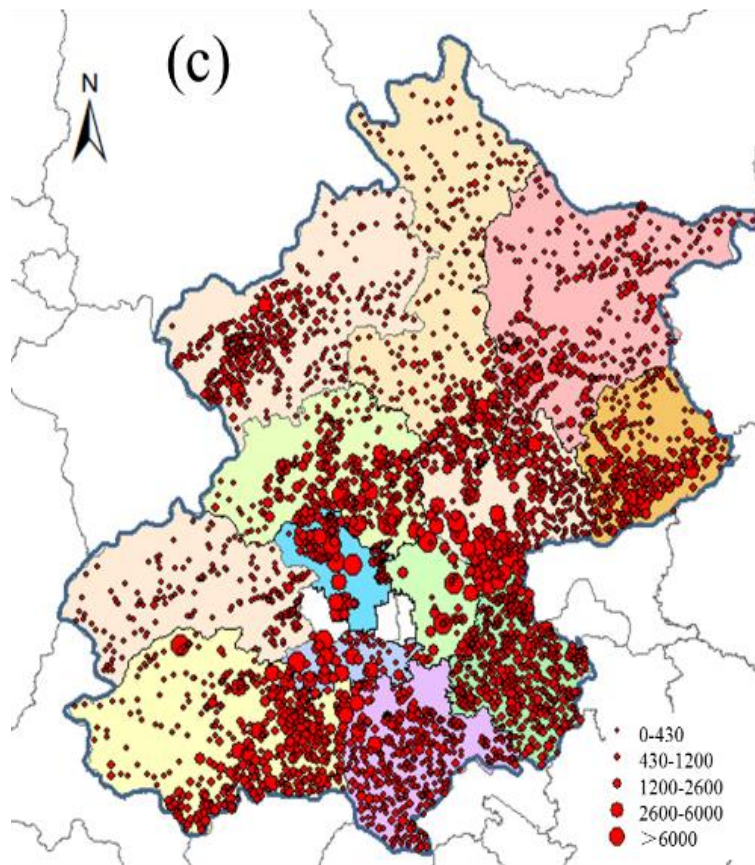
点源化清单对天津、唐山、石家庄等地区冬季的模拟浓度更接近于观测值。

民用燃烧源排放的时空分布：以北京市为例

北京市居民采暖用煤量分布

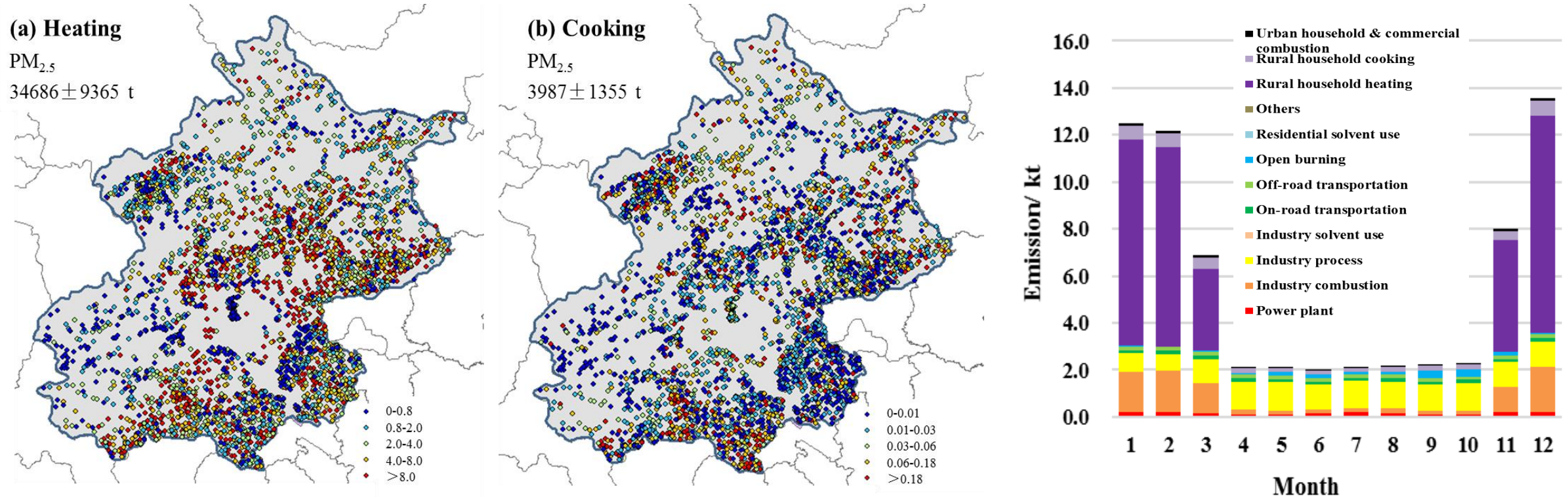
北京市居民采暖用生物质量分布

北京市炊事用煤炭和生物质量分布



2015年北京市居民采暖用煤 380.5万t，炊事用煤55.6万t，占全市用煤量的24%

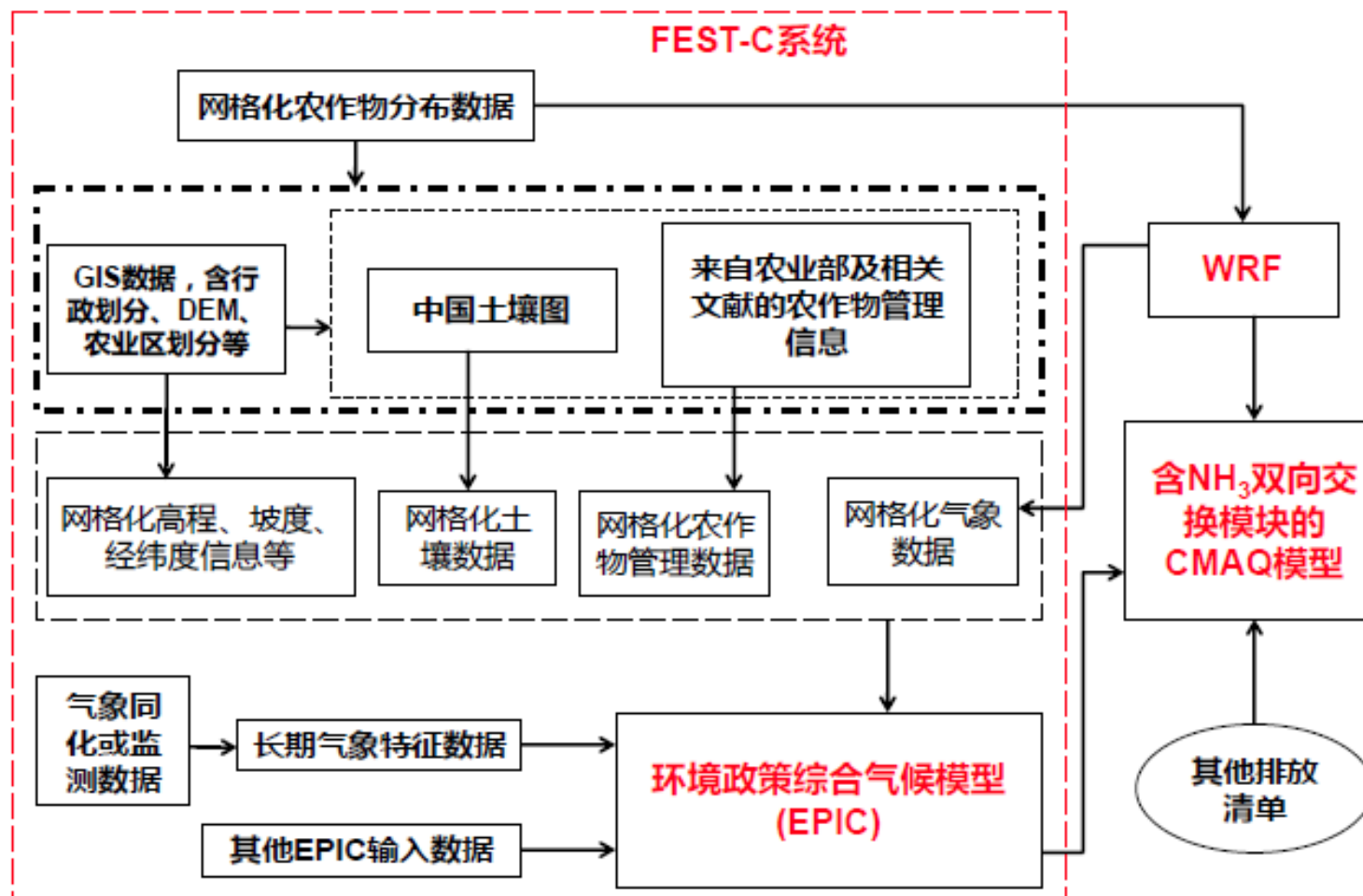
民用燃烧源排放的时空分布：以北京市为例



- The emissions of NO_x, NMVOCs, SO₂, and PM_{2.5} from household heating are 11.5 kt, 29.3 kt, 43.1 kt, and 34.7 kt, respectively, while the emissions of NO_x, NMVOCs, SO₂, and PM_{2.5} from household cooking are 1.55 kt, 4.02 kt, 6.55 kt, and 3.99 kt.
- Emissions from household heating contribute ~70% of PM_{2.5} and ~60% of SO₂ emissions in winter, respectively.

基于农业和气象过程的化肥施用在线NH₃排放模型

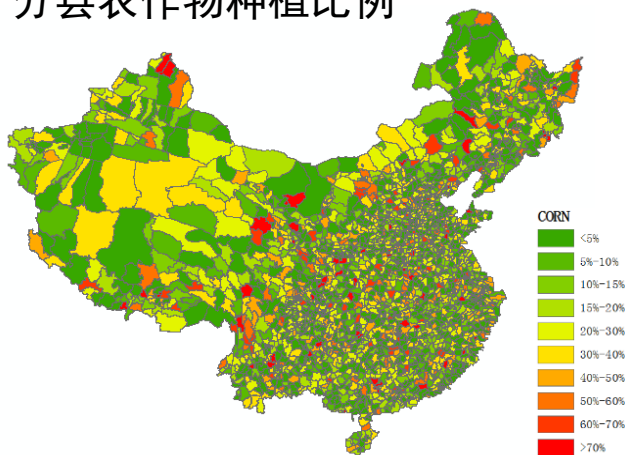
- 可嵌入CMAQ模型的NH₃双向排放模块，其中WRF提供气象场，EPIC提供化肥施用、土壤特性等信息；
- 引入了农作物分布、气象因子、土壤性质等的影响，时间分辨率从年提高到小时，空间分辨率也显著提高。



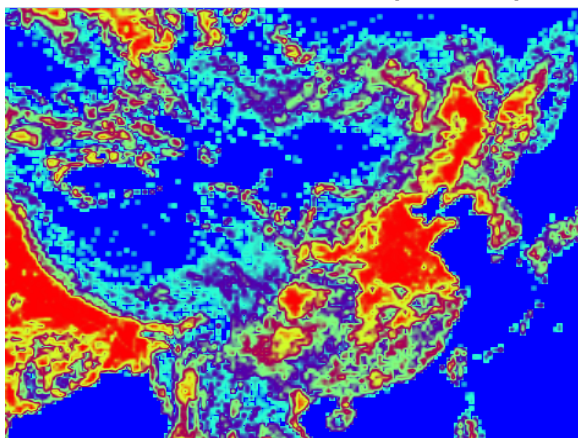
基于农业和气象过程的化肥施用在线NH₃排放模型

基于分县农作物种植比例和MODIS卫星的土地利用数据，计算高分辨率网格化14类农作物的种植面积。

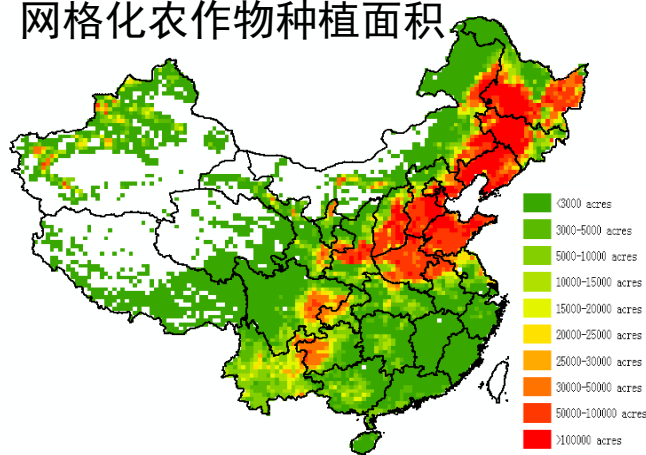
分县农作物种植比例



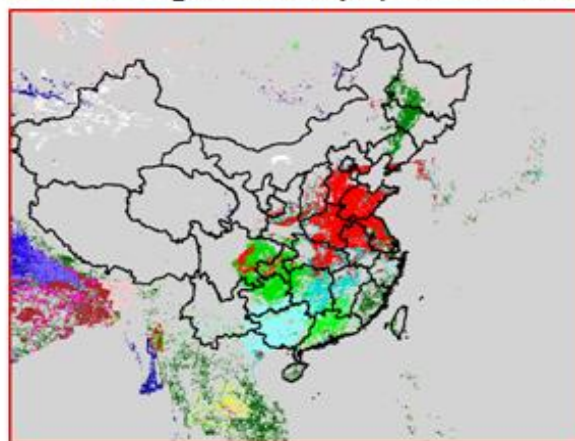
MODIS土地利用数据(500m)



