

广东省人为源大气污染物排放清单及特征研究

潘月云¹, 李楠¹, 郑君瑜^{1,*}, 尹沙沙¹, 李成¹, 杨静¹, 钟流举², 陈多宏²

1. 华南理工大学环境与能源学院, 广州 510006
2. 广东省环境监测中心, 广州 510308

摘要: 本研究根据收集的广东省人为源活动水平数据, 采用合理的估算方法、排放因子和 GIS 技术, 建立了该地区 2010 年 3km×3km 人为源大气污染物排放清单。结果显示, 2010 年广东省 SO₂、NO_x、CO、PM₁₀、PM_{2.5}、BC、OC、VOCs 和 NH₃ 排放总量分别为 867.8kt、1607.0kt、7476.0kt、1399.8kt、639.5kt、70.0kt、79.1kt、1416.7kt 和 537.9kt。固定燃烧源是 SO₂ 和 NO_x 的最大排放贡献源, CO 排放主要来自道路移动源、固定燃烧源和生物质燃烧源, 扬尘源和工业过程源是主要的 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 排放源, 道路移动源和生物质燃烧源分别是最大的 BC 和 OC 贡献源, VOCs 排放主要来自有机溶剂使用源、道路移动源和工业过程源, NH₃ 排放主要来源于畜禽养殖和氮肥施用。东莞、佛山和广州是主要的 SO₂、NO_x、CO 和 VOCs 排放城市, 广州、清远和梅州是最主要的 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 排放城市, BC 排放集中在广州、深圳、东莞、佛山等珠三角城市, OC 的重要排放城市为湛江和茂名, NH₃ 排放主要分布在茂名、湛江和肇庆。空间分布结果显示, 广东省 NH₃ 排放高值区分布在粤西和粤东地区, 其他污染物排放高值区则主要分布在珠三角城市群。本研究建立的排放源清单仍具有一定的不确定性, 建议后续研究加强大气污染源排放的基础研究, 进一步完善该地区的排放源清单, 以期对区域大气污染预报预警和污染控制措施的制定提供重要基础数据。

关键字: 人为源; 排放清单; 广东省; 空间分布

文章编号:

中图分类号:

文献标识码: A

Emission inventory and characteristics of anthropogenic air pollutant sources in Guangdong Province

Pan Yueyun¹, Li Nan¹, Zheng Junyu^{1,*}, Yin Shasha¹, Li Cheng¹, Yang Jing¹, Zhong Liuju²

1. College of Environment and Energy, South China University of Technology, Guangzhou 510006
2. Guangdong Environmental Monitoring Center, Guangzhou 510308

Abstract: Based on the collected activity data and emission factors, a 2010-based and 3km×3km gridded anthropogenic air pollutant emission inventory was developed for Guangdong Province with the use of appropriate emission estimation methods. Results showed that total emissions of SO₂, NO_x, CO, PM₁₀, PM_{2.5}, BC, OC, VOCs and NH₃ in Guangdong Province were 867.8kt, 1607.0kt, 7476.0kt, 1399.8kt, 639.5kt, 70.0kt, 79.1kt, 1416.7kt and 537.9kt, respectively. Stationary combustion source was the largest SO₂ and NO_x contributors. CO emission mainly derived from on-road mobile source, stationary combustion source and biomass combustion source. Fugitive dust and industrial process source were the largest contributors for PM₁₀ and PM_{2.5} emissions, while on-road mobile source and biomass combustion source became the most significant BC and OC contributors. VOCs emission was dominated by solvent-use, on-road mobile source and industrial process source, while livestock feeding and N-fertilizer application source contributed large NH₃ emissions. Dongguan, Foshan and Guangzhou were the largest SO₂, NO_x, CO and VOCs contributor, while Guangzhou, Qingyuan and Meizhou were major particles emission

contributors. Guangzhou, Shenzhen, Dongguan and Foshan were cities with the largest BC emissions. OC emissions mainly concentrated in Zhanjiang and Maoming. Maoming, Zhanjiang and Zhaoqing were the top three NH₃ emission contributors. Spatial distributions illustrated that NH₃ emissions mainly distributed in western and eastern Guangdong Province while emissions of other pollutants were concentrated in city cluster areas of the Pearl River Delta region. The

emission inventory in the study still has uncertainties to some extent, which suggests that more fundamental researches on emission sources are needed to improve the emission inventory in the future.

Keywords: anthropogenic sources, emission inventory, Guangdong Province, spatial allocation

1. 引言 (Introduction)

大气污染源排放清单指的是污染源在一定时间跨度和空间区域内排放到大气中的各种污染物的数量列表(郑君瑜等, 2014)。高分辨率大气排放源清单是空气质量管理的基礎数据, 对开展空气污染形成机理研究、污染控制策略研究和空气质量预警预报等都有着重要作用 (Streets *et al.*, 2003a; Zhang *et al.*, 2009)。近年来, 国内学者已经逐步开展了国家、区域或城市尺度的排放清单研究工作, 涵盖的排放源从能源消耗部门逐渐扩展到机动车尾气 (Zhang *et al.*, 2013; Wang *et al.*, 2010)、扬尘源 (彭康等, 2013; Fan *et al.*, 2009) 和生物质燃烧源 (He *et al.*, 2011; Zhang *et al.*, 2008) 等各类人为排放源及天然源 (Zheng *et al.*, 2010)。

广东省作为我国改革开放最早、经济外向度最高的省份之一, 随着经济快速发展和城市化进程加快, 能源大量消耗, 污染物排放大幅度增加, 大气环境呈现出区域性复合型的污染特征, 高浓度臭氧污染和高浓度细粒子污染现象时有发生 (Chan *et al.*, 2008; Shao *et al.*, 2006)。卫星遥感资料显示该地区气溶胶光学厚度高值区有蔓延趋势 (Xue *et al.*, 2014)。国内学者利用空气质量模型模拟等手段开展了广东省珠三角地区污染来源及污染控制对策等相关研究, 例如, Che 等人 (2011) 利用 Model-3/CMAQ 空气质量模型对珠三角地区机动车尾气排放控制效果进行了评估; Wu 等 (2013) 利用空气质量模型 (CAMx) 结合 PSAT (Particulate Matter Source Apportionment Technology) 源解析技术, 详细分析了珠三角各城市 and 主要人为排放源对区域 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献; Li 等 (2013) 利用 OSAT (Ozone Source Apportionment Technology) 方法对珠三角地区 O_3 地面浓度进行了源解析, 从排放源类型和城市贡献两方面分析了 O_3 污染来源。上述研究的开展均需要大气污染物前体物排放源清单作基础支撑数据, 目前关于该地区的排放源清单工作集中于珠三角地区, 如 Zheng 等人 (2009a) 建立了首份珠三角地区 2006 年高分辨率排放源清单, 为该地区大气污染研究提供了重要的基础数据。而关于广东省范围的排放清单研究, 仅有本课题组针对船舶排放源和人为氨源等重点排放源开展相关研究 (叶斯琪等, 2014; 沈兴玲等, 2014); 虽然可从国内学者建立的国家层面清单中获得广东省涵盖主要人为排放源的污染物排放总量 (Zhao *et al.*, 2013; Cao *et al.*, 2011), 但却存在排放源类别不全、空间分辨率尚无法支撑区域空气质量模型模拟需求、难以识别本地区污染物的排放特征等问题。

本研究以广东省为研究对象, 通过文献及实地调研等方式获取该地区 2010 年各类人为排放源活动水平数据, 选用具有代表性的排放因子, 建立 2010 年广东省人为源排放清单, 并识别各种污染物的空间分布特征, 补充和完善该地区排放源清单研究工作, 以期该地区大气污染预报预警和区域空气质量提供基础数据和科学支撑。

2. 材料与方法 (Materials and Methods)

2.1 研究区域和对象

本研究基准年为 2010 年, 囊括广东省 21 个地级市, 估算的人为源包括固定燃烧源、工业过程源等 9 大类, 如表 1 所示; 涵盖二氧化硫 (SO_2)、氮氧化物 (NO_x)、一氧化碳 (CO)、颗粒物 (PM_{10} 和 $PM_{2.5}$)、黑碳 (BC)、有机碳 (OC)、挥发性有机化合物 (VOCs) 和氨 (NH_3) 等 9 类大气污染物。

表 1 人为排放源分类

Table 1 Categories and subcategories of anthropogenic emission sources

部门	次级部门	部门	次级部门
固定燃烧源	火电厂	道路移动源	柴油小客
	工业燃烧		汽油大货
	民用燃烧		柴油大货
工业过程源	植物油加工		汽油小货
	酒类生产		柴油小货

道路移动源	食品生产	非道路移动源	公交车
	制药		出租车
	纸品制造		摩托车
	塑料制品		飞机
	轮胎制造		船舶
	合成橡胶		农业机械
	化学纤维		农用运输车
	石油精炼		建筑机械
	焦炭		铁路机车
	烧结	有机溶剂使用源	工业溶剂使用
	炼铁		非工业溶剂使用
	炼钢		石油产品精炼厂存储
	水泥	存储与运输源	石油产品运输
	砖瓦		加油站
	石灰		道路扬尘
	玻璃	扬尘源	建筑扬尘
	硫酸		畜禽业
	合成氨		农业施肥
	氮肥	生物质燃烧源	家用秸秆
	汽油大客		家用薪柴
	柴油大客		秸秆露天焚烧
	汽油小客		森林火灾

