

1996~2016 年湖北省氨排放时空差异及影响因素

覃思¹,孔少飞^{1*},吴剑¹,刘玺¹,程溢¹,吴方琪¹,牛真真¹,刘晋宏¹,冯韵恺¹,燕莹莹¹,祁士华^{1,2} (1.中国地质大学(武汉)环境学院,湖北 武汉 430074; 2.生物地质与环境地质国家重点实验室,湖北 武汉 430074)

摘要:搜集 10 类氨(NH_3)的人为源活动水平数据,采用排放因子法,计算了 1996~2016 年湖北省 NH_3 排放量,利用 GIS 进行 $1\text{km} \times 1\text{km}$ 的空间分配。分析了不同地理单元(西部山区城市、中部平原城市、东部特大城市和东部中小城市)的 NH_3 排放源结构和单位排放量的差异。结果表明,湖北省 NH_3 排放量由 1996 年的 375.0kt 增长至 2016 年的 475.4kt,年均增长率为 1.2%。西部山区城市 NH_3 排放增加最快,年均增长率为 3.5%,高于全省平均水平。农业源是最主要贡献源,畜禽养殖和氮肥施用排放的 NH_3 分别占总排放量的 71.6% 和 15.8%。除畜禽养殖和氮肥施用外,废弃物处理和生物质燃烧分别是东部特大城市和中部平原城市 NH_3 的重要排放源,分别占全省该类源 NH_3 排放总量的 76.1% 和 41.5%。值得注意的是,东部特大城市的工业生产、人体排泄、机动车尾气排放和化石燃料燃烧等排放的 NH_3 占比均高于其它 3 种地理单元,需引起关注。

关键词: 湖北省; 氨排放; 时空差异; 年际变化; 地理单元

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2020)04-1403-11

Spatial-temporal diversities of ammonia emissions and impacting factors in Hubei Province from 1996 to 2016. QIN Si¹, KONG Shao-fei^{1*}, WU Jian¹, LIU Xi¹, CHENG Yi¹, WU Fang-q¹, NIU Zhen-zhen¹, LIU Jin-hong¹, FENG Yun-kai¹, YAN Ying-ying¹, QI Shi-hua^{1,2} (1.School of environmental studies, China University Of Geosciences, Wuhan 430074, China; 2.State Key Laboratory of Biogeology and Environmental Geology, Wuhan 430074, China), *China Environmental Science*, 2020,40(4): 1403~1413

Abstract: The activity data for ten types of anthropogenic ammonia emission sources were collected in Hubei Province. The ammonia emission amounts of Hubei province during 1996~2016 were calculated by multiplying corresponding emission factors and activity data, and then were spatially relocated into $1\text{km} \times 1\text{km}$ grid cell with a GIS software. The diversities in ammonia emission structures and per unit emission for four types of geographic regions (the western mountainous cities, the central plain cities, the eastern megacity and other eastern small and medium-sized cities) were analyzed. The total ammonia emission in Hubei province increased from 375.0kt in 1996 to 475.4kt in 2016, with a yearly increasing rate of 1.2%. The ammonia increasing rate for the western mountainous cities was the highest of 3.5%, higher than the average increasing rate of the whole province. Agriculture sources were the major contributors for ammonia emission in Hubei Province, with the livestock and application of nitrogen fertilizers contributing 71.6% and 15.8% of total ammonia emission, respectively. Except for livestock and application of nitrogen fertilizers, the eastern megacity and the central plain cities held higher emission contributions of waste disposal (76.1%) and biomass burning (41.5%) among the four different geographic units, respectively. It was worth noting that the ammonia emissions from industrial production, human excrement, vehicle exhaust and fossil fuel combustion in the eastern megacity were all higher than those for other three geographic units, which should be paid more attention.