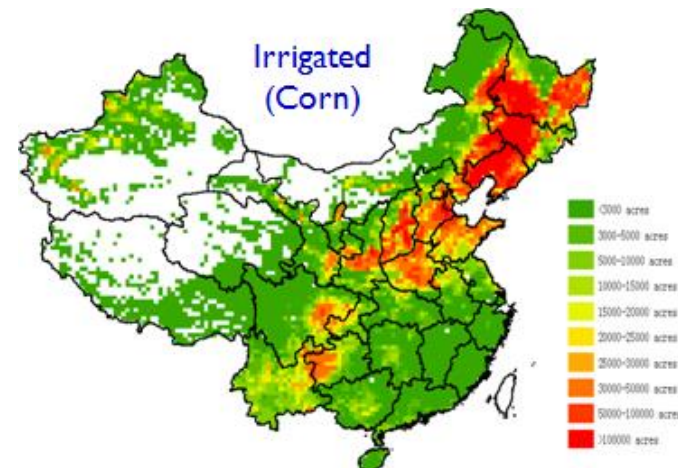
网格化农作物种植面积



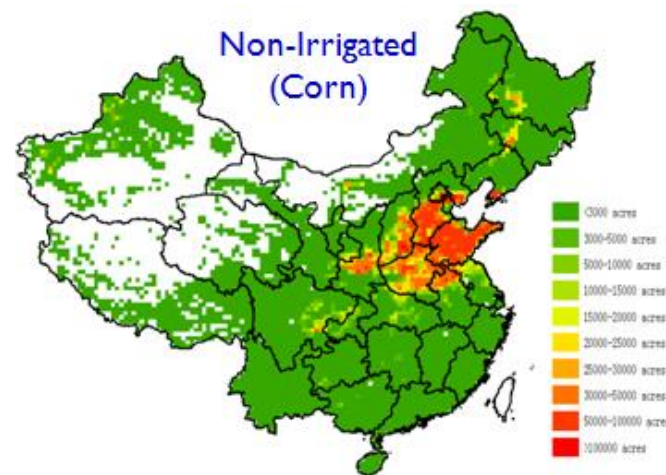
Global irrigation map (340 classes, 1km)



Irrigated
(Corn)

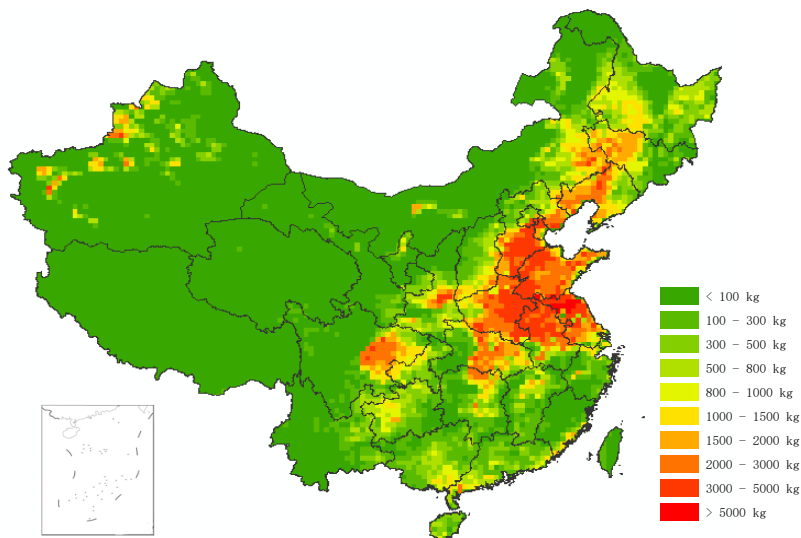


Non-Irrigated
(Corn)

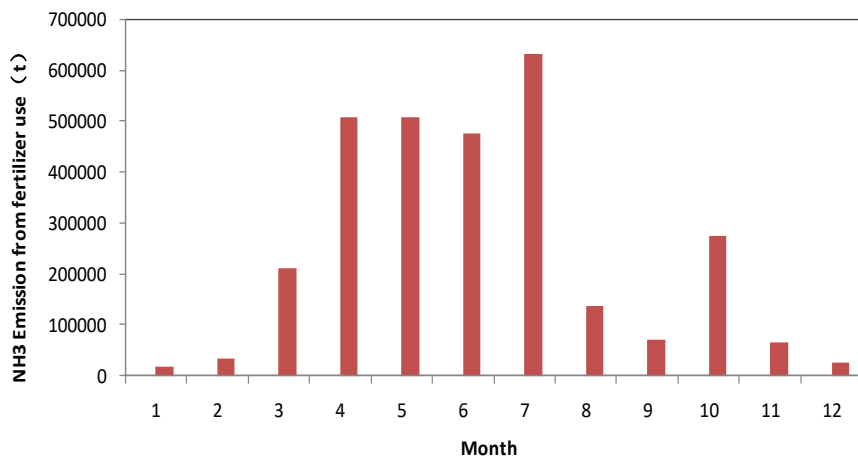


基于农业和气象过程的化肥施用在线NH₃排放模型

网格化农业施肥NH₃排放

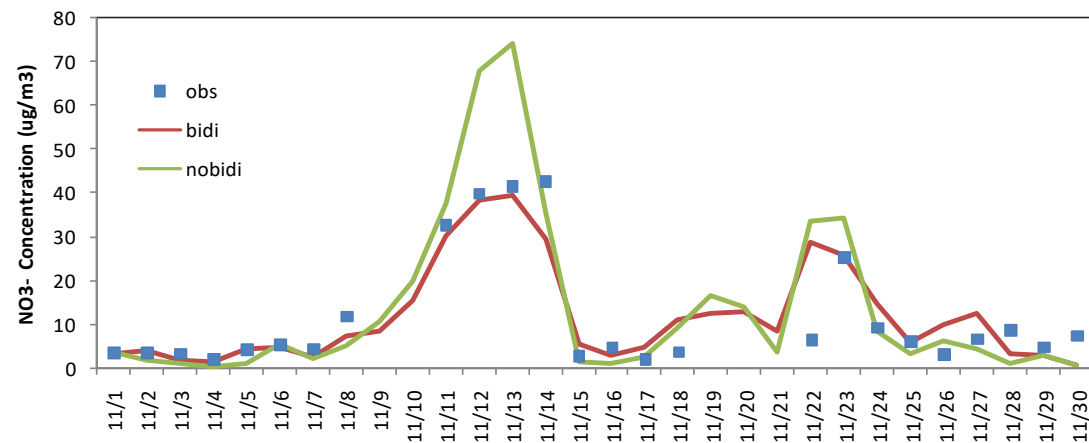


农业施肥NH₃排放的月分布



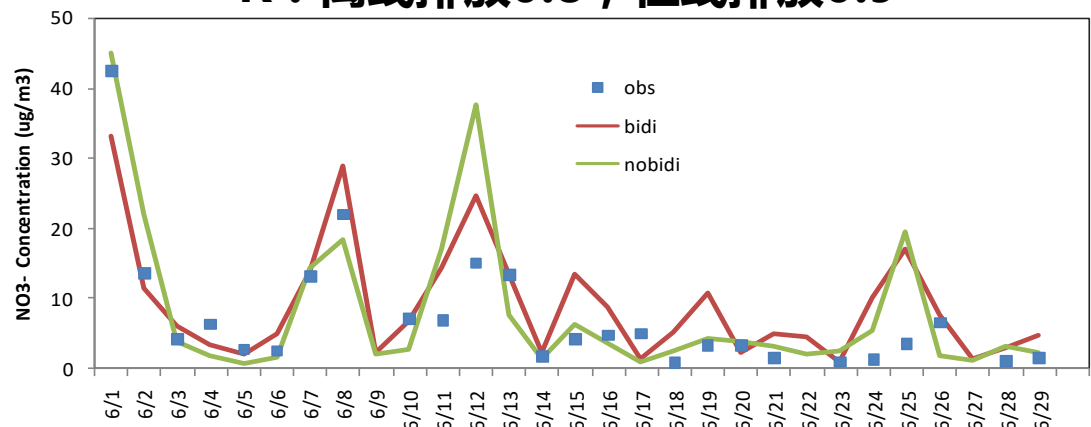
NME : 离线排放57% ; 在线排放35%

R : 离线排放0.7 ; 在线排放0.8



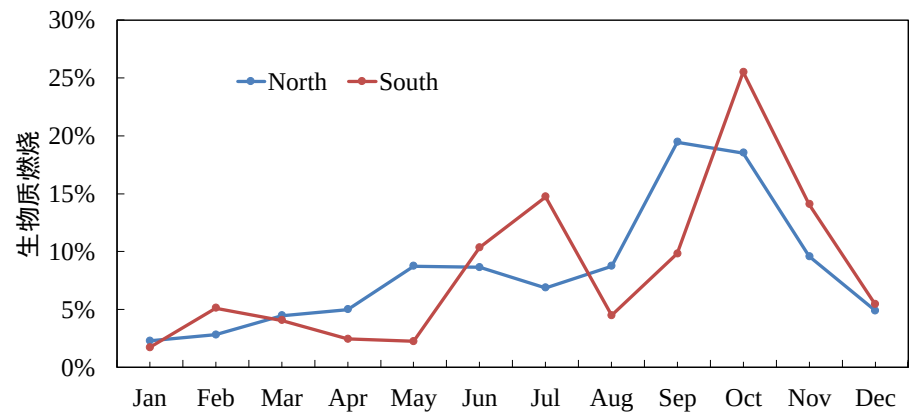
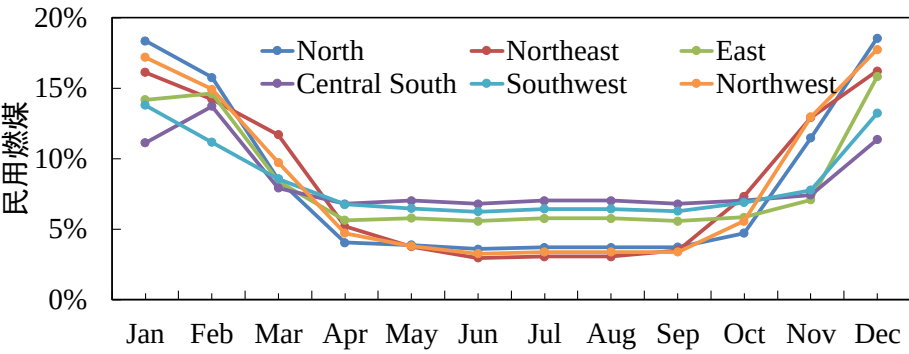
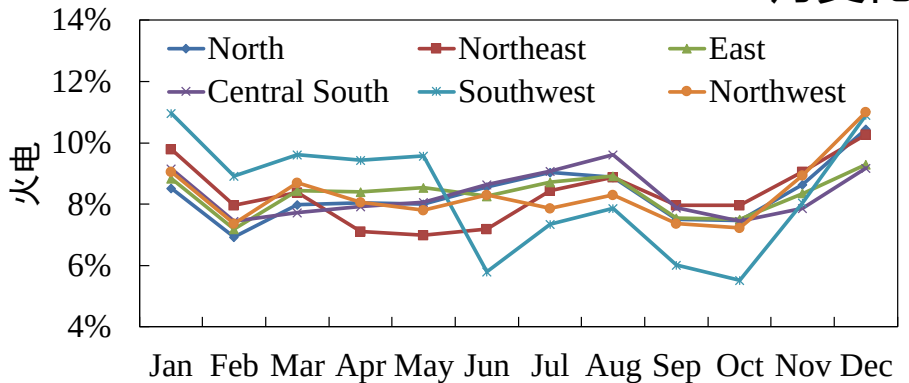
NME : 离线排放57% ; 在线排放47%