2.2 排放源定量表征方法及数据来源

本研究综合采用物料衡算法和排放因子法建立人为源排放清单。其中，SO₂采用物料衡算法估算（见公式 1）；其他污染物，采用排放因子法估算（见公式 2）：

$$E = \frac{64}{32} \times S \times W \times C \times (1 - \eta_{SO_2}) \times 10^3 \quad (1)$$

式中， E 为 SO₂排放总量，kg； $\frac{64}{32}$ 为二氧化硫与硫的分子量之比； S 为燃料含硫率； W 为燃料消耗量，t； C 为燃料中硫的转化率，其中，燃煤取 80%，燃油则取 100%； η_{SO_2} 为二氧化硫控制效率。

$$E_i = \sum_{j,k} A_{j,k} \times EF_j \times (1 - \eta) \times 10^{-3} \quad (2)$$

式中， i, j, k 分别为污染物种类、排放源类别和城市类别； E_i 为第 i 种污染物排放总量，kg； $A_{j,k}$ 为 k 城市 j 种排放源的活动水平数据，kg； EF_j 为排放因子，g/kg； η 为控制措施去除效率。

活动水平数据主要来源于统计年鉴或环境统计数据。排放因子选取则是在广泛搜集和整理相关文献基础上，根据排放源特征，优先采用国内实测排放因子，对于国内暂时没有公开或缺失的排放因子则参考国外在同等或类似污染情况下的排放因子。需要特别说明的是，由于目前我国关于 BC、OC 排放因子的实测数据较少，仅有少数学者针对我国生物质燃烧和民用燃煤的 BC、OC 排放特征进行了测试 (Lei *et al.*, 2011; Chen *et al.*, 2009)。故除民用燃煤源和生物质燃烧外其他排放源，本研究基于 BC、OC 在细颗粒物中的质量分数，采用公式 (3) 间接获得其排放因子，同时参考张强 (2005) 假设颗粒物控制技术对 BC、OC 的去除效率和 PM_{2.5} 相同。

$$EF_{j,i} = EF_{j,PM_{2.5}} \times F_{j,i} \quad (3)$$

式中， $EF_{j,i}$ 为 j 种排放源污染物 i 的排放因子，g/kg； i 为 BC/OC， j 为排放源类别； $EF_{j,PM_{2.5}}$ 为 j 种排放源 PM_{2.5} 的排放因子，g/kg； $F_{j,i}$ 为 j 种排放源污染物 i 在 PM_{2.5} 中所占比例。

基于不同排放源特点，以下对各类排放源活动水平数据来源以及排放因子选取分别进行阐述。

2.2.1 固定燃烧源

固定燃烧源结合物料衡算法和排放因子法进行估算，主要活动水平数据包括燃料消耗量、燃料含硫率以及颗粒物去除效率等，其中，电厂和工业燃烧源活动水平信息分别来源于广东省污染物排放申报登

记年度统计数据《2010 年广东省火电企业污染排放及处理利用情况》和《2010 年广东省工业企业污染排放及处理利用情况》，民用燃烧能源消耗量来自《中国能源统计年鉴 2011》（国家统计局，2011）。固定燃烧源排放因子影响因素较多，本研究根据广东省电厂、工业和民用各部门的燃料种类、燃烧设备规模和性能以及控制措施去除效率和应用情况选取适用的排放因子，如表 2-表 4 所示。

表 2 电厂燃烧污染物排放因子

Table 2 Emission factors for power plants

污染物	燃料类型	技术类型	排放因子	参考文献
NO _x	燃煤		6.68g/kg	
		<300MW, 无 LNB	4.3 g/kg	Zhao et al., 2010
		<300MW, 有 LNB	5.58 g/kg	
		>=300MW, 有 LNB		Zhao et al., 2010
CO	重油		10.06 g/kg	田贺忠, 2003
	柴油		7.4 g/kg	田贺忠, 2003
	天然气		1.76 g/m ³	赵斌等, 2008
	燃煤		2.48 g/kg	张强, 2005
	燃油		0.6 g/kg	张强, 2005
	天然气		1.3 g/m ³	王丽涛, 2006
PM ₁₀ /PM _{2.5}	燃煤	煤粉炉, 无控制	1.5A/0.4A	Zhao et al., 2010
		煤粉炉, 静电除尘	0.065A/0.032A	Zhao et al., 2010
		煤粉炉, 湿式除尘	0.291A/0.135A	Zhao et al., 2010
		煤粉炉, 布袋除尘	0.0034A/0.0019A	Zhao et al., 2010
		层燃炉, 无控制	0.26A/0.10A	Zhao et al., 2010
		层燃炉, 静电除尘	0.012A/0.008A	Zhao et al., 2010
		层燃炉, 湿式除尘	0.054A/0.032A	Zhao et al., 2010
			0.85/0.624 g/kg	张强, 2005
NH ₃	重油		0.5/0.5 g/kg	张强, 2005
	柴油		0.24/0.17 g/m ³	赵斌等, 2008
	天然气		0.014 g/kg	Roe et al., 2004
	燃煤		0.132 g/kg	Roe et al., 2004
VOCs	重油/柴油		0.05126 g/m ³	Roe et al., 2004
	天然气		0.15 g/kg	Bo et al., 2008
	燃煤		0.13 g/kg	Bo et al., 2008
	重油		0.12 g/kg	Bo et al., 2008
	柴油		0.18 g/m ³	Bo et al., 2008

表 3 工业燃烧源排放因子

Table 3 Emission factors for industrial combustion

燃料类型	技术类型	排放因子 (g/kg)							
		NO _x	CO	PM ₁₀	PM _{2.5}	F _{BC}	F _{OC}	VOCs	NH ₃
燃煤	煤粉炉/层燃炉	4.29 ^a	23.53 ^b	28.08/5.4 ^b	5.4/1.89 ^b	0.01/0.20 ^b	0/0.04 ^b	0.18 ^c	0.014 ^d
重油		5.84 ^e	0.6 ^f	1.03 ^b	0.67 ^b	0.08 ^b	0.03 ^b	0.15 ^c	0.132 ^d
柴油		9.62 ^e	0.6 ^f	0.5 ^b	0.5 ^b	0.3 ^b	0.09 ^b	0.12 ^g	0.132 ^d
天然气		1.76 ^h	1.3 ^f	0.24 ^h	0.17 ^h	0.095 ^b	0.3 ^b	0.018 ^h	0.05126 ^d
焦炭		4.8 ^h	6.6 ^h	0.288 ^h	0.144 ^h	0.28 ^b	0.05 ^b	0.032 ^h	—

注：a. 数据来源于文献(Zhang *et al.*, 2007) ;b. 数据来源于文献(张强, 2005) ;c. 数据来源于文献(Bo *et al.*, 2008) ;d. 数据来源于文献(Roe *et al.*, 2004) ; e. 数据来源于文献(田贺忠, 2003) ;f. 数据来源于文献(王丽涛, 2006) ;g. 数据来源于文献(Wei *et al.*, 2008) ;h. 数据来源于文献(赵斌等, 2008) ;F_{BC}/F_{OC}为 BC/OC 在 PM_{2.5} 中的质量分数，无量纲；天然气排放因

子单位为 g/m³.

表 4 民用燃烧源排放因子

Table 4 Emission factors for residential combustion

燃料类型	技术类型	排放因子 (g/kg)							
		NO _x	CO	PM ₁₀	PM _{2.5}	F _{BC}	F _{OC}	VOCs	NH ₃
烟煤	蜂窝煤/块煤	1.88 ^a	52.3 ^b	10.83 ^c	8.0 ^c	0.07/2.44 ^d	2.99/4.4 ^d	0.032 ^e	0.82 ^f
无烟煤	蜂窝煤/块煤	1.88 ^a	52.3 ^b	1.5 ^c	1.10 ^c	0.003/0.006 ^d	0.05/0.077 ^d	0.032 ^e	0.82 ^f
汽油		16.7 ^a	0.6 ^g	0.31 ^b	0.31 ^f	—	—	0.093 ^b	0.164 ^h
煤油		2.49 ⁱ	0.6 ^g	0.9 ^j	0.9 ^j	0.13 ^j	0.1 ^j	0.15 ^k	0.152 ^h
柴油		3.21 ^b	0.6 ^g	0.5 ^j	0.5 ^j	0.3 ^j	0.09 ^j	0.093 ^b	0.143 ^h
液化石油气		2.1 ^b	0.36 ^g	0.17 ^b	0.17 ^b	0.095 ^j	0.3 ^j	0.088 ^b	—
天然气		1.76 ^b	0.35 ^b	0.24 ^b	0.1 ^b	—	—	0.088 ^b	0.321 ^h

注:a.数据来源于文献(田贺忠等,2001);b.数据来源于文献(赵斌等,2008);c.数据来源于文献(刘源等,2007);d.数据来源于文献(Chen *et al.*,2009);e.数据来源于文献(赵斌,2007);f.数据来源于文献(Sutton *et al.*,2000);g.数据来源于文献(王丽涛,2006);h.数据来源于文献(Roe *et al.*,2004);i.数据来源于文献(田贺忠,2003);j.数据来源于文献(张强,2005);k.数据来源于文献(Bo *et al.*,2008);F_{BC}/F_{OC}为BC/OC在PM_{2.5}中的质量分数,无量纲;天然气排放因子单位为g/m³.

