中国人为源颗粒物排放模型及2001年排放清单估算*

张 强[1,2] Zbigniew Klimont[2] David G. Streets[3] 霍 红[1] 贺克斌[1**]

1. 清华大学环境科学与工程系，北京 100084；

2. International Institute for Applied Systems Analysis，A-2361 Laxenburg，Austria；

3. Decision and Information Sciences Division，Argonne National Laboratory，Argonne，IL 60439，USA

摘要 颗粒物是影响我国城市空气质量的主要污染物，且细颗粒物对区域和全球环境系统具有重要影响．了解颗粒物的源排放量及排放特征，对开展颗粒物研究具有重要意义．文中按经济部门、燃料类型和技术类型对颗粒物排放源进行分类，建立了一个基于技术的、自下而上的排放模型，并利用该模型计算出2001年全国主要人为源共向大气排放TSP（总悬浮颗粒物）2.651×10^7 t，PM_{10}（可吸入颗粒物）1.712×10^7 t，$PM_{2.5}$（细颗粒物）1.210×10^7 t．水泥生产、生物质燃料和燃煤源是最主要的$PM_{2.5}$排放源，分别占$PM_{2.5}$排放总量的35%，26%和20%．颗粒物排放的地区分布极不平衡，主要集中在东部地区．排放量最大的5个省份为山东、河北、江苏、河南和广东．进一步将排放分配到0.5°×0.5°的网格，从而为区域大气污染模拟研究提供基础数据．

关键词 大气污染 颗粒物 排放清单 排放因子 排放强度

大气颗粒物又称大气气溶胶，是由固体颗粒或小液滴在气体介质中形成的悬浮体系，根据空气动力学当量直径（简称粒径）大小，可分为总悬浮颗粒物（total suspended particles，简称TSP）和可吸入颗粒物．TSP指粒径小于100 μm的所有颗粒物．可吸入颗粒物指粒径小于10 μm的颗粒物，用PM_{10}表示．其中粒径范围为2.5—10 μm的可吸入颗粒物被称为粗颗粒，用$PM_{2.5-10}$表示；粒径小于2.5 μm的可吸入颗粒物被称为细颗粒，表示为$PM_{2.5}$．

目前，颗粒物是影响我国城市空气质量的最主要污染物，超过90%的省会城市的首要空气污染物为PM_{10}．颗粒物中危害最大的是细颗粒，危害到人体健康和能见度[1]；在大气中存在时间长，因此有可能通过长距离传输影响区域空气质量；而且，细颗粒中的不同组分可以直接或间接地影响区域和全球气候[2,3]．例如，研究者发现细颗粒中的元素碳(BC)是影响我国区域气候变化的一个重要因素，加速了南涝北旱的趋势[4]．

中国的大气颗粒物污染问题已经引起科学家和决策者的极大关注．综合利用排放清单、地面监测、航测、卫星遥感、大气模型等多种手段，研究颗粒物尤其是细颗粒物对区域环境和气候系统的影响，是当前大气环境研究的热点之一．2001年ACE-Asia（Asian Pacific regional aerosol characterization experiment）和TRACE-P（transport and chemical evolution over Pacific）等研究计划在东亚及太平洋地区进行了大规模的观测和模拟研究[5,6]．了解颗粒物的源排放量、排放特征及排放地理分布，对进一步开展这类综合研究具有重要意义．然而，目前针对中国颗粒物排放清单的研究刚刚起步．已有的研究大多聚焦于颗粒物中的

2005-05-13收稿，2005-08-22收修改稿

* 国家自然科学基金(批准号：50078027)资助项目

** 通讯作者，E-mail：hekb@mail.tsinghua.edu.cn

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

元素碳(BC)和有机碳(OC)[7-9]. Streets 等[7]为TRACE-P和ACE-ASIA估算的东亚地区排放清单(TRACE-P清单)是近年来区域大气污染和气候变化研究中应用最为广泛的排放清单之一. 该清单给出了中国地区2000年BC和OC的排放,但并未估算TSP或$PM_{2.5}$的排放. 另外也有研究估算了某一类排放源[10]或是某一地区的颗粒物排放1),但目前尚未见到覆盖全国的人为源颗粒物排放清单研究报道.

本研究针对中国主要的颗粒物人为排放源,建立了一个基于技术的、自下而上的排放模型,并利用该模型计算2001年我国人为源各种粒径范围颗粒物(TSP, PM_{10}和$PM_{2.5}$)的排放量,并给出了排放强度的地理分布.

1 方法

1.1 计算方法

建立一个列表模型,采用自下而上的方法计算中国人为源颗粒物排放量. 模型将颗粒物分为$PM_{>10}$, $PM_{2.5-10}$和$PM_{2.5}$三个粒径范围,分别计算排放量. 计算公式如下[11]:

$$E_{i,y} = \sum_{j,k,m} A_{i,j,k,m} \cdot ef_{i,j,k,m,y}, \quad (1)$$

$$ef_y = EF_{TSP} \cdot F_y \cdot \sum_n C_n \cdot (1 - \eta_{n,y}), \quad (2)$$

其中i为省(直辖市,自治区); y为粒径范围; j为部门; k为燃料类型或产品类型; m为技术类型; n为控制设施类型; $E_{i,y}$为i地区粒径范围y的颗粒物排放量; A为排放源活动水平,如燃料消耗量,产品产量等; ef为排放因子. EF_{TSP}为TSP产污系数, F_y为排放源产生的总颗粒物中粒径范围y的颗粒物所占比例; C为控制设施应用比例; $\eta_{n,y}$为控制设施n对于粒径范围y的颗粒物的去除效率.