R : 离线排放0.8 ; 在线排放0.9

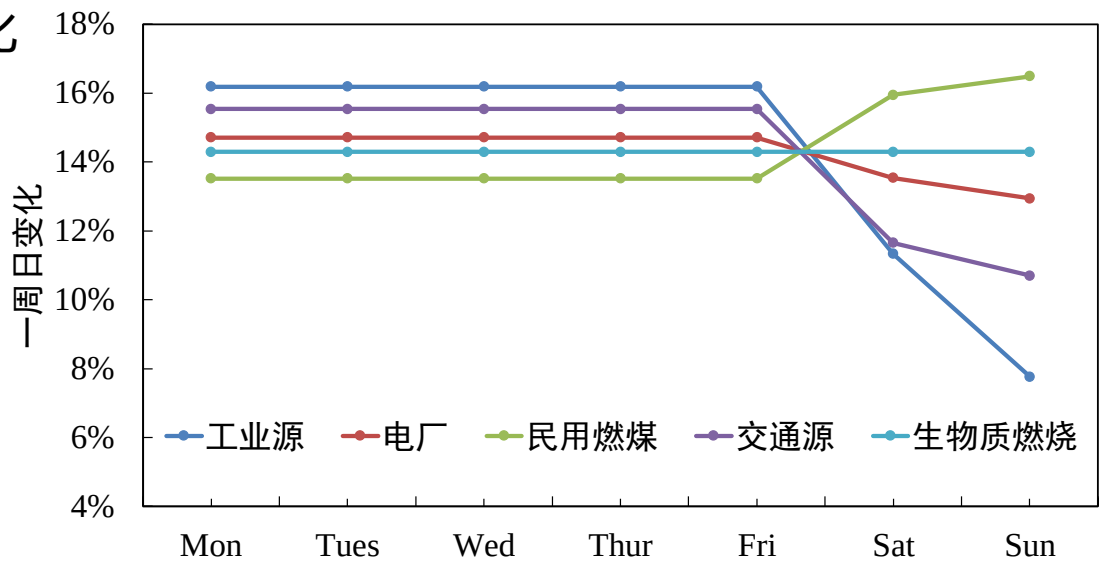


排放量的时间变化的行业和区域差异

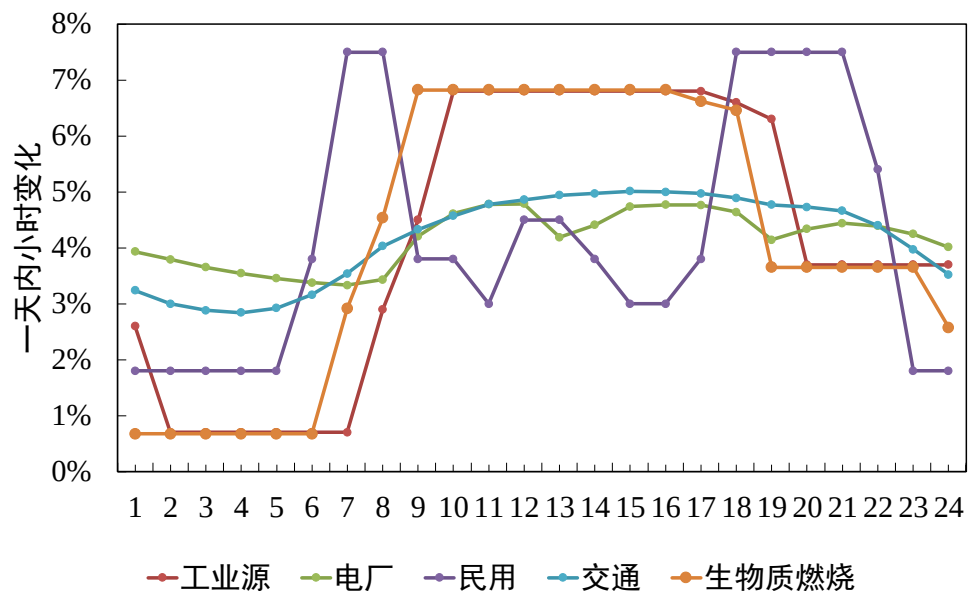
月变化



日变化



时变化



人为源排放清单建立中的三个关键问题

➤ 降低排放量估算的不确定性

- 准确的排放因子和活动水平

➤ 提升源排放清单的时空分辨率

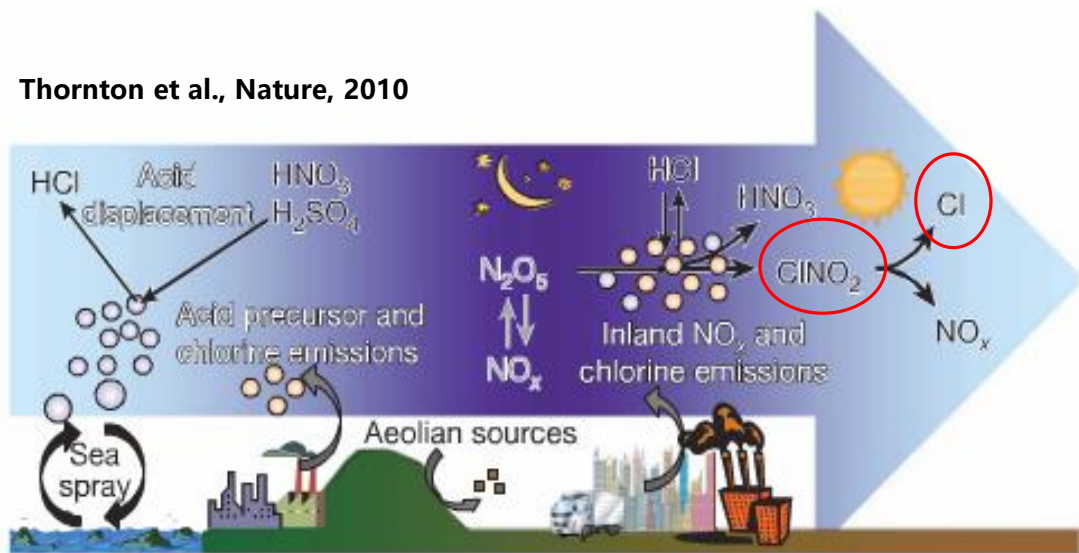
- 工业大点源、民用燃烧源、农业 NH_3 源

➤ 建立本地化的动态源排放化学成分谱

- 活性组分、PM、VOCs

完善大气活性成分排放清单：以氯排放为例

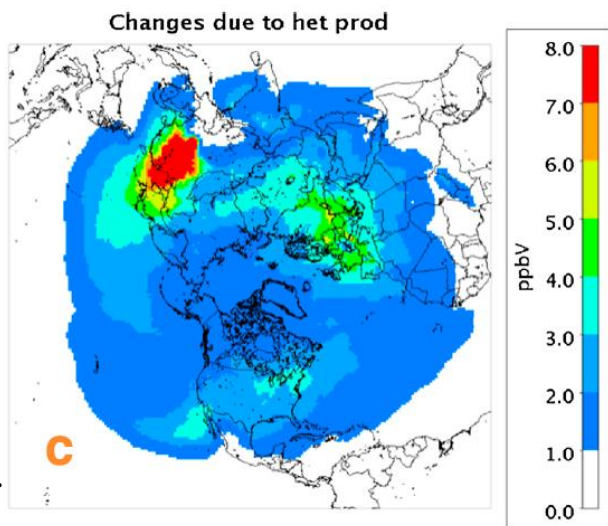
Thornton et al., Nature, 2010



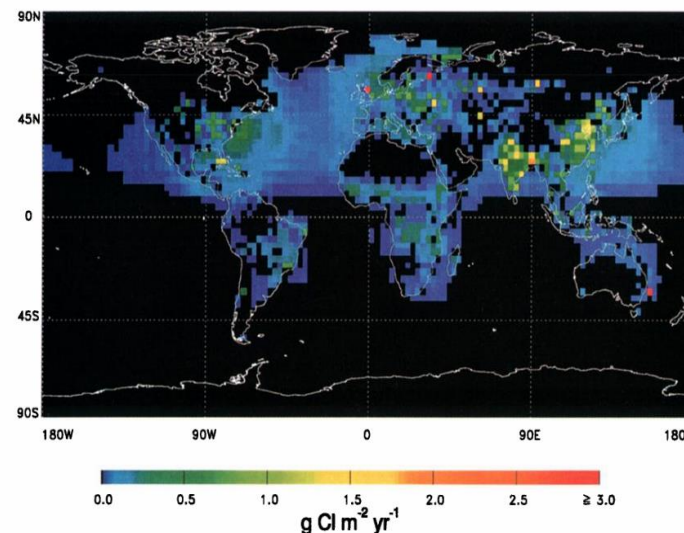
ClNO₂相关反应会影响大气氧化性及二次颗粒物的生成

- N₂O₅在含Cl颗粒物表面的非均相反应会生成ClNO₂
- ClNO₂光解产生的Cl自由基会影响大气氧化性及二次颗粒物的生成
- 含氯颗粒物受自然源及人为源排放的共同影响

目前，仅有一份全球人为源氯排放清单，基准年为1990年，空间分辨率为100km。

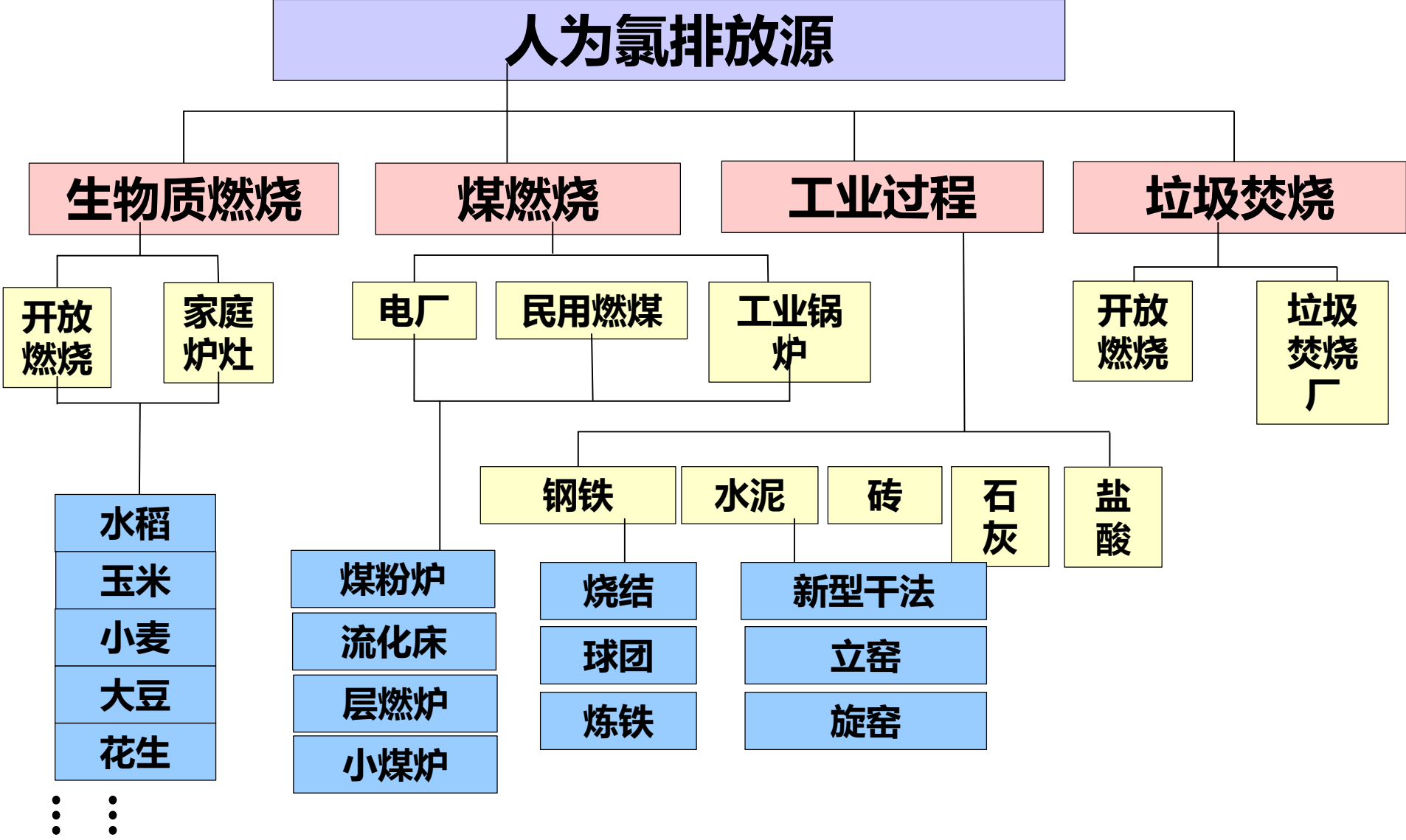


Sarwar et al., GRL, 2014.