Key words: Hubei Province; ammonia emission; spatial-temporal diversity; yearly variation; geographic unit

氨(NH_3)是大气中唯一碱性气体^[1],是大气气溶胶的重要前体物^[2],与 SO_2 和 NO_x 等气态污染物结合转化形成二次颗粒物,对污染天气的形成具有重要影响^[3-4],也对人体健康产生危害^[5]。大量 NH_3 排放会造成土壤酸化^[6-8]、水体富营养化^[9-10]和温室效应^[11]等生态环境问题。 NH_3 也可以通过中和大气中酸性物质,抑制酸雨的形成^[12]。掌握 NH_3 排放强度与时空分布,是理解和识别 NH_3 的环境和生态效应的基础^[13]。

国外开展 NH_3 排放特征研究较早,并形成了排放清单。为满足我国重点城市及重点区域大气污染

防控需要^[14],国内对 NH_3 排放清单构建及其时空变化研究逐渐增多。前人研究指出我国中东部与成渝地区 NH_3 排放强度较大、农业源排放占比较高且呈现夏季高,冬季低的季节变化特征^[1,15,17]。针对重点

收稿日期: 2019-09-16

基金项目: 科技部国家重点研发计划课题(2017YFC0212602; 2016YFA0602002); 湖北省科技厅技术创新专项重大项目(2017ACA089); 国家自然科学基金资助重点项目(41830965); 湖北省环保厅环保科研项目(2017HB11); 中国地质大学(武汉)高层次人才科研启动经费资助项目(G1323519230; CUG190609; 201616; 201802); 中央高校基本科研业务费专项资金资助项目-腾飞计划(162301182756)

* 责任作者, 教授, kongshaofei@cug.edu.cn

区域,也有学者构建了氨排放清单^[18-23].前人多关注整个研究区域 NH₃ 的主要排放源贡献和年际变化趋势,鲜有分析不同区域内不同地理单元的 NH₃ 排放源贡献占比和变化趋势的差异.

由于牲畜养殖和肥料施用的大量排放,农村地区大气中 NH₃ 浓度较高^[24-25].有研究表明城市地区大气环境中 NH₃ 浓度与附近农村地区相当,甚至更高,表明非农业排放可能对城市 NH₃ 来源有较大贡献^[26].在北京市霾和清洁天气条件下,化石燃料燃烧对 NH₃ 的贡献率分别为 81.0% 和 34.0%^[27].因而,针对某一特定区域,识别其不同地理单元的 NH₃ 源贡献及变化趋势,对于区域 NH₃ 的精准防控具有重要意义.

近年来华中地区大气环境形势严峻^[28].华中地区霾日增长率最高的 5 个站点中湖北省占 3/5^[29].前人对该区域 NH₃ 排放的长时间序列研究缺乏,也限制了 NH₃ 排放对该区域空气质量演变的认识.基于此,本研究通过收集 1996~2016 湖北省各地级市源活动水平数据,基于排放因子法,构建 1996~2016 湖北省人为源 NH₃ 排放清单,并进行网格化分配.对 4 种典型的地理单元(西部山区城市、中部平原城市、东部特大城市和东部中小城市)不同源 NH₃ 排放强度的时空变化特征进行分析,识别其差异和可能的影响因素.本研究可为理解不同地理单元 NH₃ 排放的时空差异和影响因素提供借鉴,也可为区域大气污染防控提供基础数据支撑.

1 研究方法

1.1 研究区概况

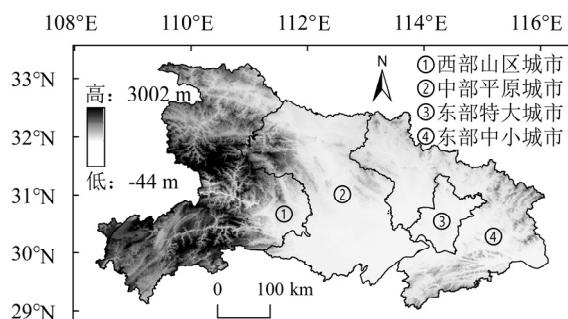


图 1 湖北省研究区域划分与高程图

Fig.1 Four geographic units and elevation of Hubei province

湖北省地势呈三面高起、中间低平、向南敞开、

北有缺口的不完整盆地.如图 1,研究区域分为 4 个单元:①西部山区城市(宜昌、十堰、神农架和恩施)、②中部平原城市(襄阳、荆州、荆门、潜江、仙桃和天门)、③东部特大城市(武汉)和④东部中小城市(随州、孝感、黄石、黄冈、咸宁和鄂州).