2.2.2 工业过程源

工业过程源主要考虑植物油加工、酒类生产、食品生产等19种工业行业(见表1),基于产品产量采用公式(2)进行估算。产品产量数据主要来源于广东省排放污染物申报登记年度统计数据和各地市统计年鉴数据。排放因子及其来源如表5所示。

表 5 工业过程源排放因子

Table 5 Emission factors for industrial process

工业过程	SO ₂	NO _x	CO	PM ₁₀	PM _{2.5}	F _{BC} ^h	F _{OC} ^h	VOCs	NH ₃
植物油加工								2.45 ^a	
酒类生产									
啤酒								0.35 ^b	
白酒								65.53 ^b	
食品生产									
面包								4.5 ^c	
糕点/饼干								1.0 ^d	
制糖								10.0 ^d	
制药								260 ^d	
纸品制造								3.5 ^c	
塑料制品								2.2 ^a	
轮胎制造								0.285 ^c	
合成橡胶								7.17 ^a	
化学纤维								73.4 ^a	
石油精炼								1.82 ^a	
炼焦	0.91 ^e		1.8 ^f	2.97 ^g	1.88 ^g	0.48	0.34	2.4 ⁱ	
烧结	2.82 ^j		22 ^e	0.54 ^g	0.39 ^g	0.01	0.05	0.24 ^j	
炼铁			37 ^f	0.075 ^g	0.067 ^g	0.28	0.05	0.12 ⁱ	
炼钢				0.55 ^g	0.4 ^g	0	0.2	0.06 ^d	
水泥				3.5 ^k	2.22 ^k	0.006	0.01	0.177 ^a	
砖瓦				15.7 ^h	6.6 ^h	0.5	0.4	0.033 ^a	
石灰				3.19 ^g	0.67 ^g	0.02	0.01		
玻璃									
平板玻璃				0.576 ^{h,1}	0.546 ^{h,1}	0.0006	0.007	3.15 ^a	

玻璃制品	0.989 ^{b,m}	0.937 ^{b,m}	0.0006	0.007	3.15 ^a
硫酸	6.75 ^o				
合成氨					2.1 ⁿ
氮肥					3.0 ^o

注: a. 数据来源于文献(Bo *et al.*, 2008); b. 数据来源于文献(广东省环境监测中心等, 2005); c. 数据来源于文献(Klimont *et al.*, 2002); d. 数据来源于文献(王丽涛, 2006); e. 数据来源于文献(赵斌等, 2008); f. 数据来源于文献(Zhao *et al.*, 2012); g. 数据来源于文献(张强等, 2006); h. 数据来源于文献(张强, 2005); i. 数据来源于文献(魏巍, 2009); j. 数据来源于文献(雷宇, 2008); k. 数据来源于文献(雷宇等, 2008); l. 数据来源于平板玻璃工业大气污染物排放标准; m. 数据来源于日用玻璃工业大气污染物排放标准; n. 数据来源于文献(U. S. EPA, 1995); o. 数据来源于文献(IIASA, 2010); 轮胎制造的排放因子单位为 g/条; 砖瓦排放因子的单位为 kg/万块; F_{BC}/F_{OC} 为 BC/OC 在 $PM_{2.5}$ 中的质量分数, 无量纲。

2.2.3 道路移动源

根据公式(4)估算各城市机动车排放量, 其中, 各城市机动车保有量数据取自各城市相关统计年鉴, 排放因子采用 IVE 模型(International Vehicle Emission Model)测算, 关于机动车车型分类、燃料比例、年均行驶里程和排放因子参考 Lu 等人(2013)的研究结果。

$$E_i = \sum P_j \times M_j \times EF_{i,j} \times 10^{-3} \quad (4)$$

式中, i 为污染物种类; j 为车型分类; P_j 为 j 车型的机动车数量保有量, 辆; E_i 为机动车 i 污染物年排放总量, t; M_j 为 j 型车的年平均行驶里程, km; $EF_{i,j}$ 为分车型排放因子, g/(km·辆)。

2.2.4 非道路移动源

非道路移动源主要包括飞机、船舶、建筑机械、农用机械、农用运输车以及铁路机车六类。其中, 飞机排放清单基于完整的起飞着陆阶段(Landing and take off, LTO)进行估算, 一个标准的 LTO 周期包含起飞、爬升、进近和滑行 4 种工作模式(ICA0, 1993)。LTO 周期数来自《中国交通年鉴 2011》(国家发展和改革委员会, 2011), 排放因子来源于张礼俊等人(2010)的研究。船舶排放估算参考叶斯琪等(2014)关于船舶分类、引擎功率、工作时间、排放因子等的研究结果, 采用基于船舶引擎功率和燃油消耗量的排放因子法进行估算。建筑机械、农用机械、农用运输车和铁路机车, 结合公式(1)和公式(2)基于燃油消耗量进行估算。其中, 建筑机械、农用机械和农用运输车的柴油消耗量从中国能源统计年鉴获得, 分别根据各市施工建筑面积比例、农用机械和农用运输车柴油发动机总动力比例进行分配; 铁路机车燃油消耗量根据铁路客、货运周转量以及相应燃油经济系数估算, 数据来自《中国交通年鉴 2011》(国家发展和改革委员会, 2011)以及广东省各个城市统计年鉴。

2.2.5 有机溶剂使用源

有机溶剂使用源分为工业溶剂使用和非工业溶剂使用, 前者包括汽车制造、船舶制造、集装箱制造、涂料生产、电子产品制造、家具制造、制鞋、玩具制造、印刷、织物涂层和人造板 11 类, 后者包括家用溶剂使用和建筑涂料使用 2 类。其中, 工业溶剂使用主要采用基于原辅材料消耗量和基于产品产量的估算方法; 建筑涂料使用基于建筑涂料销售量进行估算, 家用溶剂使用则采用基于人口数量的方法。由于有机溶剂使用源本地化排放因子匮乏, 本研究根据广东省各类行业有机溶剂使用情况, 参考国内外研究数据(EEA, 2009; Bo *et al.*, 2008; 台湾环保署, 2007; 王丽涛, 2006; 广东省环境监测中心等, 2005; 余宇帆等, 2011)选取适用的排放因子。活动水平数据主要来自统计年鉴以及统计信息网、各市政府网站公开数据以及相关行业报告等。

2.2.6 存储与运输源

本研究主要考虑液化化石燃料自提取、精炼到销售整个流通过程由于挥发导致的 VOCs 排放, 基于公式(2)采用排放因子法进行估算。其中, 精炼厂存储和运输过程是基于油品存储运输处理量进行估算, 加油站 VOCs 排放量估算, 则以汽油和柴油销售量为活动水平数据。存储与运输源的活动数据来源于《中国能源统计年鉴 2011》(国家统计局, 2011)。存储与运输源的排放因子参考《珠江三角洲地区空气污染物排放清单编制手册》(广东省环境监测中心等, 2005)和沈旻嘉等人(2006)的研究。

2.2.7 扬尘源

本研究对铺装道路扬尘和建筑施工扬尘等两种主要的扬尘源类别进行研究。其中, 铺装道路扬尘排

放量根据公式(5)进行估算, 不同等级道路长度和车流量是主要的活动数据, 结合各城市统计年鉴和实地调研方式获取, 排放因子参考珠三角地区相关研究成果(彭康等, 2013; Ho *et al.*, 2003); 建筑物施工扬尘根据公式(2)基于施工场地面积进行估算, 各市施工建筑面积从广东省统计年鉴获取, 排放因子参考杨杨(2014)的研究成果。

$$E_j = 24 \times 365 \times \sum_i (EF_{i,j} \times L_i \times V_i) \times 10^{-3} \quad (5)$$

式中, i 为道路类型; j 为污染物类型; E_j 为排放量, kg; $EF_{i,j}$ 为各粒径颗粒物的排放因子, g/VKT; L_i 为第 i 种道路的长度, km; V_i 为第 i 种道路的车流量, 辆/h。

2.2.8 农牧源

农牧源是 NH_3 排放的主要来源, 本研究根据公式(2)对畜禽业和农业施肥的 NH_3 排放进行估算。其中, 畜牧业和农业施肥分别以畜禽饲养量、不同类型氮肥施用量为活动水平数据, 数据取自《广东农村统计年鉴 2011》(国家统计局, 2011); 排放因子来源于沈兴玲等人(2014)的研究。