Keene et al.,
JGR-Atmos.,
1999.

人为氯排放的主要来源



人为源氯排放计算方法

HCl排放:

$$E_{HCl} = \sum_{i,j} A_{i,j} EF_{(HCl)i,j}$$

$$EF_{(HCl)i,j,k} = C_i R_{j,k} \sum_l \left(1 - f_{(SO_2)i,j,k,l} \eta_{(SO_2)i,j,k,l} \right) \sum_m \left(1 - f_{(PM)i,j,k,m} \eta_{(PM)i,j,k,m} \right)$$

(煤燃烧)

细颗粒态Cl⁻ 排放:

$$E_{PM_{2.5}Cl^-} = \sum_{i,j} \left(A_{i,j} EF_{(PM_{2.5})j} \right) M_j$$

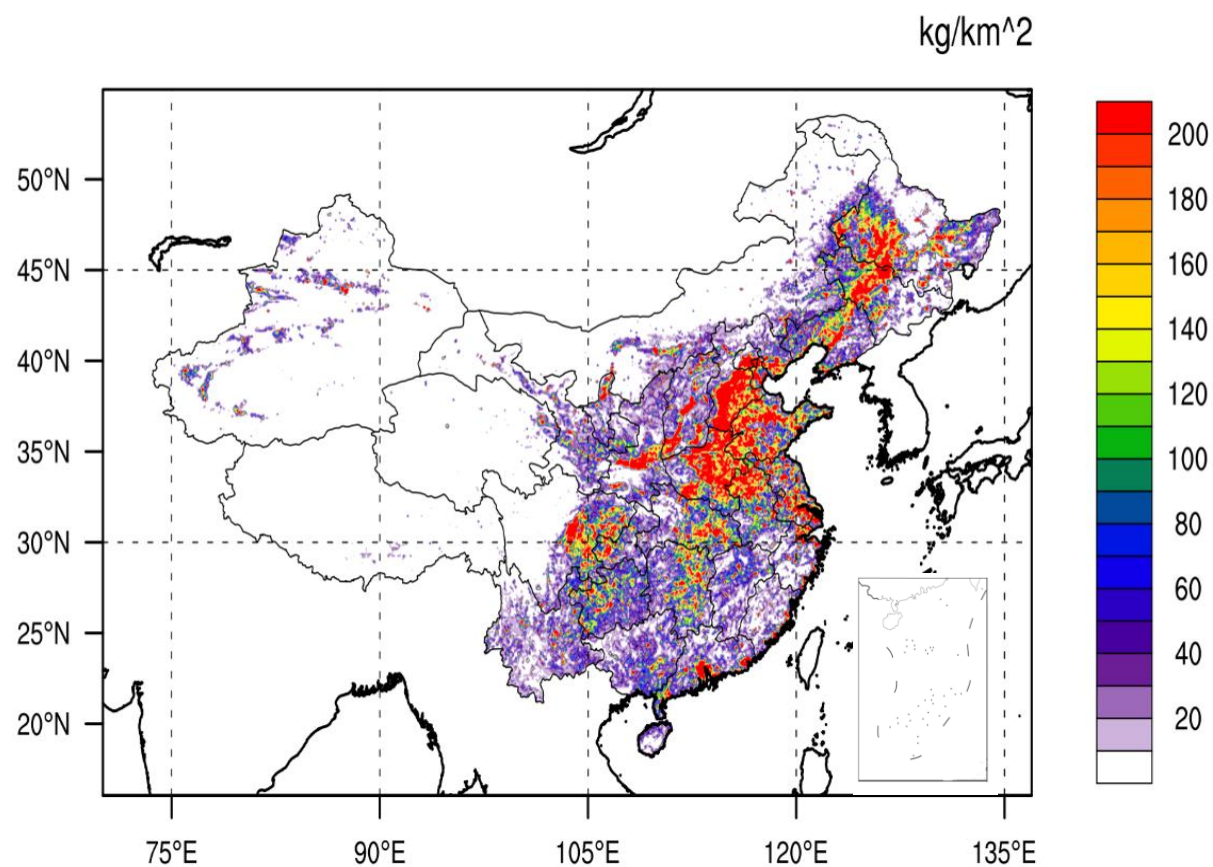
A为活动水平，如耗煤量/生物质燃烧量/垃圾焚烧量/产品产量等； i, j 代表县和排放部门；

EF_{HCl} 为HCl 排放因子，其中煤燃烧的氯排放基于煤中氯含量及其释放率和去除率计算；

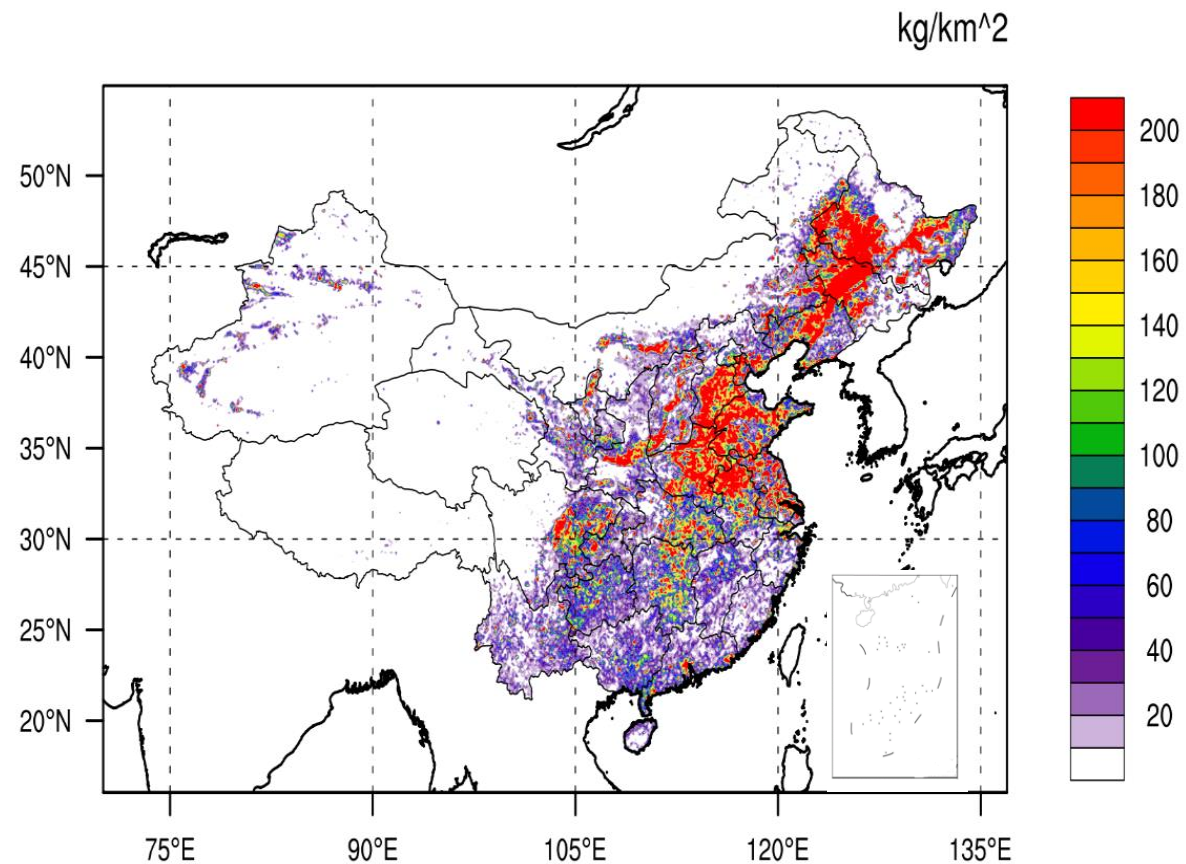
$EF_{PM_{2.5}}$ 为PM_{2.5}排放因子， M 为Cl⁻ 在 PM_{2.5} 排放中的比例。