1.2 研究范围及模型结构

模型研究区域包括中国大陆地区31个省、自治区和直辖市,计算了2001年的颗粒物排放量.

构建模型的原则是以评估区域尺度颗粒物排放水平为目的,将主要研究对象集中在重要的人为排放源上,把握与之关系显著的特征,同时兼顾模型的通用性和灵活性. 颗粒物的排放过程受燃料类型、燃料品质、燃烧技术、工艺技术、控制设施等诸多因素的影响,模型着眼于影响颗粒物排放的主要因素,确定模型的结构和主要参数. 另外,数据的可获得性也是决定模型结构的重要因素.

模型按经济部门、燃料类型和技术类型对排放源进行分类. 主要以技术为依据,考虑不同燃烧技术或工艺技术在颗粒物产生机理上的差别,划分详细的排放源类别. 对于每一种排放源,确定活动水平数据和相应的排放因子,计算出颗粒物排放量. 模型区分了颗粒物的4大类排放源(固定燃烧源、生物质开放燃烧、工业工艺源和移动源). 其中固定燃烧源涵盖3个经济部门(电力、工业和民用)和8种燃料类型(煤炭、柴油、煤油、燃料油、液化石油气、煤气、天然气和生物质). 生物质开放燃烧只考虑农田秸秆焚烧. 工业工艺源包括冶金、建材、化工3个部门共11种产品的生产过程,按有组织排放和无组织排放分别计算. 移动源包括7类道路移动源和6类非道路移动源.

2 模型参数确定

根据(1)和(2)式,模型计算各粒径范围颗粒物排放时需要确定的参数包括:排放源活动水平,如燃料消耗量,产品产量等;各种控制设施在排放源中的应用比例;各排放源的颗粒物产污系数;排放源产生的颗粒物中各粒径范围所占比例,即粒径分布;各控制措施对各粒径范围颗粒物的去除效率. 以下按排放源类别逐一讨论模型参数的确定过程. 模型参数确定过程中,参考了大量统计年鉴及相关行业统计资料,因篇幅所限,文中不一一列举其来源.

2.1 固定燃烧源

2.1.1 燃煤源 对于燃煤源,各省区分部门的煤炭消耗量由中国能源统计年鉴获得[12]. 燃烧方式划分为煤粉炉、流化床、层燃炉、茶浴炉、小煤炉等5类. 控制技术包括电除尘、湿式除尘和机械除尘. 根据中国电力企业联合会统计资料、中国机械工业年

1) 北京大学. 北京市大气污染的成因和来源分析. 北京市大气污染控制对策研究, 2002

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

鉴、中国城市统计年鉴等统计资料确定煤炭在各部门内部不同燃烧方式及控制技术之间的分配比例.

对于煤粉炉、流化床、层燃炉等大中型燃煤锅炉，采用物料衡算法确定颗粒物产污系数，即

$$EF_{TSP} = AC \cdot (1 - ar), \quad (3)$$

其中 AC 为煤中灰分，ar 为灰分进入底灰的比例. 对于茶浴炉和小煤炉等小型燃煤设备，参照文献[13]确定颗粒物产污系数.

省间煤炭流动会影响各省消费煤炭的灰分，使之与各省生产煤炭的灰分出现差异. 为更准确估计各省燃煤设备的颗粒物产污系数，模型根据各省生产原煤灰分与各省间煤炭传输矩阵[14]，计算各省消费煤炭的灰分. 各省生产原煤的灰分为20世纪90年代中期各省主要矿区生产的商品煤灰分与该矿区煤产量的加权平均.

我国关于源排放颗粒物粒径分布特征的研究开展较少. 模型中，排放源产生的颗粒物的粒径分布主要参考国外相关研究及数据库[11,15]. 各控制措施对各粒径范围颗粒物的去除效率主要参考文献[15，16].

表1列出了计算燃煤源颗粒物排放因子的相关参数值.