2.2.9 生物质燃烧源

本研究主要考虑秸秆和薪柴家用燃烧、秸秆露天焚烧、森林大火这三种生物质燃烧形式, 排放因子选取参考 He 等(2011)研究结果, 基于生物质燃烧量采用公式(2)进行估算。其中, 秸秆和薪柴家用燃烧量来自《中国能源统计年鉴 2011》(国家统计局, 2011), 分别根据农作物播种面积比例和农村人口分配至城市; 秸秆露天焚烧和森林火灾的生物质燃烧量则参考相关文献(He *et al.*, 2011; Streets *et al.*, 2003b), 分别根据农作物产量、谷草比、干燥比、焚烧比以及焚烧效率计和森林燃烧面积、生物荷载量以及燃烧效率等参数进行计算。

2.3 空间分配

本研究基于污染源排放特征、空间分布特点及实际可获取的污染源空间地理信息, 借助于 GIS 空间分析工具, 采用合适的空间特征表征参数进行分配。对具有详细经纬度信息的点源(电厂、工业企业、港口、加油站), 直接根据坐标信息将排放量分配到相应网格内; 道路移动源采用 Zheng 等(2009b)提出的基于 GIS 的“标准道路长度法”, 综合考虑实际道路网络系统以及不同等级道路车流量差异, 实现机动车污染物空间分配; 农业机械、农用运输车以及生物质燃烧等排放源, 采用不同土地类型作为代用空间权重因子进行分配; 船舶内河水域排放, 采用叶斯琪等人(2014)建立的基于河网布局和航道通航能力等级的空间权重因子进行分配; 工业溶剂使用源的空间分配, 借鉴卢清(2013)的工业园区定位分析方法, 基于 Google Earth 的方法进行定位分配。

3. 结果与讨论 (Results and Discussion)

3.1 广东省 2010 年人为源排放清单

基于上述估算方法和数据, 得到广东省人为源排放清单。结果显示, 该地区 2010 年人为源 SO_2 、 NO_x 、 CO 、 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 BC 、 OC 、 VOCs 和 NH_3 排放总量分别为 867.8kt、1607.0kt、7476.0kt、1399.8kt、639.5kt、70.0kt、79.1kt、1416.7kt 和 537.9kt。

表 6 2010 年广东省人为源排放清单/千吨

Table 6 Emission inventory of Guangdong Province for the year of 2010/kt

排放源	SO_2	NO_x	CO	PM_{10}	$\text{PM}_{2.5}$	BC	OC	VOCs	NH_3
固定燃烧源	680.0	902.5	2697.3	223.8	105.0	7.3	4.6	25.0	5.0
工业过程源	21.0	—	460.4	374.9	234.1	7.0	6.9	275.6	0.5
道路移动源	5.9	379.8	2725.7	61.3	58.3	30.7	12.2	459.5	12.1
非道路移动源	150.7	295.4	77.4	12.7	11.7	6.7	2.1	18.8	—
有机溶剂使用源	—	—	—	—	—	—	—	563.7	—
存储与运输源	—	—	—	—	—	—	—	46.1	—
扬尘源	—	—	—	547.7	140.7	1.0	11.5	—	—
农牧源	—	—	—	—	—	—	—	—	493.2
生物质燃烧源	10.1	29.2	1515.2	179.5	89.7	17.3	41.7	116.0	27.2
总计	867.8	1607.0	7476.0	1399.8	639.5	70.0	79.1	1416.7	537.9

3.2 排放源贡献率分析

图 1 和图 2 展示了主要排放源的排放分担率。固定燃烧源是 SO_2 和 NO_x 的最大排放贡献源，主要来自电厂、工业部门煤炭和重油燃烧排放，电厂天然气燃烧对 NO_x 排放以及工业部门焦炭燃烧对 SO_2 也有重要贡献。道路移动源是第二大 NO_x 排放贡献源，主要来自重型柴油车和汽油客车排放。此外，非道路移动源为第二大 SO_2 和第三大 NO_x 排放贡献源，来源于客货运输船舶和渔业船舶排放。 CO 排放主要来源于燃料的不完全燃烧，前三大贡献源依次为道路移动源、固定燃烧源和生物质燃烧源。

对于颗粒物排放，扬尘源为最大的 PM_{10} 排放贡献源，占排放总量的 39.1%，主要来源于交通运输业发展以及城市化进程加快带来的道路交通、建筑和市政施工扬尘排放。工业过程为第二大 PM_{10} 排放贡献源，分担率达到 26.8%，水泥和砖瓦是主要的排放行业，主要来源于窑炉煤炭燃烧以及产品生产过程中从原料准备、生料调配到煅烧等各种工艺的无组织逸散。 $\text{PM}_{2.5}$ 的排放分担率与 PM_{10} 相近，由于扬尘源排放的颗粒物以粗粒径为主，其 $\text{PM}_{2.5}$ 排放分担率下降为 22.0%，工业过程源成为主要的贡献源。值得注意的是，生物质燃烧源作为 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的第三大贡献源，对颗粒物排放总量的贡献不容忽视，主要来自薪柴和秸秆家用燃烧排放。但对于 BC 而言，道路移动源成为最大的排放贡献源，主要来自柴油大货车的尾气排放，原因是在柴油发动机燃烧室内油气难以混合均匀，高温缺氧条件下容易炭化形成炭烟，造成更多的炭黑颗粒物排放。而对于 OC ，生物质燃烧源为最大的贡献源，排放分担率高达 52.8%，这是因为在农村地区，薪柴和秸秆广泛用作家用燃料，并且在农作物收割及播种期间，农作物秸秆通常直接露天焚烧，由于燃烧设备简陋、焚烧效率低，造成颗粒物排放量大，有机碳组分含量高。

VOCs 排放主要来自有机溶剂使用源和道路移动源，其中，家具制造业和电子产品制造业作为广东省地区多个城市（如东莞和深圳）的支柱产业，其产量与产值均居工业行业前列，生产过程中原辅材料（如涂料、油墨等）的高挥发性有机物极易挥发逸散，从而使这些行业成为最主要的 VOCs 排放贡献行业。织物涂层的 VOCs 排放分担率也较大，主要原因是印染工艺过程中，布匹表面残留的各种染料和染色助剂极易挥发。道路移动源的 VOCs 排放主要来自摩托车和汽油小客车，这分别与摩托车发动机工作状态不佳、排放控制技术落后及维护保养程度较差等因素和汽油小客车保有量大、燃料利用率低且极易挥发的特点密切相关。 NH_3 排放主要来源于农牧源的畜禽养殖和氮肥施用，排放分担率分别为 47.9% 和 43.8%。

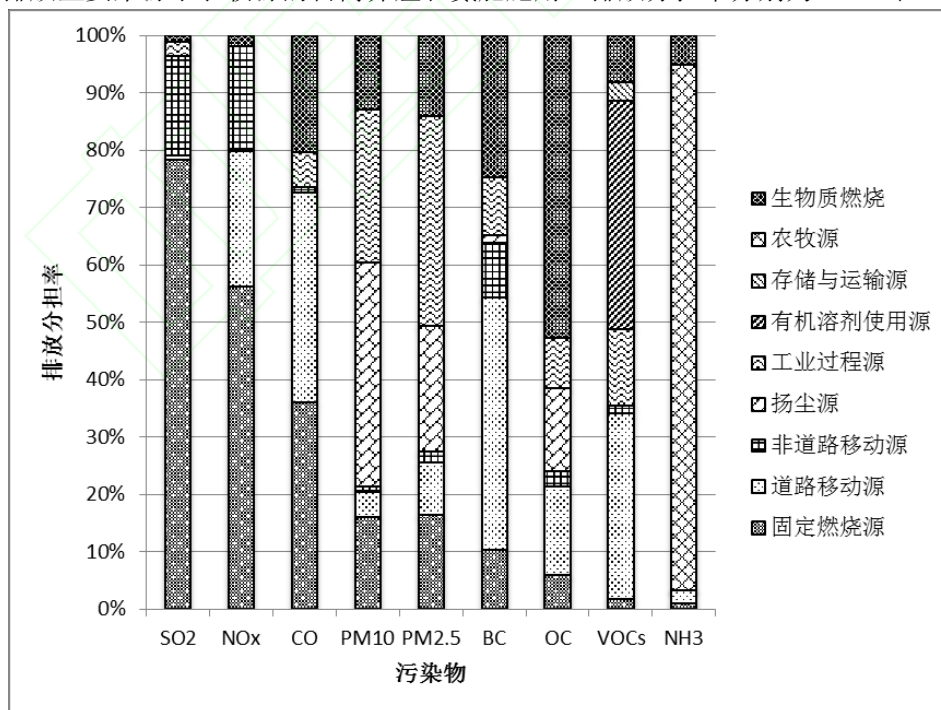


图 1 2010 年广东省人为源排放贡献率

Fig.1 Sources contribution by categories in Guangdong Province for the year of 2010