无机氯化物排放空间分布

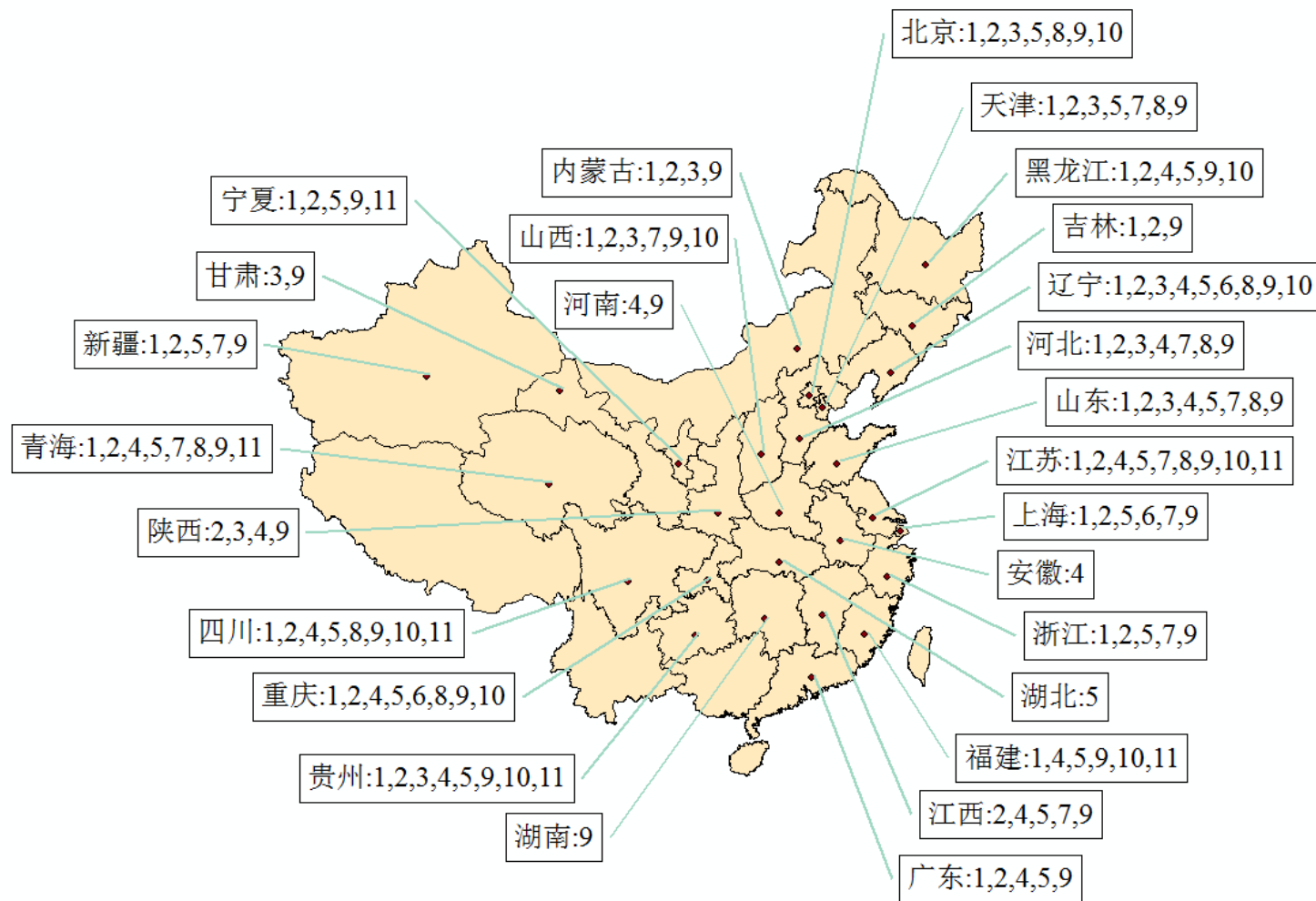
HCl : 458 kt



Fine particle Cl⁻ : 486 kt

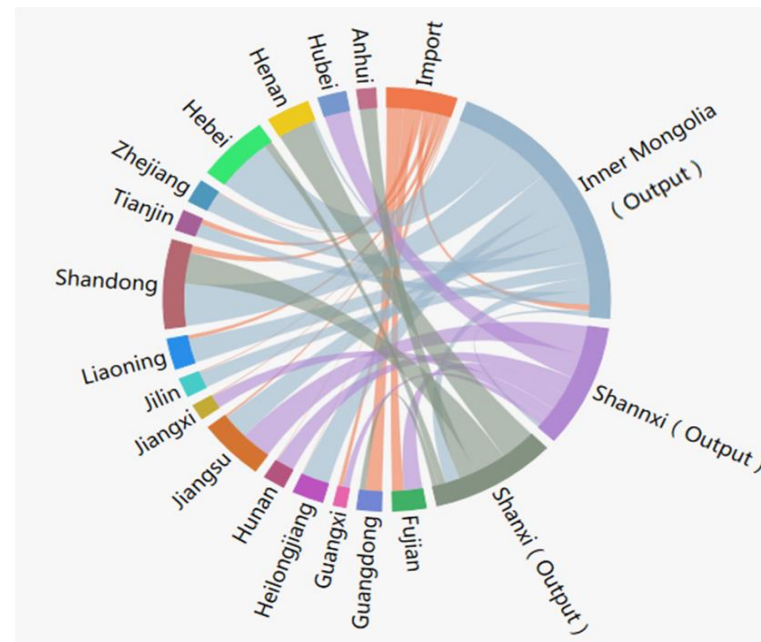
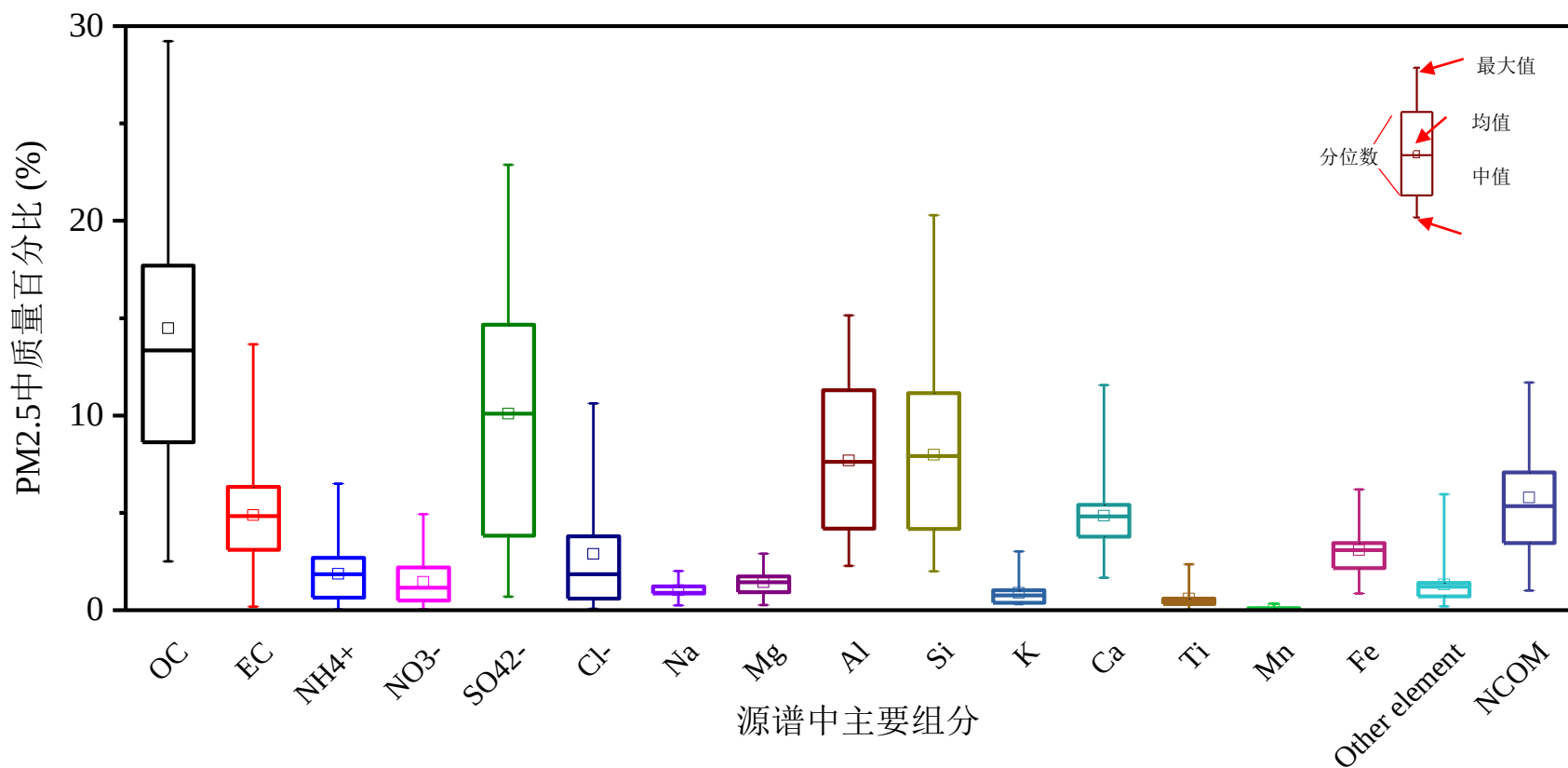


PM_{2.5}排放源化学成分谱数据库



- **源谱来源:** 100余篇文献 (2012年-2017年)
- **源谱分类:** 1.燃煤电厂 2.工业燃煤 3.民用燃煤 (供暖锅炉、散煤燃烧) 4.生物质燃烧 (家用、露天焚烧) 5.道路运输 (小型中型大型、汽油柴油天然气、客运货运) 6.非道路 (工程机械、船舶) 7.钢铁 (烧结、高炉、转炉、电炉、炼焦) 8.水泥 (窑头、窑尾、粉磨) 9.扬尘 (土壤、道路、建筑) 10.烹饪 11.其他工业源 (燃油锅炉、玻璃、砖瓦窑、有色冶金、垃圾焚烧等)
- **源谱组分:** 模型所需物种谱