表1 中国燃煤源颗粒物排放因子计算的相关参数值

部门	燃烧方式	污染控制技术	燃煤灰分[14]a)	底灰比例	烟气中颗粒物粒径比例[11,15]			去除效率[15,16]		
					$PM_{>10}$	$PM_{2.5-10}$	$PM_{2.5}$	$PM_{>10}$	$PM_{2.5-10}$	$PM_{2.5}$
电力	煤粉炉	电除尘	0.25	0.20	0.77	0.17	0.06	0.995	0.98	0.93
	煤粉炉	湿式除尘	0.25	0.20	0.77	0.17	0.06	0.99	0.9	0.5
	层燃炉	湿式除尘	0.25	0.85	0.63	0.23	0.14	0.99	0.9	0.5
	层燃炉	机械式除尘	0.25	0.85	0.63	0.23	0.14	0.9	0.7	0.1
工业	流化床	湿式除尘	0.18	0.4	0.74	0.21	0.05	0.99	0.9	0.5
	层燃炉	湿式除尘	0.18	0.85	0.80	0.13	0.07	0.99	0.9	0.5
	层燃炉	机械式除尘	0.18	0.85	0.80	0.13	0.07	0.9	0.7	0.1
	层燃炉	无	0.18	0.85	0.80	0.13	0.07	0	0	0
民用	层燃炉	湿式除尘	0.18	0.85	0.80	0.13	0.07	0.99	0.9	0.5
	层燃炉	机械式除尘	0.18	0.85	0.80	0.13	0.07	0.9	0.7	0.1
	层燃炉	无	0.18	0.85	0.80	0.13	0.07	0	0	0
	茶浴炉	无	—	—	0.30	0.30	0.40	0	0	0
	小煤炉	无	—	—	0.10	0.20	0.70	0	0	0

a) 全国平均水平，模型实际计算中考虑各省差异

2.1.2 其他固定燃烧源 除煤炭外，固定燃烧源还包括柴油、煤油、燃料油、液化石油气、煤气、天然气等液体和气体燃料. 这些燃料的消耗量从中国能源统计年鉴获得. 其中，柴油消耗量为全国柴油总消耗量扣除移动源消耗量后剩余部分. 目前我国对液体和气体燃料基本未采取颗粒物控制措施，模型中，无控状态下的排放因子参照文献[15]取值.

另外，我国农村地区普遍将薪柴、秸秆等生物质作为燃料利用. 这部分燃料消耗量从中国农业统计资料获得. 生物质排放的颗粒物中，绝大部分为细颗粒物. 模型中薪柴的排放因子取 TSP：6 g·kg^{-1}，PM_{10}：5.7 g·kg^{-1}，$PM_{2.5}$：5.6 g·kg^{-1}；秸秆的排放因子取 TSP：7.5 g·kg^{-1}，PM_{10}：7.2 g·kg^{-1}，$PM_{2.5}$：7.0 g·kg^{-1}[9,13].

2.2 生物质开放燃烧

模型只考虑了人为活动引起的生物质开放燃烧，即农田秸秆焚烧. 农田秸秆焚烧量参照文献[17]中的方法，即首先通过各种农作物的产量计算出秸秆产生量，然后根据秸秆在农田中焚烧的比例(17%)[18]，估计出秸秆焚烧量. 秸秆焚烧的排放因子取 TSP：13 g·kg^{-1}，PM_{10}：10 g·kg^{-1}，$PM_{2.5}$：3.9 g·kg^{-1}[19].

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

2.3 工艺排放

工业工艺排放源种类繁多，很难逐一计算. 模型主要考虑了对颗粒物贡献较大的冶金、建材、化工3个部门，包括炼焦、烧结、炼铁、炼钢、有色冶金、砖瓦、水泥、石灰、玻璃、石墨、化肥等11种产品，计算其生产工艺过程的颗粒物排放，并初步估算了炼焦、钢铁、水泥3个行业的无组织排放. 各种产品产量及技术分布特征主要通过相关统计资料及研究报告获得，并辅以部分行业调查数据[20—22]. 颗粒物有组织排放的产污系数主要从文献[15，23]获得. 控制措施考虑布袋除尘、电除尘、湿式除尘和机械除尘4种. 无组织排放因子参考了北京市工业无组织排放的测试结果和美国相关研究[15]1). 表2和3分别给出了部分工艺排放源的颗粒物有组织和无组织排放因子.

表2 主要工业工艺源颗粒物有组织排放因子

工艺	TSP产污系数/(kg·t^{-1})	原始废气中颗粒物粒径比例			排放因子a)/(kg·t^{-1})		
		$PM_{>10}$	$PM_{2.5-10}$	$PM_{2.5}$	$PM_{>10}$	$PM_{2.5-10}$	$PM_{2.5}$
机制炼焦	0.22	0	0	1	0	0	0.13
土法炼焦	0.9	0	0	1	0	0	0.89
烧结	40	0.85	0.08	0.07	0.46	0.15	0.39
炼铁	1.48	0.84	0.06	0.1	0.011	0.008	0.067
转炉炼钢	20.9	0.33	0.02	0.65	0.01	0.01	0.13
铝	40	0.42	0.18	0.4	1.1	1.3	9
水泥	130	0.58	0.24	0.18	1.5	2.41	6.49
石灰	35	0.88	0.1	0.02	19.71	2.52	0.67
砖瓦	97.5a)	0.8	0.13	0.07	49.9	9.1	6.6

a) 排放因子单位为每1万块砖中的颗粒物质量(kg)

表3 主要工业工艺源颗粒物无组织排放因子

工艺	排放因子/(kg·t^{-1})		
	$PM_{>10}$	$PM_{2.5-10}$	$PM_{2.5}$
机制炼焦	2.25	1.0	1.75
土法炼焦	8.00	4.00	8.00
烧结	1.02	0.10	0.078
炼铁	1.24	0.18	0.23
转炉炼钢	0.62	0.14	0.27
水泥	0.64	0.26	0.20