3.3 城市排放分布特征

图 3 展示了广东省主要大气污染物的城市排放贡献率。其中，东莞、佛山、广州依次是 SO_2 排放量

最高的三个城市,同时,这三个城市的 NO_x 排放量也相对较大,约占全省的30.9%。原因是这三个城市为珠三角经济圈的重要组成城市,火电厂和工业企业密集分布,燃料的大量使用导致了较高 SO_2 和 NO_x 排放。另外,深圳成为广东省第二大 NO_x 排放城市,这与深圳柴油车保有量名列广东省首位、且柴油车 NO_x 排放因子较高有很大关系。对于CO而言,广州和佛山依次是排放量最高的两个城市,主要来源于固定燃烧源和道路移动源。韶关为第三大CO排放贡献城市,则主要来源于钢铁行业,由于烧结、炼铁等工艺的煤气副产物未能完全回收而排放出大量的CO。

对于颗粒物,广州、清远和梅州是最主要的排放贡献城市,这三个城市 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的排放分担率之和分别是26.5%和28.4%。对广东省不同城市而言, PM_{10} 主要排放源较一致,多来自于扬尘源和工业过程源,不同城市 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要贡献源则相对较为复杂:佛山、中山等地城镇化进程加快、交通路网密集、城市建设施工活动频繁,道路扬尘和建筑活动扬尘成为首要的 $\text{PM}_{2.5}$ 排放源;清远、梅州、肇庆、惠州、江门、韶关作为重要的水泥生产城市, $\text{PM}_{2.5}$ 主要来源于水泥制造行业窑炉熟料烧制过程和工艺生产过程的无组织排放;而深圳由于其机动车保有量大,出行比例高,道路移动源成为最大的 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献源。对于BC而言,广州、深圳、东莞、佛山、湛江和茂名依次为BC排放量最高的六个城市,贡献率之和达到51.9%。究其原因,广州、深圳、佛山和东莞等珠三角城市的BC排放主要来自道路移动源,珠三角城市机动车保有量大,全省接近80%的机动车集中于珠三角地区;对于湛江和茂名,由于农村人口比例较大,家用薪柴和秸秆消耗量大,排放了较多的含碳组分,使得生物质燃烧源成为最重要的BC贡献源;此外,这两个城市也是最大的OC排放城市。对于大部分城市来说,OC排放主要来自于生物质燃烧。值得一提的是,深圳由于城市化水平较高,农村人口比例极低,生物质燃烧量很少,道路移动源成为最大的OC贡献源。VOCs排放主要集中在珠三角广州、东莞、佛山、深圳等城市,主要来源于有机溶剂使用和机动车尾气排放。茂名、湛江和肇庆为 NH_3 排放量较大的城市,约占总排放量的32.9%,由于这三个城市畜禽养殖业发达,农作物播种面积较大,氮肥施用量较高,使得 NH_3 排放高于其他城市。