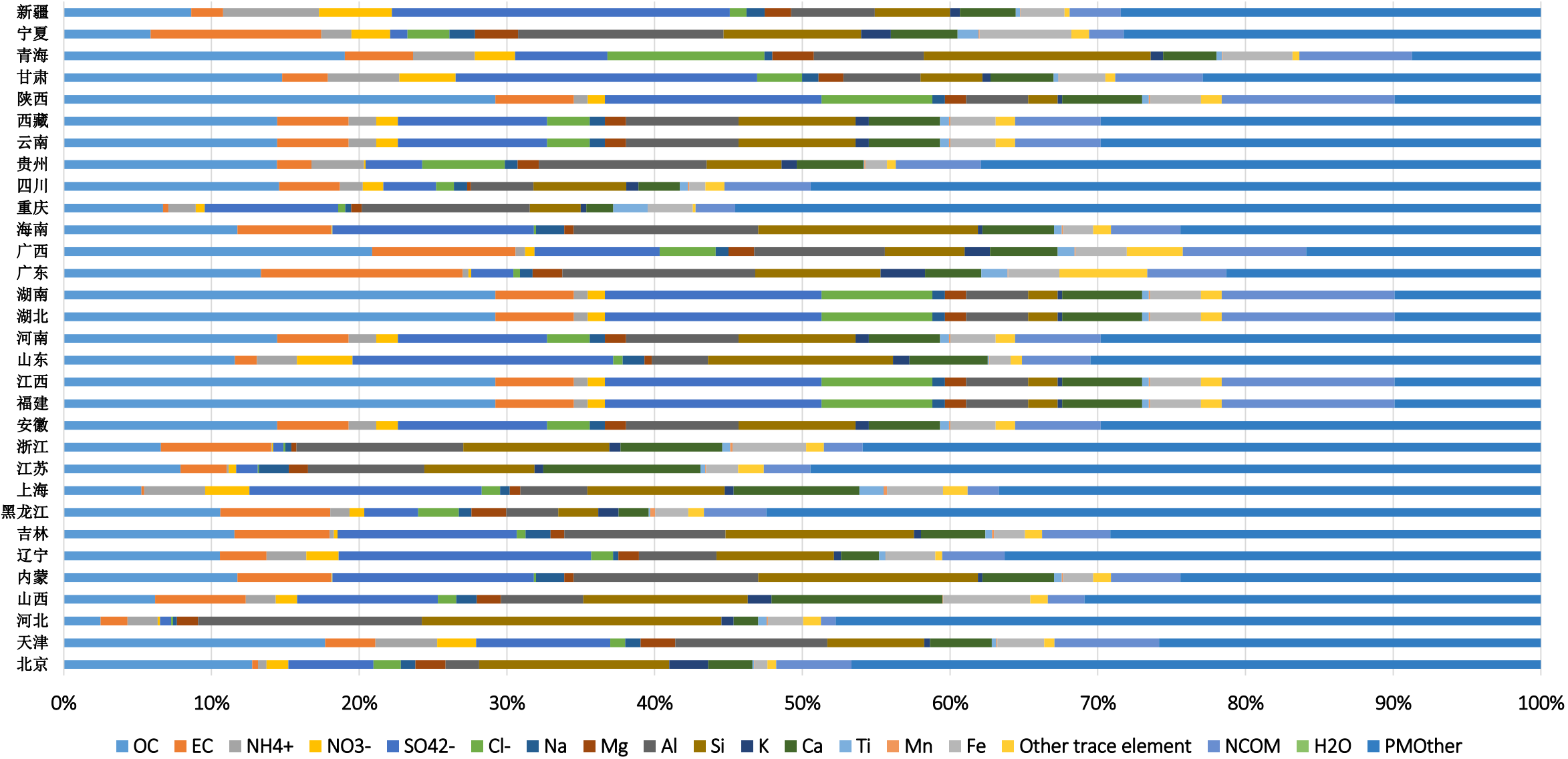
燃煤电厂大气PM_{2.5}排放的主要组分



- 燃煤源谱的标志组分：OC、Al、As、S、Cl等
- 不同地区源谱差异性的原因：**煤种**、锅炉类型、运行负荷、烟气控制技术等

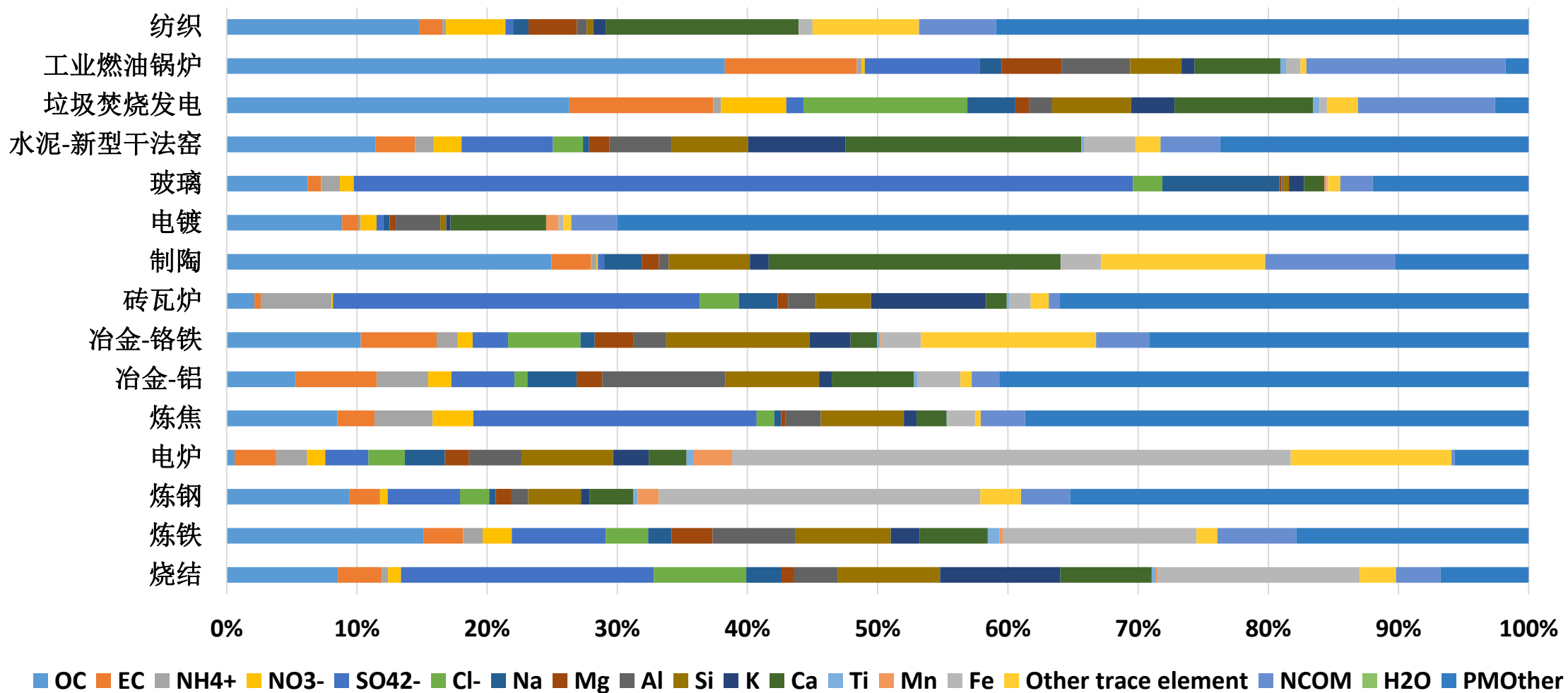
- 根据燃煤传输矩阵建立各地区的源谱

我国分省燃煤电厂PM_{2.5}排放源谱

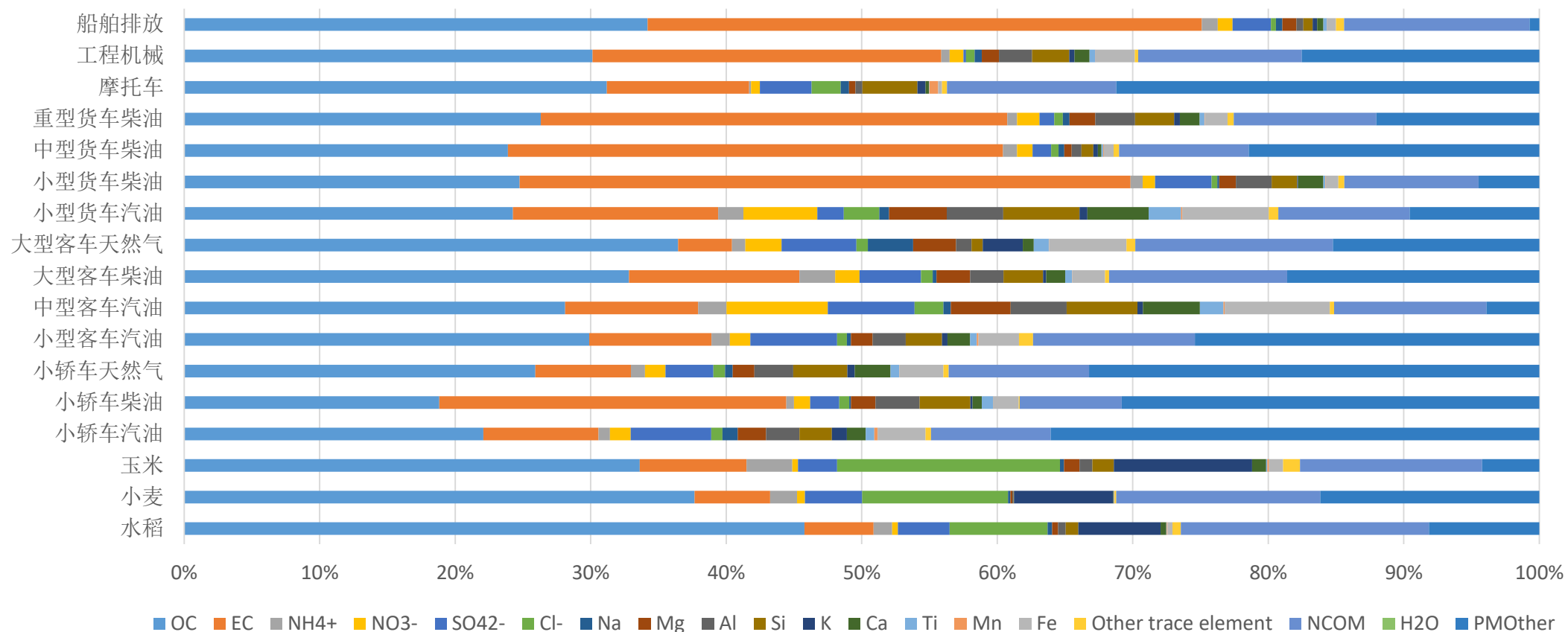


我国不同工业过程PM_{2.5}排放源谱

- 钢铁按照工艺过程分类：炼钢、炼铁、电炉、烧结、焦化
- 水泥（新型干法窑占85%以上）按照工艺过程分类：窑头、窑尾、水泥磨等



我国生物质燃烧和交通源源谱



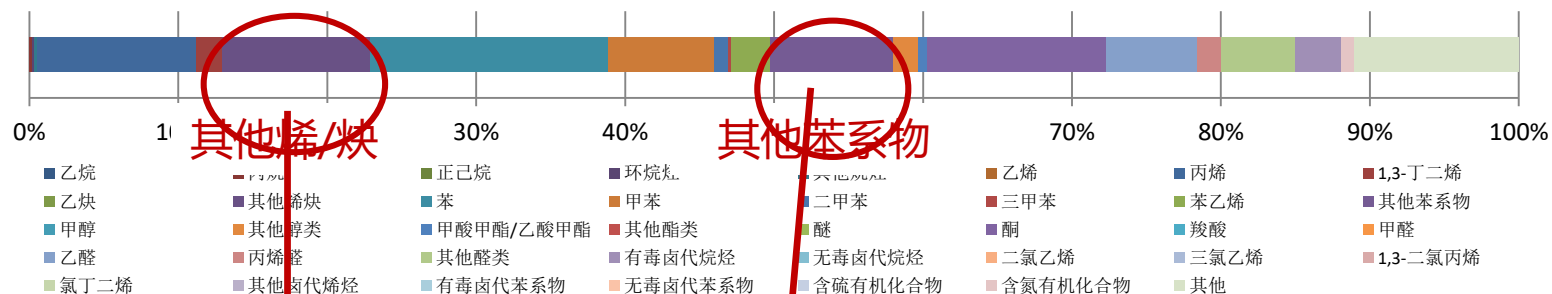
- 机动车源谱的差异性与车型、工况、燃料类型有关，建立不同类型源谱
- 交通源源谱标志组分：OC、EC、Cu、Zn、Br等
- 生物质燃烧源谱标志组分：OC、EC、K⁺、Cl⁻等

我国VOCs源排放化学成分谱库

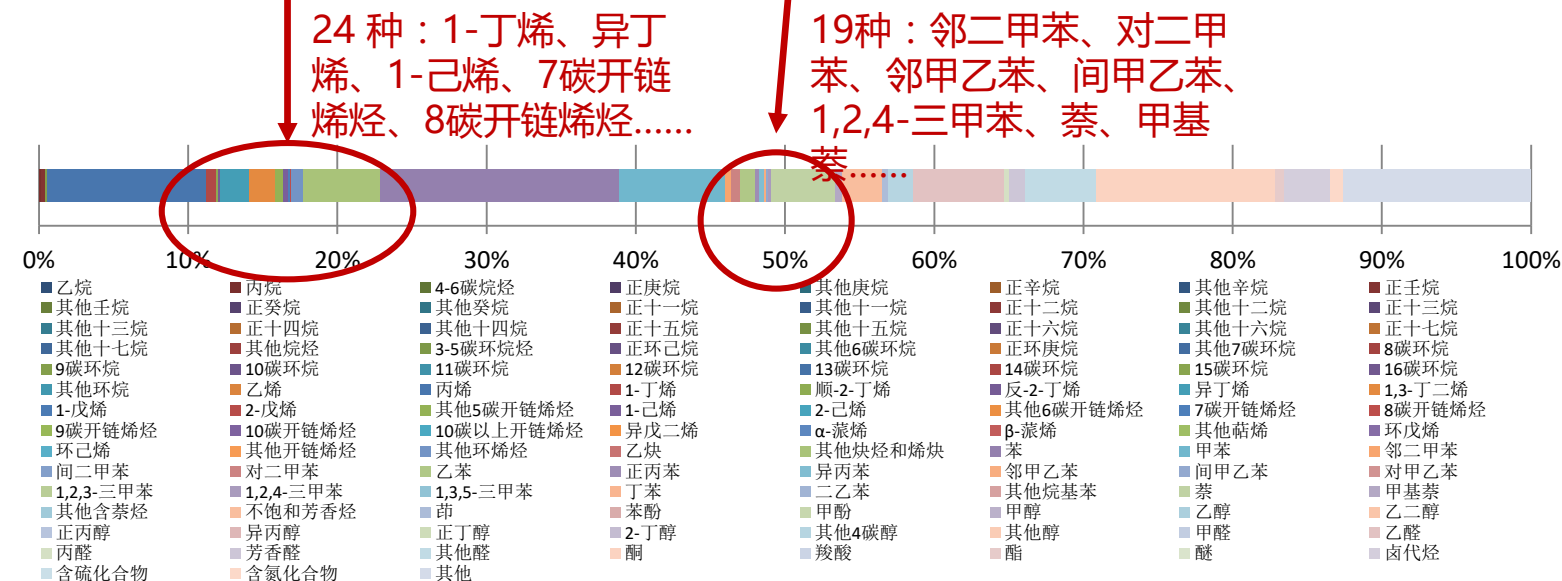
涵盖的VOCs物种从传统源谱的40大类增加到115类

民用生物质燃烧:

传统源谱

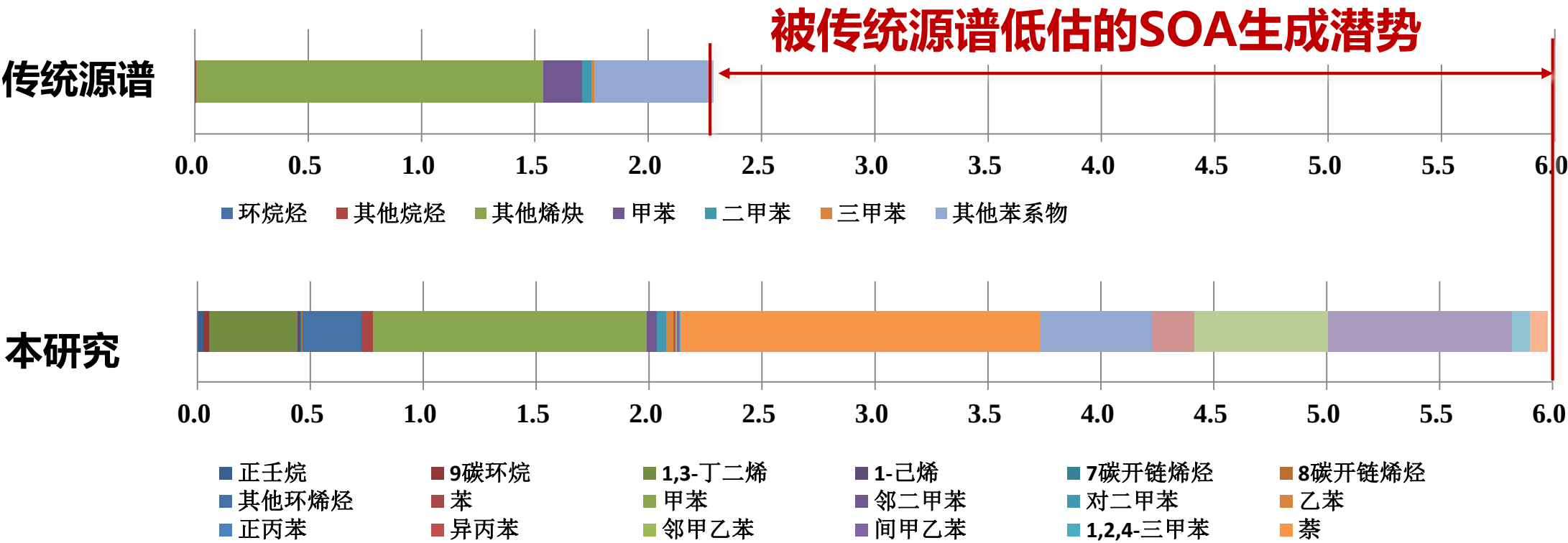


本研究



我国VOCs源排放化学成分谱库

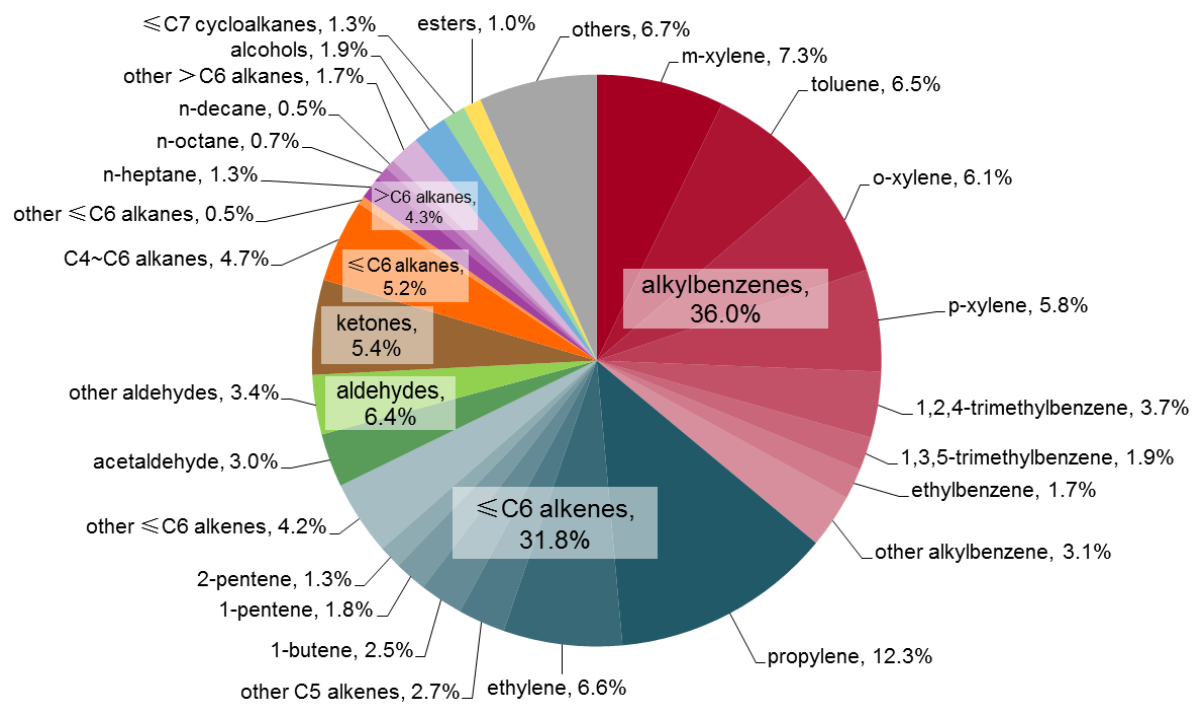
民用生物质燃烧



民用生物质燃烧排放VOCs的SOA生成潜势

有效地增补了传统源谱低估的SOA生成潜势

我国VOCs排放的O₃和SOA的生成潜势评估

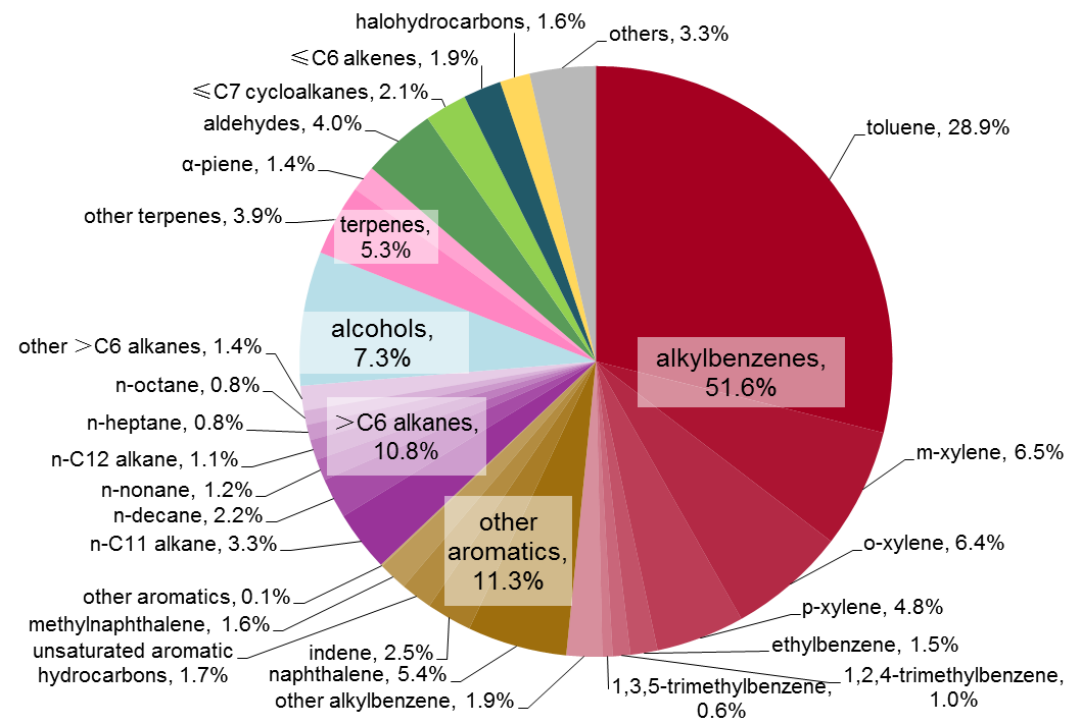


O₃生成潜势：

烷基苯>C6以下的烷烃/烯烃>醛类>酮类

单位排放OFP：

机动车>溶剂>民用燃烧>工业



SOA生成潜势：

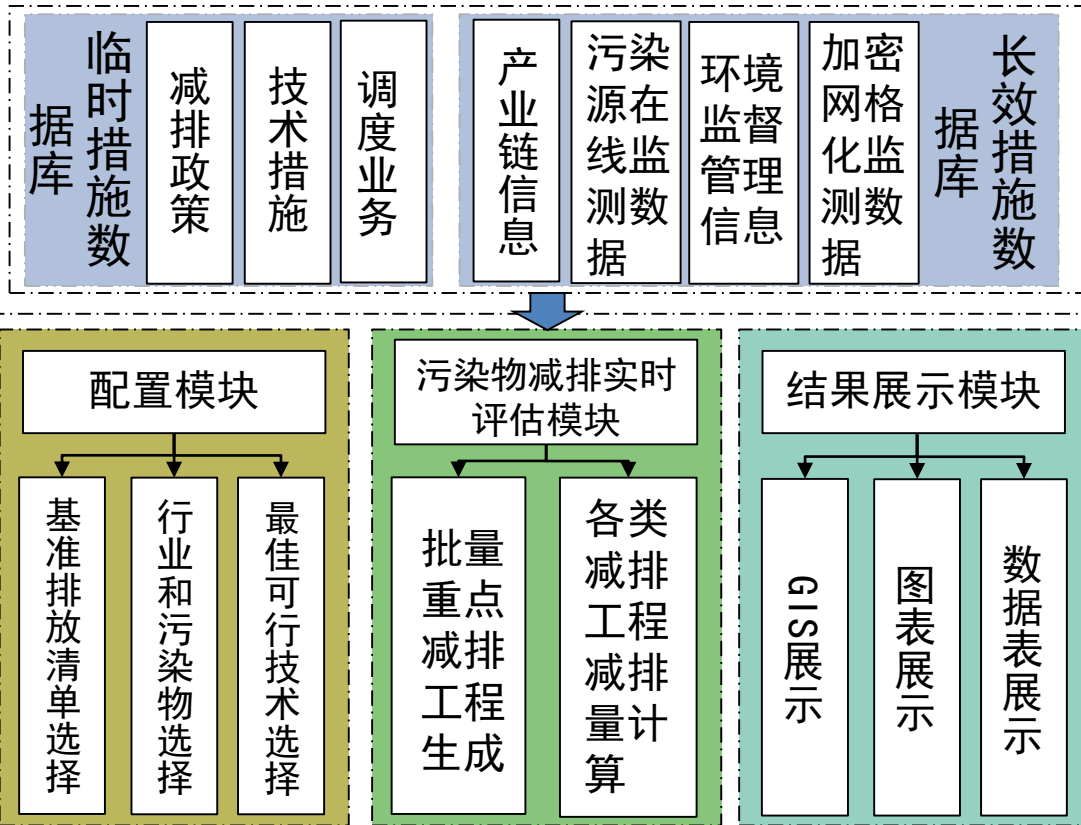
烷基苯>其它芳烃>长链烷烃>醇类

单位排放SOAFP：

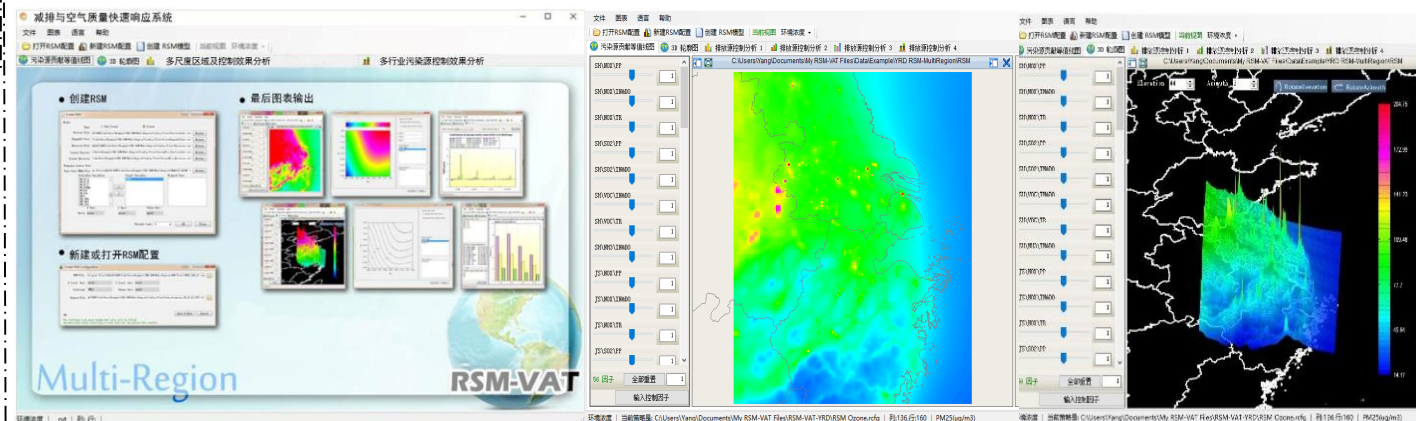
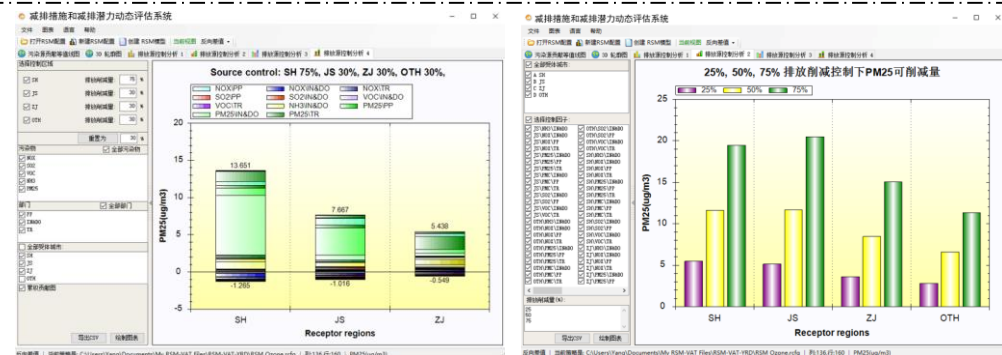
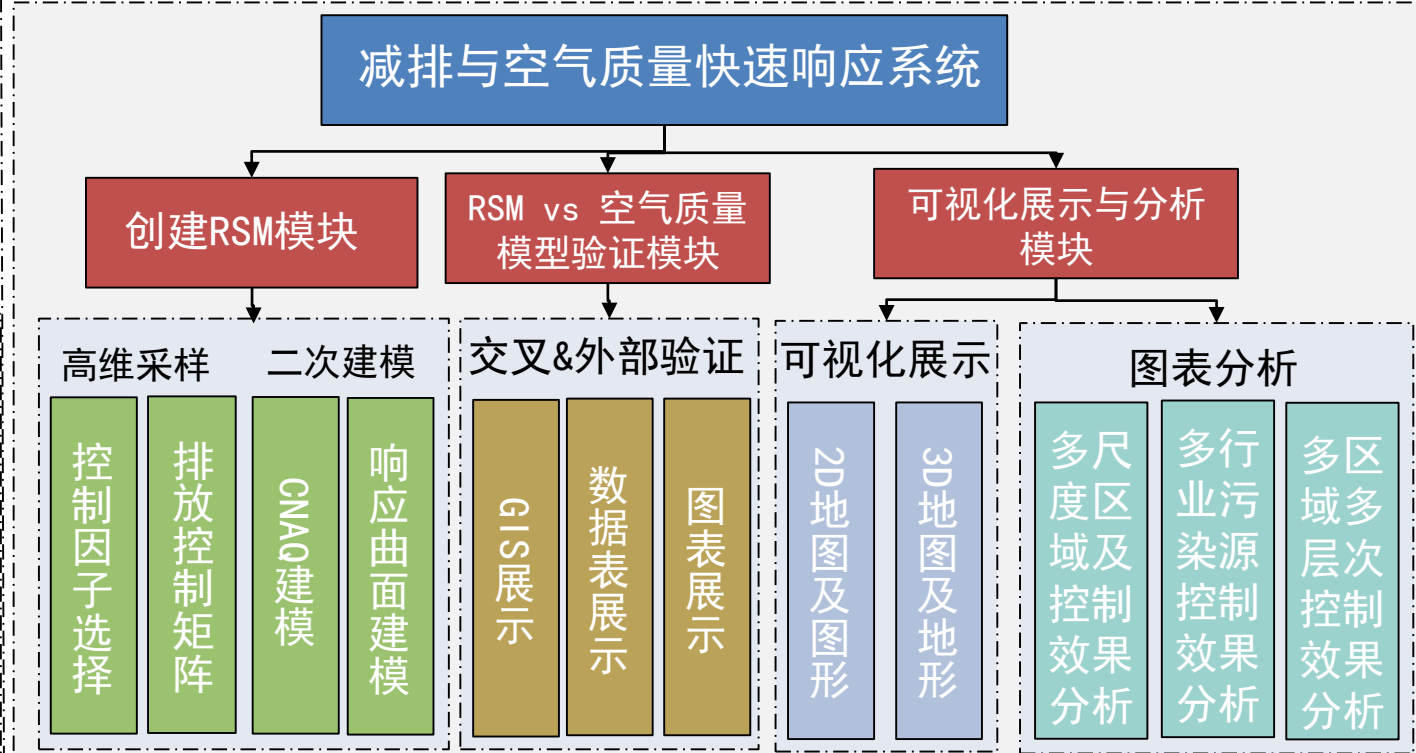
工业>民用燃烧>机动车>溶剂

大气污染防治综合科学决策支持平台

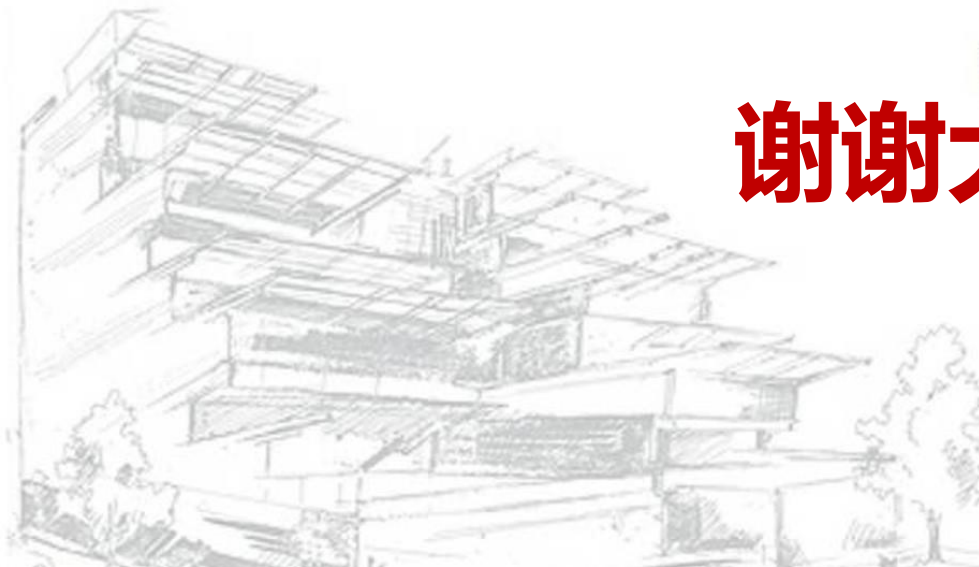
减排措施和潜力动态评估系统



减排与空气质量快速响应系统



2018 Joint CMAS-Asia-Pacific and ABaCAS International Conference May 21-23, 2018 Beijing, China