2.4 移动源

2.4.1 道路移动源 参照美国EPA的机动车排放模型MOBILE中的分类方法[24]，模型将道路机动车分为轿车(LDGV)、轻型汽油车(LDGT1)、中型汽油车(LDGT2)、重型汽油车(HDGV)、轻型柴油车(LDDT)、重型柴油车(HDDV)及摩托车(MC)等7类. 各车型的燃料消耗量采用文献[25]中建立的模型方法，根据机动车保有量(VP)、年均行驶里程(VMT)和平均燃料经济性(FE)估算得到. 每种机动车的保有量根据该车型过去15年的产销量估算；年均行驶里程根据客货运量推算，估算结果见表4.

机动车的排放水平由机动车整体污染控制技术而不是单个技术决定. 国家通过逐步提高排放标准来推动机动车污染控制技术的进步. 我国机动车污染控制水平较低，单车排放水平较发达国家高出2—10倍[26]. 我国从1999年颁布相当于欧I的排放标准，2001年在全国范围实施. 2004年起实施相当于欧II的排放标准. 模型将每种车型按控制技术水平分为欧0，欧I和欧II 3类，根据机动车的技术比例和每种控制技术水平下的颗粒物排放因子确定机动车的平均排放水平. 机动车排放的颗粒物中，细

1) 见第224页脚注1)

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

颗粒物占了绝大部分，表4中给出了$PM_{2.5}$的排放 因子.

表4 中国道路机动车活动水平及排放因子(2001年)

车型	VP /万辆	VMT /km	FE /(L·100⁻¹)	油耗量 /10⁴t	技术比例a) 欧0	欧I	欧II	$PM_{2.5}$排放因子/(g·kg⁻¹) 欧0	欧I	欧II
轿车	554	26400	9.1	974	0.89	0.08	0.03	0.25	0.15	0.08
轻型汽油车	495.8	34900	9.5	1203	0.89	0.08	0.03	0.25	0.16	0.07
中型汽油车	55.3	26720	14.5	157	0.89	0.08	0.03	0.40	0.25	0.10
轻型柴油车	160.4	24220	13.8	469	0.89	0.07	0.04	5.50	2.20	1.40
重型汽油车	148.4	25670	26.4	736	0.94	0.05	0.01	0.40	0.25	0.10
重型柴油车	344.6	29210	23.4	2061	0.94	0.05	0.01	3.00	1.60	0.70
摩托车	4331	9000	2.7	770	0.88	0.12	0	6.00	4.00	1.80

a) 表中技术比例为全国平均水平.对于排放标准严于国家标准的地区(北京，上海等)，模型中予以单独考虑

2.4.2 非道路移动源 非道路移动源包括农业机械、建筑矿山机械、拖拉机、农用运输车、内燃机火车和内河船舶等6类. 非道路移动源主要消耗柴油. 其柴油消耗量，农业机械和建筑矿山机械根据保有量、功率和年均使用时间估算；拖拉机和农用运输车根据保有量、年均行驶里程和平均燃料经济性估算；内燃机火车和内河船舶根据客货运量和平均燃料经济性估算. 我国对非道路移动源的污染控制刚刚起步，目前对于颗粒物只实施了较为宽松的烟度标准. 因此模型中暂不考虑非道路移动源的颗粒物控制措施，排放因子参考美国20世纪70年代末期同类设备的排放因子[27].

3 结果与讨论

3.1 排放总量

根据本研究建立的模型，计算出2001年全国主要人为源共向大气排放颗粒物2.651×10^7 t. 可吸入颗粒物PM_{10}排放量1.712×10^7 t，占TSP排放总量的65%；细颗粒物$PM_{2.5}$排放量1.210×10^7 t，占TSP排放总量的46%和PM_{10}排放总量的71%. 表5给出了各种粒径的颗粒物排放量. 从表中可以看出，工业工艺源是最大的颗粒物排放源，占颗粒物总排放量的一半左右，其次是燃煤源和生物质燃烧. 细颗粒在颗粒物排放总量中占据重要地位. 其主要原因一方面是工业部门的除尘装置大多为机械式除尘器和湿式除尘器，这些设备对粗颗粒的去除效率很高，但对细颗粒的去除效率较低，因此排放源产生的颗粒物中，粗颗粒大部分被除尘装置去除，而细颗粒大部分排入大气. 另一方面是因为生物质燃烧排放的颗粒物中，细颗粒占绝大部分. 表5同时还给出了TRACE-P清单中中国地区的BC和OC排放量. 通过比较可以看出，生物质燃烧时排放的细颗粒物中BC和OC所占比例最高，移动源次之，燃煤源最低.