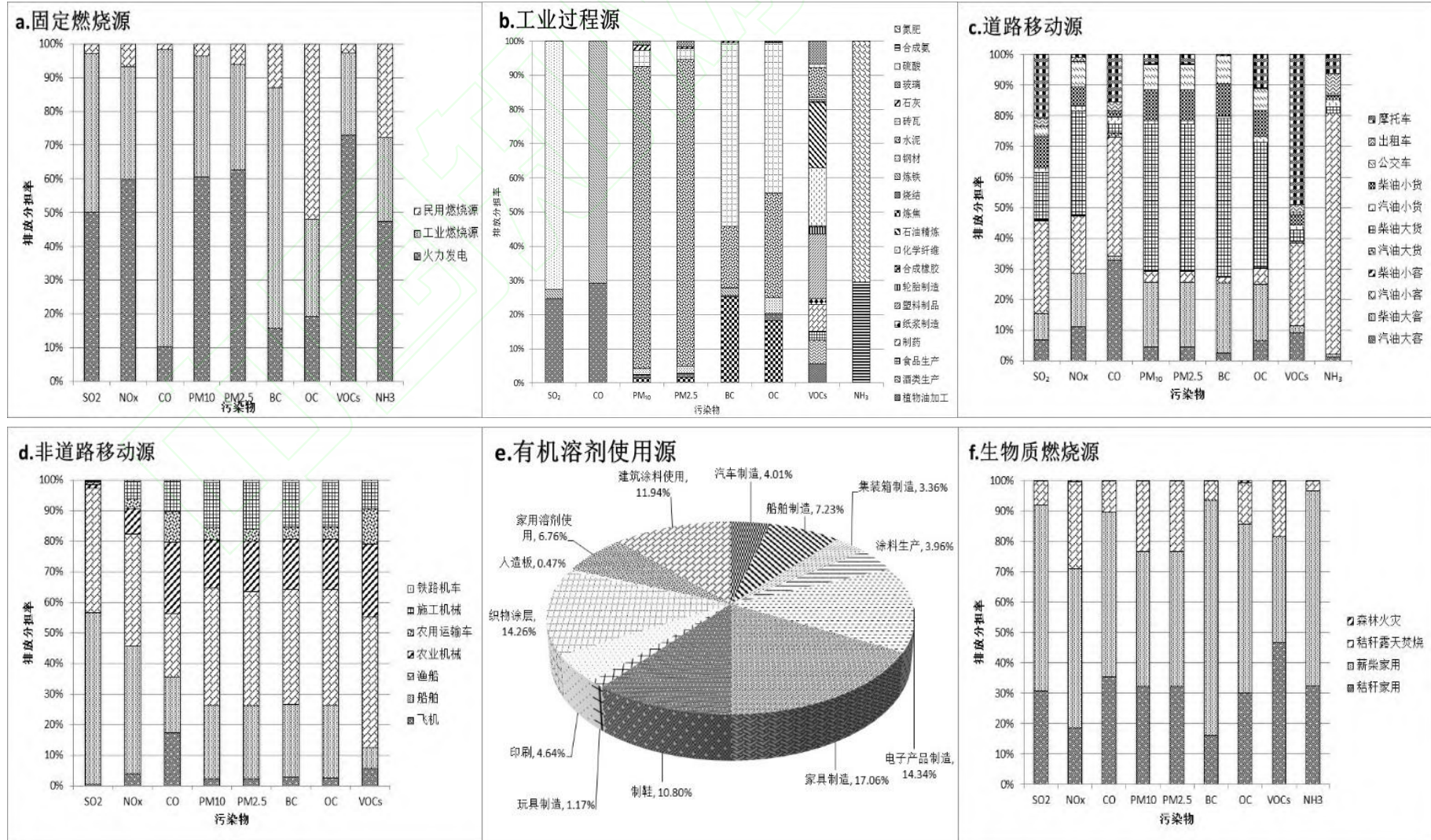


图 2 主要排放源的污染物排放分担率

Fig.2 Contributions of major sources by categories

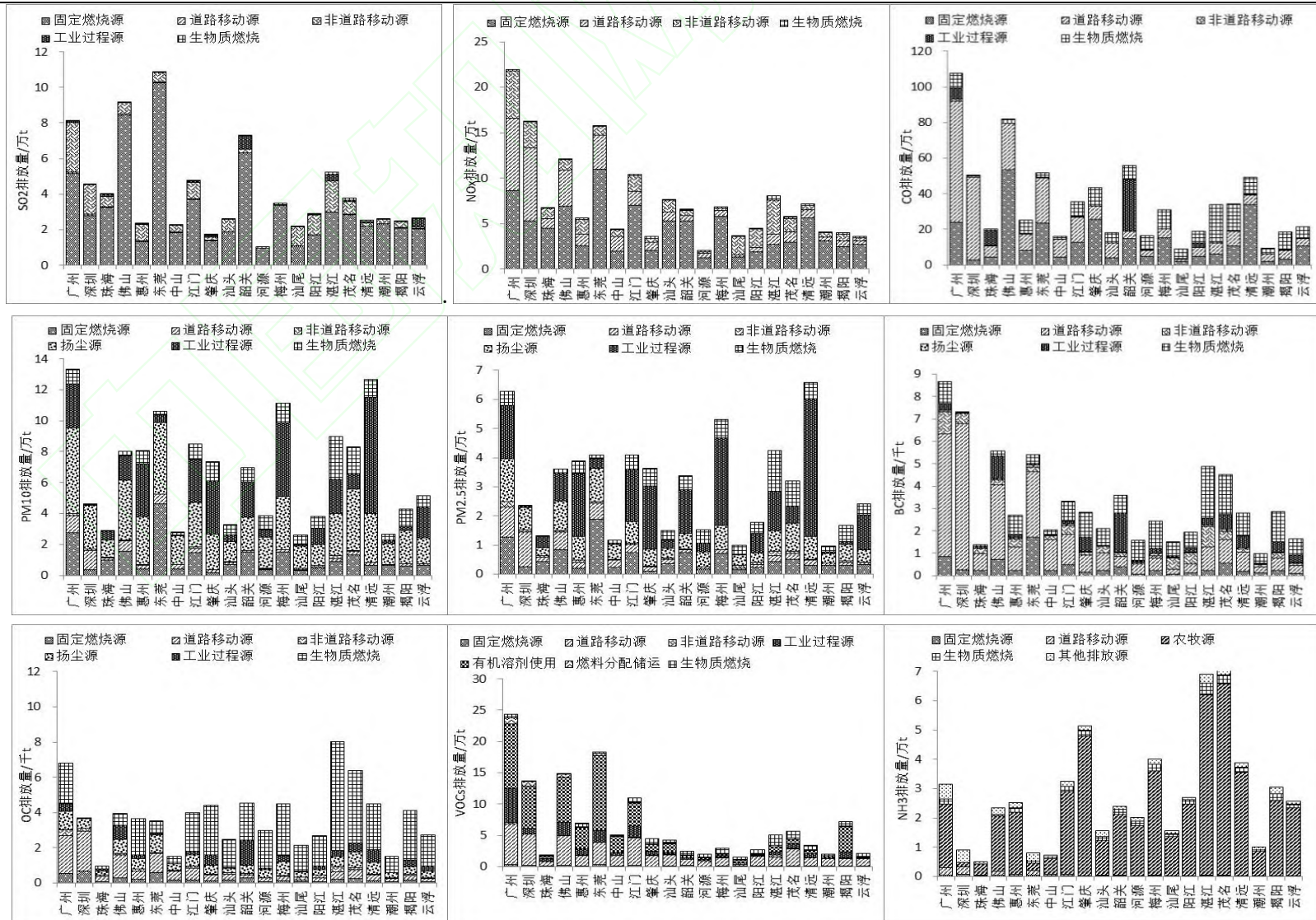


图3 广东省各城市主要人为源污染物排放

Fig.3 City-specific pollutant emissions from anthropogenic sources in Guangdong Province

3.4 清单结果比较

对比分析不同学者建立的广东省 2010 年排放清单, 结果如表 7 所示。从排放量来看, 不同研究结果存在一定不确定性, 一方面是因为所获取的活动数据详细程度不同和估算方式不一样, 导致排放结果存在差异。本研究电厂和工业燃烧源的估算, 收集到较详尽的活动水平数据, 采用“自下而上”的估算方式, 与国家清单相比, 更贴近实际情况。另一方面, 排放因子的选取对估算结果有较大影响, 全国尺度清单开发中, 多采用技术水平平均分布下的排放因子, 而本研究排放因子多采用国内学者的最新研究成果, 虽然部分工业过程源和部分污染物(如 BC、OC 的质量分数等)仍采用国外文献的参考值, 但针对一些重要排放源(如固定燃烧源、道路移动源以及生物质燃烧源等)均采用了国内学者的最新测试值。此外, 不同学者估算的排放源类别分类不同, 也会造成排放结果的差异较大。从排放源贡献率来看, 本研究结果与 MEIC 排放清单结果(He, 2012)具有一定的可比性, 工业部门为 SO₂、CO、PM₁₀、PM_{2.5} 和 VOCs 最主要的贡献源, 民用部门为最重要的 OC 排放源, 农业部门为最大的 NH₃ 排放源。但 NO_x 和 BC 的主要贡献源则有所差异, MEIC 排放清单中火电厂和工业部门是 NO_x 的主要贡献源, 民用部门和工业部门是 BC 的重要排放源, 而本研究中 NO_x 和 BC 的前两大贡献源分别为道路移动源和火电厂、交通部门和民用部门。正如上述所言, 排放因子和活动水平数据差异等因素造成两份清单排放源分担情况不同。总体而言, 本研究的估算结果能较好地反映广东省人为源大气污染物的排放水平。

表 7 广东省人为源大气污染物排放清单结果对比/千吨

Table 7 Comparison of Guangdong anthropogenic emission inventory with other studies/kt

文献来源	排放源	SO ₂	NO _x	CO	PM ₁₀	PM _{2.5}	BC	OC	VOCs	NH ₃
MEIC 清单	火电厂	332.4	578.7	111.2	73.8	48.8	0.1	0.0 ^a	15.0	—
	工业部门	744.4	488.3	2390.7	381.3	220.7	18.5	14.5	1163.5	0.1
	民用部门	25.8	34.4	1972.0	154.0	146.4	24.5	100.5	197.1	29.0
	交通部门	15.6	433.8	1861.3	25.4	25.2	12.6	5.6	212.8	2.6
	农业部门									340.1
	小计	1118.1	1535.2	6335.1	634.5	441.0	55.7	120.6	1588.5	371.8
本研究	火电厂	339.8	539.4	273.6	135.3	65.9	1.1	0.9	18.3	2.4
	工业部门 ^b	342.0	302.8	2843.2	455.2	266.7	12.2	8.2	757.3	1.7
	民用部门 ^c	28.6	81.1	1399.3	145.6	75.1	17.1	38.2	95.1	27.6
	交通部门 ^d	156.6	675.2	2803.1	74.0	70.0	37.4	14.3	478.4	12.1
	农业部门									493.2
	小计	867.0	1598.5	7319.2	810.1	477.8	67.8	61.6	1349.0	537.0
Zhao et al., 2013	主要人为源	1112.0	1824.0	8834.0	733.0	482.0	56.0	81.0	—	—

注: a. 原始数据为 10.5 吨; b. 排放源类别包括工业燃烧源和工业过程源; c. 排放源类别包括民用燃烧源、家用秸秆和家用薪柴; d. 排放源类别包括道路移动源和非道路移动源

3.5 污染物空间分布特征

由图 4 可知, SO₂ 排放量较大的区域主要集中在珠三角东南部, 与这些地区火电厂和工业企业较密集、煤炭等化石能源消耗量巨大有关。NO_x 排放高值区出现在人口密集、机动车出行率高、路网密集以及交通流量大的广州、深圳和东莞等地。CO 排放空间分布受道路移动源以及工业燃烧源的影响, 集中分布在珠三角腹地, 呈现出沿道路网所在网格区域延伸分布的特征; 另外, 粤东地区汕头等城市中也存在 CO 排放量较大的网格, 主要受到工业企业等较大点源和生物质燃烧源影响。PM₁₀ 和 PM_{2.5} 呈现出相似的空间分布特征, 受道路和施工扬尘以及非金属产品制造企业排放影响, 排放量较大地区集中分布在珠三角经济圈内的广州、深圳、东莞和佛山等城市, 梅州、汕头等城市由于存在水泥企业, 排放量大的网格数也相对较多。受机动车排放影响, BC 空间分布呈现明显的路网条带状特征, 人口密集、车流量高的珠三角地区和粤东潮汕等地以及粤西茂名、湛江等地局部呈现高排放强度特征。OC 空间分布则相对分散, 在广州和深圳等发达城市, 由于受到机动车和工业排放影响, 分布着部分 OC 排放高值区; 同时, 在广东省东西翼和山区地带如湛江、梅州等地也较为显著。VOCs 排放量大的网格出现在珠三角的广州、东莞、深圳、佛

山、江门等城市和粤东地区的潮州和汕头，主要来源于有机溶剂使用和机动车尾气排放。 NH_3 排放主要来源于畜牧业和氮肥施用，故网格排放量高值区出现在经济欠发达、土地利用水平较低、农业面积较广的粤西地区和粤东地区，如肇庆、茂名、湛江等城市。此外，受到机动车、电厂和工业燃烧等排放源影响，珠三角地区的广州、深圳和佛山等城市也分散着一些 NH_3 排放量大的空间网格。