谢谢大家！

动态开放生物质燃烧排放清单的计算方法

动态燃烧效率估算方法：

- 植被覆盖率小于40%的网格：森林和灌木燃烧效率设为0，草原和农作物燃烧效率设为0.98；
- 植被覆盖率大于60%的网格：草原和农作物的燃烧效率设为0.9，森林的燃烧效率表示为与湿度相关的函数。

$$CF = (1 - e^{-1})^{mcf}$$

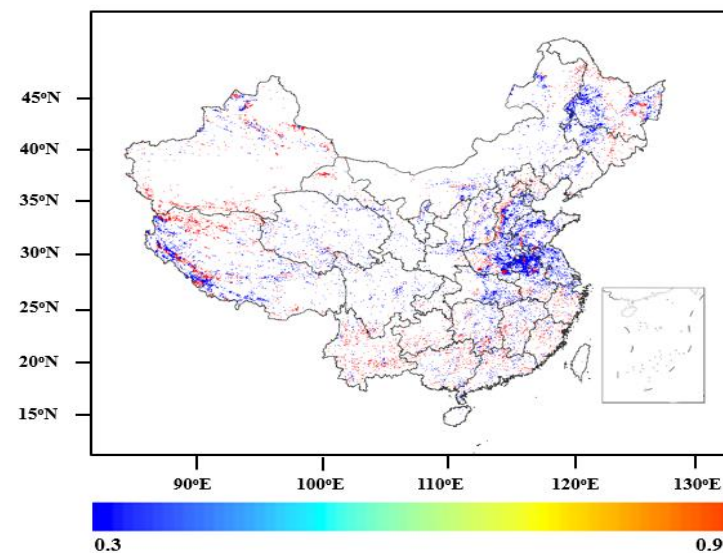
CF是表示植被的燃烧效率，mcf是湿度种类参数

mcf与植被状态指数相关：
$$VCI = 100 \times \frac{NDVI_t - NDVI_{min}}{NDVI_{max} - NDVI_{min}}$$

根据VCI将mcf分为6类：0.33（非常干燥）、0.5（干燥）、1（中等湿度）、2（潮湿）、4（湿）以及5（非常湿）。

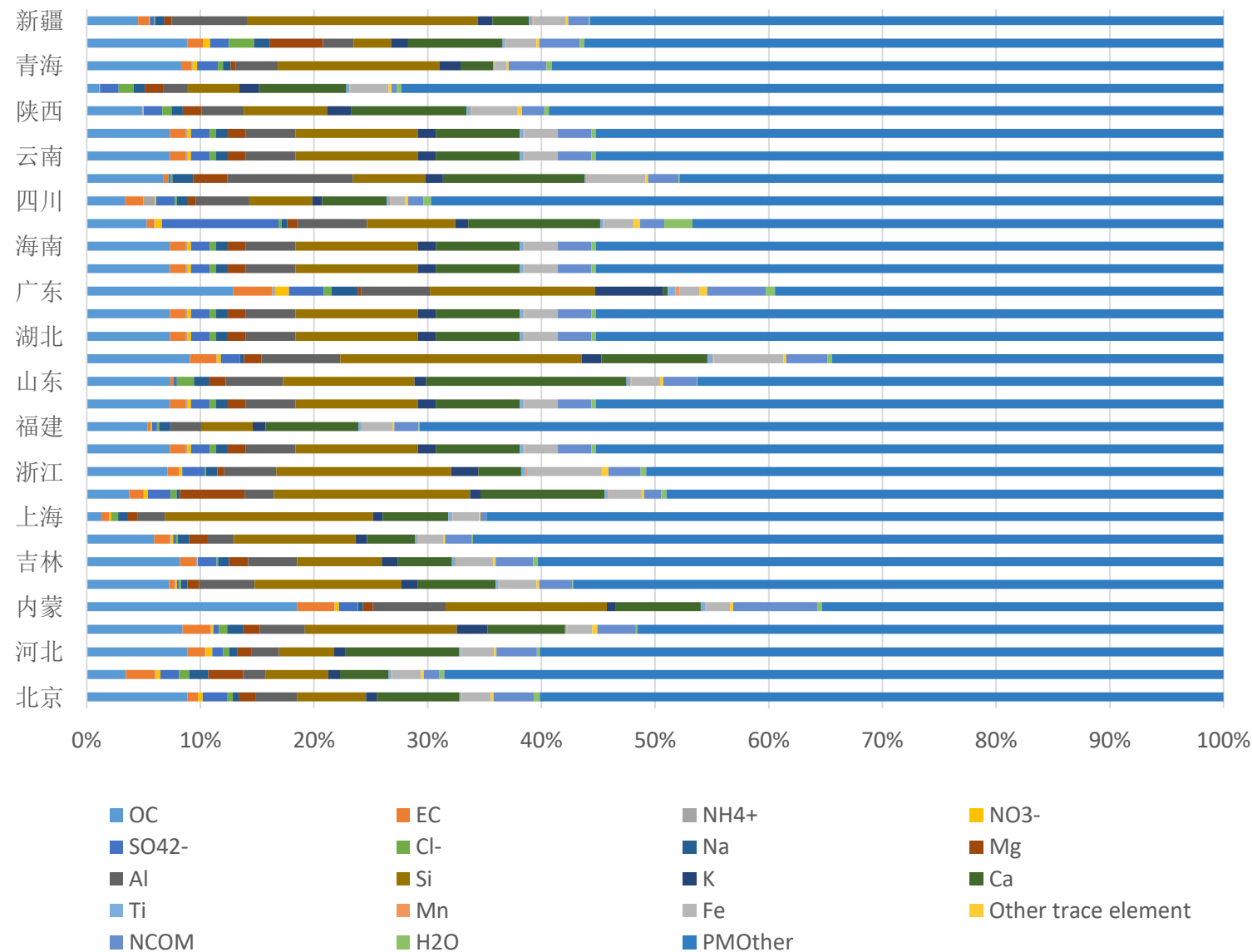
- 植被覆盖率在40%-60%的网格：森林，灌木燃烧效率设为0.3，草原和农作物的燃烧效率表示为与植被覆盖率相关的函数：

$$FB_{gc} = e^{-0.13 \times TC}$$



动态的燃烧效率值

我国各省道路扬尘源谱



➤ 扬尘源为混合源，受土壤类型、人为源影响

➤ 源谱主要组分：Al、Si、Ca、Fe等地质组分

➤ 道路扬尘受机动车影响EC、Cu等含量偏高

➤ 建筑扬尘受施工水泥影响Ca²⁺等含量偏高

➤ 不同地区土壤类型不同，源谱存在差异