表5 2001年中国人为源颗粒物排放量(单位:10⁴ t)

	固定燃烧源 燃煤	生物质	其他	工业工艺源 有组织	无组织	移动源 道路	非道路	生物质开放燃烧
TSP	557.4	331.2	7.7	1357.3	230.2	12.3	17.8	136.8
PM_{10}	375.6	318	6.9	758.4	118.9	12.3	16.9	105.3
$PM_{2.5}$	239.8	308	5.9	515.8	70.7	12.3	16.1	41.1
$PM_{2.5}$/TSP	0.43	0.93	0.77	0.38	0.31	1.00	0.90	0.30
BC[a)]	39.4	46.3	1.9	—	—		6.0	7.3
OC[a)]	27.6	231.4	1.5	—	—		5.2	34.8
(BC+OC)/$PM_{2.5}$	0.28	0.90	0.57	—	—		0.39	1.02

a) 为Streets等的估算结果[8]

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

3.2 排放部门分布

本节主要针对颗粒物中危害和影响最大的细颗粒，讨论颗粒物排放的部门分布特征.

在燃煤排放的 $PM_{2.5}$ 中，电力、工业和民用3个部门的贡献率分别为49%，20%和31%. 电力部门最主要的燃烧设备是煤粉炉，颗粒物产污系数可达100—300 $g \cdot kg^{-1}$，但通过电除尘等高效除尘设备可去除绝大部分颗粒物. 目前我国大部分电厂已采用电除尘，但2001年仍有20%左右的电厂采用低效除尘器，这部分电厂贡献的 $PM_{2.5}$ 排放量达到 7.23×10^5 t，占电厂 $PM_{2.5}$ 排放总量的62%. 因此尽快改造这部分电厂的除尘设备，能够有效减少电力部门的细颗粒排放. 工业锅炉最主要的炉型为层燃炉，颗粒物产污系数在15—30 $g \cdot kg^{-1}$，目前我国工业锅炉虽然大都配备了除尘装置，但主要为湿式除尘器和机械除尘器，这两类除尘器对 $PM_{2.5}$ 的去除效率都不高，因此工业锅炉也是一个重要的细颗粒排放源. 民用部门的燃煤设备以小煤炉、茶浴炉等小型设备为主，基本无颗粒物控制措施，2001年，由小煤炉和茶浴炉贡献的 $PM_{2.5}$ 排放量达到 6.85×10^5 t. 而且，由于这些设备燃烧效率低下，排放的颗粒物中含有大量碳黑，是对BC排放贡献最大的部门[7].

在农村地区广泛作为燃料的生物质，对颗粒物排放具有很大的贡献. 2001年全国生物质燃料的消耗量达到 4.76×10^8 t，其排放的颗粒物中，绝大部分是细颗粒，排放量达到 3.08×10^6 t，占排放总量的26%，甚至超过了燃煤排放的贡献. 生物质燃料排放的颗粒物中含有大量的OC，是全球范围内最重要的OC人为排放源，同时也是重要的BC源之一[9].

生物质开放燃烧，即秸秆焚烧贡献的 $PM_{2.5}$ 排放量为 4.11×10^5 t，占 $PM_{2.5}$ 总排放量的3.4%. 但秸秆焚烧一般集中在农作物收割及播种期间，因此对于特定地区，在局部时间段内对大气颗粒物浓度具有很大影响，Duan 等[28]在北京的研究表明，在5—7月间，秸秆焚烧对北京郊区大气中OC浓度的贡献达30%—70%.

2001年，全国主要工业工艺源的 $PM_{2.5}$ 排放量约为 5.73×10^6 t，占 $PM_{2.5}$ 排放总量的48%. 其中，对 $PM_{2.5}$ 排放贡献较大的有炼焦、钢铁、砖瓦、水泥等. 炼焦行业排放 $PM_{2.5}$ 5.03×10^5 t，大部分来自无组织排放. 其中，落后的土焦工艺贡献了 3.63×10^5 t. 因此，全面淘汰土焦是减少炼焦业颗粒物排放的关键. 钢铁行业烧结、炼铁、炼钢各工艺共排放 $PM_{2.5}$ 1.96×10^5 t，有组织和无组织排放各占50%. 砖瓦业 $PM_{2.5}$ 排放量约为 3.66×10^5 t，但目前尚未见到有关砖窑颗粒物排放特征的研究报道，模型中假设其排放的颗粒物与工业部门的层燃炉具有相似的粒径分布，因此这一估算结果存在较大不确定性. Bond 等[9]认为砖窑颗粒物排放量不容忽视，可能是一个重要的BC排放源.

我国2001年水泥产量达到 6.6×10^8 t，TSP年排放量达到 7.50×10^6 t. 其中，$PM_{2.5}$ 排放量约为 4.36×10^6 t，占全国排放总量的35%，是最大的 $PM_{2.5}$ 排放源. 水泥生产过程的颗粒物产污系数非常高，每生产1 t水泥会产生100—150 kg的颗粒物. 由于当时我国的水泥厂颗粒物排放标准相对宽松，排放限值针对不同企业在100—600 $mg \cdot m^{-3}$ 之间. 因此大部分水泥企业采用了湿式除尘或机械除尘等低效除尘器，无法有效去除细颗粒物. 需要注意的是，2005年起，我国开始实施新的水泥厂大气污染物排放标准，颗粒物排放限值为100 $mg \cdot m^{-3}$. 如果所有企业均达标，则颗粒物排放量将削减2/3以上，$PM_{2.5}$ 排放量削减75%以上. 这一方面无疑将有效改善空气质量，另一方面，水泥厂排放的颗粒物呈碱性，其大量减少将可能影响大气中的化学过程，例如酸雨过程等.