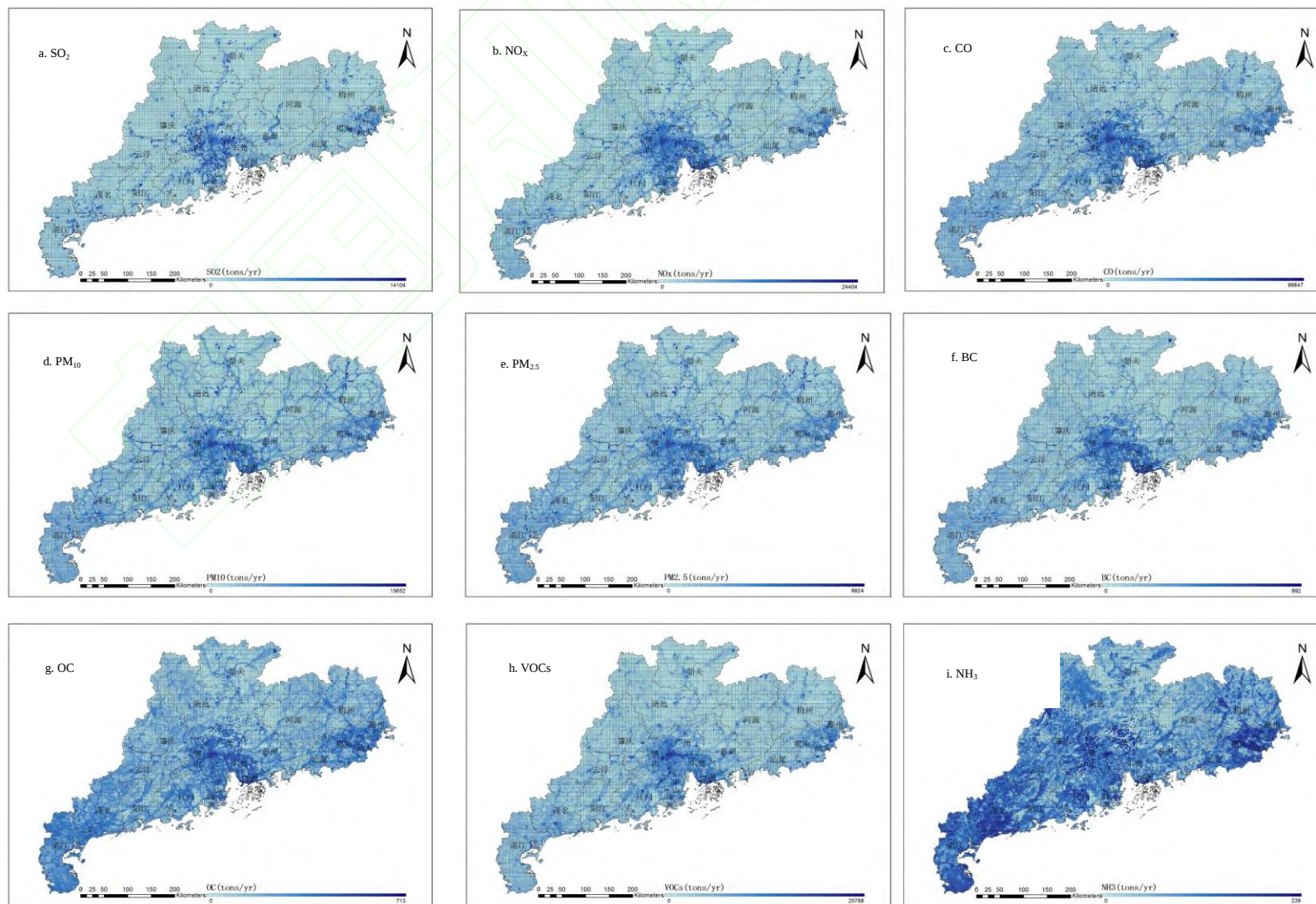


图 4 2010 年广东省人为源大气污染物排放空间分布

Fig.4 Spatial allocation of air pollutant emissions in Guangdong Province in 2010

3.6 不确定性分析

排放源清单编制过程中, 由于排放因子和活动数据等关键数据缺失以及数据代表性不足或估算方法局限性等原因, 不可避免地存在不确定性(郑君瑜等, 2014)。本清单估算过程涉及参数众多, 不确定性主要来源于两方面: 1. 活动水平数据选取。活动水平数据主要来自广东省统计年鉴、各城市统计年鉴和统计公报等政府公布信息, 数据来源相对可靠。其中, 对于电厂和工业燃烧源而言, 活动数据来自环境统计数据和统计年鉴, 不确定性较低; 民用燃烧源、存储与运输源、生物质燃烧源和非道路移动源的农用机械、农用运输车以及施工机械的活动水平数据是根据广东省总量采用一定的社会经济学指标分配至每个城市, 存在一定的不确定性; 工业过程源和有机溶剂使用源的活动数据(如产品产量)主要取自各城市统计年鉴, 统计年鉴数据一般只对规模以上企业进行统计, 没有反映小企业的生产规模信息, 给清单结果的准确性带来一定程度的影响; 2. 排放因子及相关参数选取。由于本地化排放因子匮乏, 本研究清单估算时部分采用国内外学者现有研究成果, 成为重要的不确定性来源。其中, 电厂和工业燃烧源主要采用国内学者测试的排放因子, 不确定性相对较小, 然而估算所需的含硫率、灰分、除尘效率等参数主要根据行业污染控制技术的平均水平来确定, 与单一企业的实际情况存在一定差距; 民用燃烧排放由于受燃烧设备、燃烧条件等多方面因素影响, 不同学者测得的排放因子值相差较大, 导致了清单不确定性; 工业过程源和有机溶剂使用源作为重要的颗粒物和 VOCs 排放源, 涉及的工艺过程复杂繁多, 由于原辅材料和工艺技术的差异, 选择非本地的排放因子会给清单估算带来较高不确定性。

4. 结论与建议 (Conclusions and Suggestions)

(1) 2010 年广东省人为源的 SO_2 、 NO_x 、CO、 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、BC、OC、VOCs 和 NH_3 排放量分别是 867.8kt、1607.0kt、7476.0kt、1399.8kt、639.5kt、70.0kt、79.1kt、1416.7kt 和 537.9kt。

(2) 从排放分担率来看, 固定燃烧源是 SO_2 和 NO_x 的最大排放贡献源, CO 排放的主要贡献源为道路移动源、固定燃烧源和生物质燃烧源, 扬尘源和工业过程源是主要的颗粒物 (PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$) 排放源, 道路移动源和生物质燃烧源分别是最大的 BC 和 OC 贡献源, 有机溶剂使用源、道路移动源和工业过程源是 VOCs 排放的前三大贡献源, NH_3 排放主要来源于畜禽养殖和氮肥施用。

(3) 燃煤为电厂、工业燃烧及民用燃烧排放的主要贡献燃料类型, 水泥、砖瓦是工业过程颗粒物 (PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$) 排放的主要贡献行业; 柴油大货车是道路移动源中重要的颗粒物排放车型, 摩托车和汽油小客车则是首要的 VOCs 排放贡献车型; 家具制造业、电子产品制造业和织物涂层是工业有机溶剂使用 VOCs 排放的主要贡献源。

(4) 东莞、佛山和广州是主要的 SO_2 、 NO_x 、CO 和 VOCs 排放城市, 广州、清远和梅州是最主要的颗粒物 (PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$) 排放贡献城市, BC 排放集中于广州、深圳、东莞和佛山等珠三角城市, OC 的重要排放城市为湛江和茂名, NH_3 排放主要分布在茂名、湛江和肇庆。

(5) 广东省地区人为源排放的 SO_2 、 NO_x 、CO、 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、BC、OC 和 VOCs 主要分布在珠三角东南部地区, NH_3 排放量高值区则分布在粤西地区的肇庆、茂名和湛江以及粤东地区的梅州。

(6) 本研究建立的排放源清单仍然具有一定的不确定性, 后续研究工作中应加强大气污染源排放的基础研究, 针对典型污染源开展污染物排放因子实测工作, 加强排放源清单不确定性的定量分析, 以进一步完善该地区的大气污染物排放清单。

责任作者简介: 郑君瑜 (1968-), 男, 教授 (博士), E-mail: zheng.junyu@gmail.com.

参考文献 (References)

- Bo Y, Cai H, Xie S D. 2008. Spatial and temporal variation of historical anthropogenic NMVOCs emission inventories in China[J]. *Atmospheric Chemistry And Physics*, 8(23): 7297-7316
- Cao G L, Zhang X Y, Gong S L, et al. 2011. Emission inventories of primary particles and pollutant gases for China[J]. *Chinese Science Bulletin*, 56(8): 781-788
- Chan C K, Yao X. 2008. Air pollution in mega cities in China[J]. *Atmospheric Environment*, 42(1): 1-42
- Che W W, Zheng J Y, Wang S S, et al. 2011. Assessment of motor vehicle emission control policies using Model-3/CMAQ model for the Pearl River Delta region, China. *Atmospheric Environment*, 45(9): 1740-1751.