2001年道路移动源共排放 $PM_{2.5}$ 约 1.23×10^5 t，其主要贡献来自于柴油车和摩托车，分别贡献了 6.0×10^4 t和 3.0×10^4 t. 道路机动车排放量占总排放量的比例很小，但集中在人口密集的城市区域，尤其是在北京、上海、广州等特大型城市，机动车污染物的分担率不容忽视. 非道路移动源共排放 $PM_{2.5}$ 1.61×10^5 t，贡献较大的源有拖拉机、建筑矿山机械和农用运输车，分别排放 5.6×10^4，3.4×10^4 和 3.3×10^4 t. 由于缺少非道路移动源准确的燃料消耗数据，且未见国内有关排放因子测试研究报道，这部分估算结果存在较大不确定性.

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

3.3 排放地理分布

图1给出了2001年全国各省区的人为源颗粒物排放量计算结果. 从图中可以看出，颗粒物排放的地区分布极不平衡. 排放主要集中在东部地区. 排放量最大的5个省份山东、河北、江苏、河南和广东，全集中在华北和沿海地区，各省TSP排放量均超过1.50×10^6 t，$PM_{2.5}$排放量均超过7.0×10^5 t. 而青海、宁夏、西藏等边远省区的年TSP排放量均不足1.5×10^5 t. 图2进一步给出了各省$PM_{2.5}$排放量在各部门之间的比例. 从图中可以看出，对于绝大部分省区，工业工艺源、燃煤源和生物质燃烧源是最主要的3类$PM_{2.5}$排放源. 但各省间这3类源的排放分担率差别较大. 经济发展水平、人口密集程度以及工业产业结构是造成排放地区分布差异的主要原因.

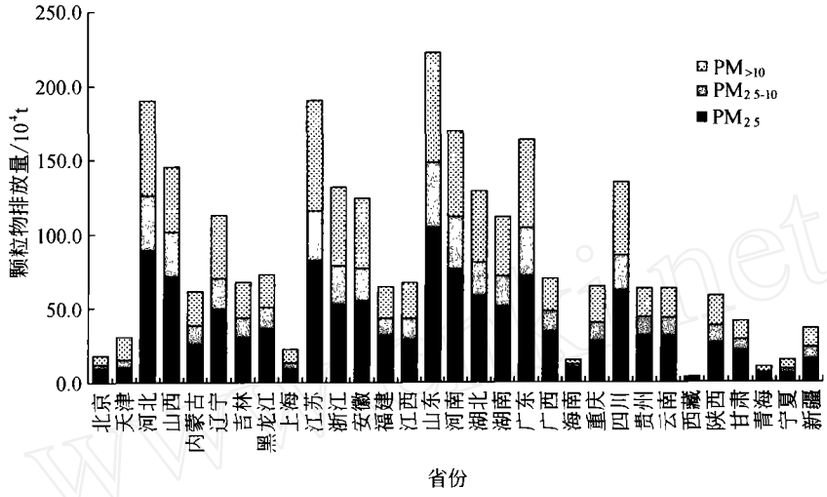

图1 2001年各省人为源颗粒物排放量

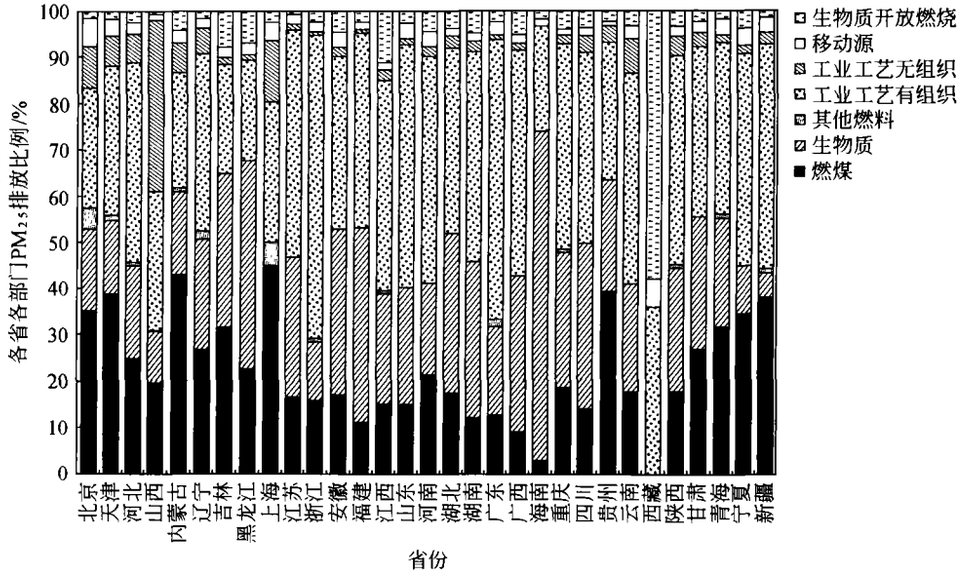

图2 2001年各省$PM_{2.5}$排放部门分布

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

为进一步揭示排放特征的区域差异，并为大气化学模式提供高精度排放清单，研究基于GIS技术对分省排放清单进行了网格化. 根据行政边界、大点源位置、人口密度、土地利用状况、公路网络等高精度电子地图信息，将省一级排放量分配到网格[29]. 图3给出了0.5°×0.5°的$PM_{2.5}$排放强度分布. 从图中可以看出，年排放强度超过5 t·km^{-2}的地区主要集中在华北和华东地区，如河北南部、山东西部、山西中部、河南西部、江苏南部等地区，均出现大面积的高强度排放区域. 另外辽宁、广东、四川和重庆的部分地区也呈现高强度的颗粒物排放. 这一空间分布特征与2000年6月至2001年6月间全国年日均PM_{10}浓度空间分布特征吻合较好，说明我国颗粒物污染在排放和大气浓度两个方面均呈现明显的区域特征[30].

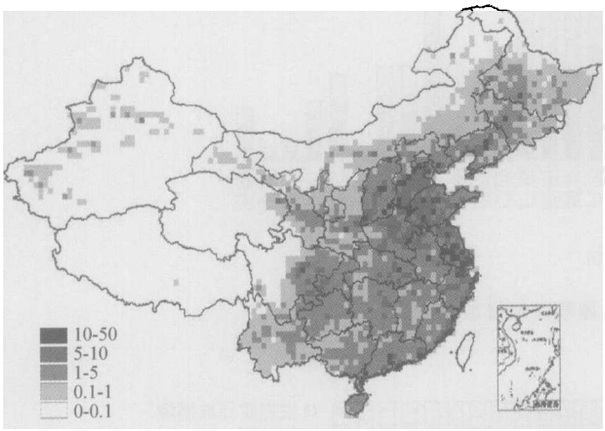

图3 2001年中国人为源$PM_{2.5}$排放强度地理分布，0.5°×0.5°(单位：t·a^{-1}·km^{-2})

3.4 不确定性

与气态污染物相比，估算颗粒物排放量的难度更大. 这一方面是由于颗粒物的来源更为复杂，除燃烧过程外，各种工业工艺过程也排放大量颗粒物；另一方面是由于各类除尘设备的效率差别较大，导致难以精确估计颗粒物的最终排放因子. 本研究首次估算了2001年全国人为源颗粒物排放清单，但由于基础数据的缺乏，导致该清单仍然存在较大的不确定性. 从公式(1)可以看出，影响颗粒物排放量估算的主要因素为活动水平和排放因子. 为便于和同类研究比较，采用与TRACE-P清单相同的误差估算方法来估算本研究的不确定性，详细计算方法见文献[8]. 计算结果显示，在95%置信度下，本研究估算的颗粒物排放清单的相对标准差约为±211%. 这一误差水平要高于TRACE-P清单中各种气态污染物的误差，但低于BC和OC的误差(分别为±484%和±495%). 图4进一步给出了各类排放源的相对标准差. 从图中可以看出，生物质燃烧排放的不确定性最大，而燃煤排放的不确定性则相对较小.

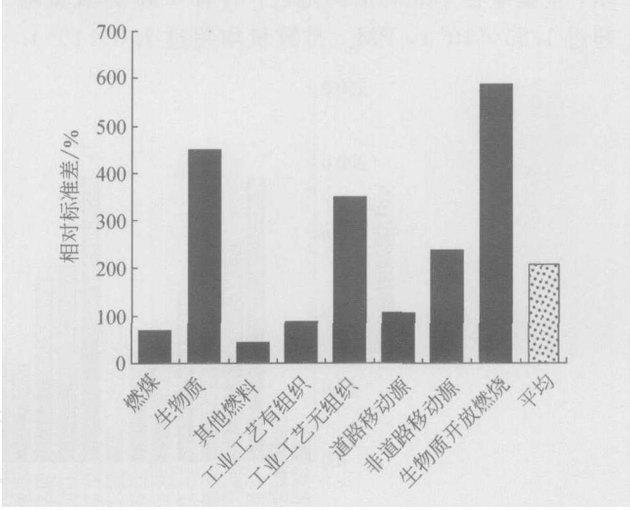

图4 95%置信度下各类排放源的相对标准差

4 结论

本研究按经济部门、燃料类型和技术类型对颗粒物排放源进行分类，建立了一个基于技术的、自下而上的排放模型，并利用该模型计算和分析了2001年全国主要人为源颗粒物排放量，获得的主要结论如下：

(1) 2001年全国主要人为源共向大气排放TSP 2.651×10^7 t，PM_{10}排放量1.712×10^7 t，$PM_{2.5}$排放量1.210×10^7 t. 颗粒物控制措施不力、排放量巨大的生物质燃烧源中$PM_{2.5}$占绝对优势，是颗粒物排放总量中$PM_{2.5}$比例较高的主要原因.