- Chen Y, Zhi G, Feng Y, et al. 2009. Measurements of black and organic carbon emission factors for household coal combustion in China: implication for emission reduction[J]. *Environ Sci Technol*, 43(24): 9495-9500
- European Environment Agency (EEA). 2009. EMEP/EEA air pollution emission inventory guidebook[OL]. 2009- 06- 19. <http://www.eea.europa.eu/publications/emep-eea-emission-inventory-guidebook-2009>
- Fan S B, Tian G, Li G, et al. 2009. Road fugitive dust emission characteristics in Beijing during Olympics Game 2008 in Beijing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 43(38): 6003-6010
- 广东省环境监测中心, 香港特别行政区政府环境保护署. 2005. 珠江三角洲地区空气污染物排放清单编制手册[M]. 广州: 广东省环境保护局
- 国家发展和改革委员会, 中国交通运输协会. 2011. 中国交通年鉴 2011[M]. 北京: 中国交通年鉴社
- 国家统计局. 2011. 广东农村统计年鉴 2011[M]. 北京: 中国统计出版社
- 国家统计局. 2011. 中国能源统计年鉴 2011[M]. 北京: 中国统计出版社
- He K B. 2012. Multi-resolution Emission Inventory for China (MEIC): model framework and 1990 - 2010 anthropogenic emissions. International Global Atmospheric Chemistry Conference, 17 - 21 September, Beijing, China.
- 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
- Ho K F, Lee S C, Chow J C, et al. 2003. Characterization of PM₁₀ and PM_{2.5} source profiles for fugitive dust in Hong Kong[J]. *Atmospheric Environment*, 37(8): 1023-1032
- IIASA. 2010. Emission Stage-specific NH₃ Emission Factors for Livestock Categories[R]. GAINS calculation. Laxenburg Austria: International Institute for Applied Systems Analysis (IIASA)
- International Civil Aviation Organization (ICAO). 1993. International standards and Recommended Practices, Environmental Protection, Annex 16, to the Convention on International Civil Aviation, Volume II, Aircraft Engine Emissions, Second Edition[R]
- Klimont Z, Streets D G, Gupta S, et al. 2002. Anthropogenic emissions of non-methane volatile organic compounds in China[J]. *Atmospheric Environment*, 36(8): 1309-1322
- Lei Y, Zhang Q, He K B, et al. 2011. Primary anthropogenic aerosol emission trends for China, 1990 - 2005[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(3): 931-954
- 雷宇. 2008. 中国人为源颗粒物及关键化学组分的排放与控制研究[D]. 清华大学
- 雷宇, 贺克斌, 张强, 等. 2008. 基于技术的水泥工业大气颗粒物排放清单[J]. *环境科学*, 29(08): 2366-2371
- 刘源, 张元勋, 魏永杰, 等. 2007. 民用燃煤含碳颗粒物的排放因子测量[J]. *环境科学学报*, 27(09): 1409-1416
- Li Y, Lau A K H, Fung J C H, et al. 2013. Systematic evaluation of ozone control policies using an Ozone Source Apportionment method[J]. *Atmospheric Environment*, 76(SI): 136-146
- Lu Q, Zheng J Y, Ye S Q, et al. 2013. Emission trends and source characteristics of SO₂, NO_x, PM₁₀ and VOCs in the Pearl River Delta region from 2000 to 2009[J]. *Atmospheric Environment*, 76(SI): 11-20
- 卢清. 2013. 珠江三角洲地区人为源 VOCs 排放特征及时空分配改进研究[D]. 华南理工大学
- 彭康, 杨杨, 郑君瑜, 等. 2013. 珠江三角洲地区铺装道路扬尘排放因子与排放清单研究[J]. *环境科学学报*, 33(10): 2657-2663
- Roe S M, Spivey M D, Lindquist H C, et al. 2004. Estimating ammonia emission from anthropogenic nonagricultural source Draft final report[R]. U.S.: Emission Inventory Improvement Program (EIIP)
- Seiler W, Cutzen P J. 1980. Estimates of gross and net fluxes of carbon between the biosphere and the atmosphere from fluxes of carbon between the biosphere and the atmosphere from biomass burning[J]. *Climatic change*, 2: 207-247
- Shao M, Tang X Y, Zhang Y H, et al. 2006. City clusters in China: air and surface water pollution[J]. *Frontiers in Ecology and the Environment*, 4(7): 353-361
- 沈旻嘉, 郝吉明, 王丽涛. 2006. 中国加油站 VOC 排放污染现状及控制[J]. *环境科学*, 27(8): 1473-1478
- 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

- Streets D G, Bond T C, Al Carmichael G R, et al. 2003a. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000[J]. *Journal of Geophysics Research*, 108(D21), DOI:10.1029/2002JD003093
- Streets D G, Yarber K F, Woo J-H, et al. 2003b. Biomass burning in Asia : annual and seasonal estimates and atmospheric emissions[J]. *Global Biogeochemical. Cycles*, 17, DOI:10.1029/2003GB002040, 4.
- Sutton M A, Dragosits U, Tang Y S, et al. 2000. Ammonia Emissions from Non-Agricultural Sources in the UK[J]. *Atmospheric Environment*, 34: 855-869
- 台湾环境保护署. 2007. 空气污染物排放量推估手册 [OL].
http://mommath.cy1000.com.tw/air-ei/new_main2-0.htm, 2010-02-06, B2-157-163, 2012/04/20
- 田贺忠, 郝吉明, 陆永琪. 2001. 中国商品能源消耗导致的氮氧化物排放量[J]. *环境科学*, 22(6): 24-28
- 田贺忠. 2003. 中国氮氧化物排放现状、趋势及综合控制对策研究[D]. 清华大学.
- U. S. Environmental Protection Agency (U.S.EPA). 1995. *Compilation of Air Pollutant Emission Factors (AP-42). Volume I. Fifth Edition with Updates.* [R]. U.S.: Environment Protection Agency (EPA)
- Wang H K, Fu L X, Zhou Y, et al. 2010. Trends in vehicular emissions in China's mega cities from 1995 to 2005[J]. *Environmental Pollution*, 158(2): 394-400
- 王丽涛. 2006. 北京地区空气质量模拟和控制情景研究[D]. 清华大学
- Wei W, Wang S, Chatani S, et al. 2008. Emission and speciation of non-methane volatile organic compounds from anthropogenic sources in China[J]. *Atmospheric Environment*, 42(20): 4976-4988
- 魏巍. 2009. 中国人为源挥发性有机化合物的排放现状及未来趋势[D]. 清华大学
- Wu D W, Fung J C H, Yao T, et al. 2013. A study of control policy in the Pearl River Delta region by using the particulate matter source apportionment method[J]. *Atmospheric Environment*, 76(SI): 147-161
- Xue Y, He X W, Xu H, et al. 2014. China Collection 2.0: The aerosol optical depth dataset from the synergetic retrieval of aerosol properties algorithm. *Atmospheric Environment*, 95: 45-58
- 杨杨. 2014. 珠三角地区建筑施工扬尘排放特征与防治措施研究[D]. 华南理工大学
- 叶斯琪, 郑君瑜, 潘月云, 等. 2014. 广东省船舶排放源清单及时空分布特征研究[J]. *环境科学学报*, 34(3): 537-547
- 余宇帆, 卢清, 郑君瑜, 等. 2011. 珠江三角洲地区重点 VOC 排放行业的排放清单[J]. *中国环境科学*, 31(2): 195-201
- Zhang H F, Ye X N, Cheng T T, et al. 2008. A laboratory study of agricultural crop residue combustion in China: Emission factors and emission inventory[J]. *Atmospheric Environment*, 42(36): 8432-8441
- Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R. 2009. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(14): 5131-5153
- Zhang Q, Streets D G, He K B. 2007. NO_x emission trends for China, 1995 - 2004 The view from the ground and the view from space[J]. *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, 112
- Zhang S J, Wu Y, Liu H, et al. 2013. Historical evaluation of vehicle emission control in Guangzhou based on a multi-year emission inventory[J]. *Atmospheric Environment*, 76(SI): 32-42
- 张礼俊, 郑君瑜, 尹沙沙, 等. 2010. 珠江三角洲非道路移动源排放清单开发[J]. *环境科学*, 31(4): 886-891
- 张强, Zbigniew klimont, Davidg Streets, 等. 2006. 中国人为源颗粒物排放模型及 2001 年排放清单估算[J]. *自然科学进展*, 16(2): 223-231
- 张强. 2005. 中国区域细颗粒物排放及模拟研究[D]. 清华大学
- Zhao Y, Nielsen C P, Mcelroy M B, et al. 2012. CO emissions in China: Uncertainties and implications of improved energy efficiency and emission control[J]. *Atmospheric Environment*, 49(49): 103-113
- Zhao Y, Wang S, Nielsen C P, et al. 2010. Establishment of a database of emission factors for atmospheric pollutants from Chinese coal-fired power plants[J]. *Atmospheric Environment*, 44(12): 1515-1523
- Zhao Y, Zhang J, Nielsen C P. 2013. The effects of recent control policies on trends in emissions of anthropogenic atmospheric pollutants and CO₂ in China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(2): 487-508
- 赵斌, 马建中. 2008. 天津市大气污染源排放清单的建立[J]. *环境科学学报*, 28(2): 368-375
- 赵斌. 2007. 华北地区大气污染源排放状况研究[D]. 中国气象科学研究院.

- Zheng J Y, Zhang L J, Che W W. 2009a. A highly resolved temporal and spatial air pollutant emission inventory for the Pearl River Delta region, China and its uncertainty assessment [J]. *Atmospheric Environment*, 43(32): 5112-5122
- Zheng J Y, Che W W, Wang X M. 2009b. Road-Network-Based Spatial Allocation of On-Road Mobile Source Emissions in the Pearl River Delta Region, China and Comparisons with Population-Based Approach[J]. *Air & Waste Management Association*. 59:1405-1416
- Zheng J Y, Zheng Z Y, Yu Y F, et al. 2010. Temporal, spatial characteristics and uncertainty of biogenic VOC emissions in the Pearl River Delta region, China[J]. *Atmospheric Environment*, 44(16): 1960-1969
- 郑君瑜, 王水胜, 黄志炯, 等. 2014. 区域高分辨率大气排放源清单建立的技术方法与应用[M]. 北京: 科学出版社
- 中华人民共和国环境保护部. 2011a. 平板玻璃工业大气污染物排放标准 [OL].
http://kjs.mep.gov.cn/hjbhbz/bzwb/dqhjbh/dqgdwrywrwpfbz/201104/t20110420_209477.htm
- 中华人民共和国环境保护部. 2011b. 日用玻璃工业大气污染物排放标准 (意见征求意见稿) [OL].
<http://www.zhb.gov.cn/gkml/hbb/bgth/201104/W020110422474220469532.pdf>