(2) 水泥生产、生物质燃料和燃煤源是最主要的$PM_{2.5}$排放源，分别占$PM_{2.5}$排放总量的35%、26%和20%. 国家对水泥厂颗粒物排放标准的加严将可能对全国$PM_{2.5}$污染特征带来很大影响.

(3) 颗粒物排放的地区分布极不平衡. 排放主要集中在东部地区. 排放量最大的五个省份为山东、河北、江苏、河南和广东. 0.5°×0.5°的$PM_{2.5}$

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

排放强度网格化结果显示，排放空间分布特征与同期年日均 PM_{10} 浓度空间分布特征吻合较好，说明我国颗粒物污染在排放和大气浓度两个方面均呈现明显的区域特征.

参 考 文 献

1 Dockery D W, Pope C A, Xu X, et al. An association between air-pollution and mortality in 6 United States cities. New England Journal of Medicine, 2001, 329 (24): 1753—1759

2 IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change). Climate Change 2001: The Scientific Basis. London: Cambridge University Press, 2001

3 Hansen J, Nazarenko L. Soot climate forcing via snow and ice albedos. Proceedings of National Academy Sciences, 2004, 101 (2): 423—428

4 Menon S, Hansen J, Nazarenko L, et al. Climate effects of black carbon aerosols in China and India. Science, 2002, 297: 2250—2253

5 Jacob D J, Crawford J H, Kelb M M, et al. Transport and chemical evolution over the Pacific (TRACE-P) mission: Design, execution, and first results. J Geophys Res, 2003, 108(D20): 8781

6 Huebert B J, Bates T, Russell P B, et al. An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts. J Geophys Res, 2003, 108 (D23): 8633

7 Streets D G, Gupta S, Waldhoff S T, et al. Black carbon emissions in China. Atmospheric Environment, 2001, 35: 4281—4296

8 Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, et al. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. J Geophys Res, 2003, 108(D21): 8809

9 Bond, T C, Streets D G, Yaber K F, et al. A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, J Geophys Res, 2004, 109, D14203

10 李 伟，傅立新，郝吉明，等. 中国道路机动车10种污染物的排放量. 城市环境与城市生态，2003，16(2)：36—38

11 Klimont Z, Cofala J, Bertok I, et al. Modeling particulate emissions in Europe: A framework to estimate reduction potential and control costs. Interim Report, IR-02-076, Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Austria, 2002

12 国家统计局工业交通统计司，国家发展和改革委员会能源局. 中国能源统计年鉴 2000-2002. 北京：中国统计出版社，2004

13 Zhang J, Smith K R, Ma Y, et al. Greenhouse gases and other airborne pollutants from houslehold stoves in China: A database for emission factors. Atmospheric Environment, 2000, 34: 4537—4549

14 蒋靖坤，郝吉明，吴 烨，等. 中国燃煤汞排放清单的初步建立. 环境科学，2005，26(3)：34—39

15 U. S. Environmental Protection Agency. Compilation of air pollutant emission factors. Rep AP-42, Research Triangle Park, N. C. 1996

16 吴忠标主编. 实用环境工程手册：大气污染控制工程. 北京：化学工业出版社，2001

17 Streets D G, Yarber K F, Woo J H, et al. Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. Global Biogeochemical Cycles, 2003, 17(4): 1099—1118

18 Hao W M, Liu M. Spatial and temporal distribution of tropical biomass burning. Global Biogeochemical Cycles, 1994, 8: 495—503

19 Andreae M O, Merlet P. Emissions of trace gases and aerosols from biomass burning. Global Biogeochemical Cycles, 2001, 15: 955—966

20 国家统计局. 中国统计年鉴 2001. 北京：中国统计出版社，2002

21 国家统计局工业交通统计司编. 中国工业经济统计年鉴 2001. 北京：中国统计出版社，2002

22 周大地，主编. 2020 中国可持续能源情景. 北京：中国环境科学出版社，2003

23 国家环境保护局科技标准司编. 工业污染物产生和排放系数手册. 北京：中国环境科学出版社，1996

24 U. S. Environmental Protection Agency. User's guide to MOBILE6. EPA420-R-03-010, U. S. Environmental Protection Agency, 2003

25 He K, Huo H, Zhang Q, et al. Oil consumption and CO_2 emissions in China's road transport: Current status, future trends, and policy implications. Energy Policy, 2005, 33: 1499—1507

26 Fu L, Hao J, He D, et al. Assessment of vehicular pollution in China. J Air & Waste Manage Assoc, 2001, 51: 658—668

27 U. S. Environmental Protection Agency. Nonroad engine and vehicle emission study (NEVES). Rep EPA-21A-2001, Research Triangle Park N C 1991

28 Duan F, Liu X, Yu T, et al. Identification and estimate of biomass burning contribution to the urban aerosol organic carbon concentrations in Beijing. Atmospheric Environment, 2004, 38: 1275—1282

29 Woo J H, Baek J M, Kim J W, et al. Development of a multi-resolution emission inventory and its impact on sulfur distribution for Northeast Asia. Water, Air, and Soil Pollution, 2003, 148: 259—278

30 任阵海，万本太，苏福庆，等. 当前我国大气环境质量的几个特征. 环境科学研究，2004，17(1)：1—6

© 1994-2010 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net