1.2 清单构建

本研究人为 NH₃ 源分为 10 类,包括农业源(氮肥施用、畜禽养殖、土壤本底和固氮植物)和非农业源(人体排放、机动车、化石燃料燃烧、生物质燃烧、废弃物处理和工业生产).排放量采用自上而下的方法计算.基于 ArcGIS 的空间分析技术,利用农村人口、道路、GDP、土地利用遥感监测与 MODIS 卫星监测空间分布数据对排放量进行 1km×1km 分配.人口、道路、GDP 和土地利用数据来源于中国科学院资源环境科学数据中心(<http://www.resdc.cn/>),卫星火点数据来源于美国国家航空航天局(<https://earthdata.nasa.gov/>).

土地利用类型参考土地利用遥感解译的土壤分类体系.氮肥施用与土壤本底根据耕地面积作为分配权重;畜禽养殖按照农村居民点与耕地面积作为分配权重;固氮植物依据土壤利用类型中旱地为分配权重;人体排泄与生物质室内燃烧根据农村居民点作为分配权重;机动车排放依照路网作为分配权重;化石燃料燃烧、废弃物排放和工业生产按照 GDP 作为分配权重;生物质露天燃烧依据 MODIS 卫星观测火点进行空间分配(MODIS 卫星 1999 年发射,1996~1998 年生物质露天燃烧 NH₃ 排放量由土地利用类型中农田进行空间分配).

1.2.1 氮肥施用 土壤中 10%~30% 的 N 会以 NH₃ 的形式挥发损失^[30].酸碱度、土温湿度和施肥方式等会影响 NH₃ 挥发速率.湖北省年均气温为 15~17℃(数据来源于国家气象科学数据中心(<http://data.cma.cn/>)).土壤呈酸性(数据来源于北京大学城市与环境学院地理数据平台(<http://geodata.pku.edu.cn/>)),施肥方式为表面撒施.依照《大气氨源排放清单编制技术指南》^[31]获得其排放因子;.采用董艳强等^[19]氮肥施用量比例,如表 1.基于农用氮肥施用量(折纯量)^[32],按照式(1)进行估算.

$$E_{ij} = \sum_{ij} (A \times EF) \quad (1)$$

式中: E_{ij} 为 NH₃ 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,kg NH₃/kg 氮肥.

表1 氮肥施肥率及其氨释放比例^[19]

Table 1 Application percentage and proportion of ammonia volatilized from nitrogenous fertilizer

氮肥	施肥率(%) ^[19]	释放比例(%) ^[31]
尿素	64	2.51
碳铵	24	2.61
硝酸铵	4 ^a	0.4
硫酸铵	4 ^a	0.82
其他氮肥	4 ^a	0.23

注:a由于缺少数据,这3类氮肥施用比例设定为4%。

1.2.2 畜禽养殖 NH₃ 主要由动物排泄物释放。粪便包括室内和户外两部分。畜禽粪便管理包括户外、圈舍内、粪便存储处理和后续施肥 4 个阶段。后 3 种属于室内粪便管理,具有尿液和粪便 2 种形态。动物户外排泄的尿液和粪便通常混合在一起。畜禽排泄物释放的 NH₃,包含户外、圈舍-液态、圈舍-固态、存储-液态、存储-固态、施肥-液态、施肥-固态 7 种类型。可细化为肉牛、奶牛、山羊、绵羊、母猪、生猪、马、驴、骡、蛋鸡、蛋鸭、蛋鹅、肉鸡、肉鸭、肉鹅等多类子源。活动水平数据来源于《湖北省统计年鉴》^[32]。对于饲养

周期大于 1a 的畜禽,如牛、母猪、蛋鸡等按照年底存栏量进行计算;对于饲养周期小于 1a 的畜禽,按照年内出栏量进行计算。畜禽养殖 NH₃ 排放总量计算公式如下:

$$E_{ij} = \sum_{ij} (A \times EF \times \gamma) \quad (2)$$

式中:E_{ij} 为 NH₃ 排放量;i 为地区;j 为畜禽的 7 种粪便类型;A 为不同管理阶段、不同形态排泄物中含有的总铵态氮量;γ 为氮-大气氨转换系数,取 1.214^[33]。

畜禽排泄物在不同管理阶段、粪便不同形态中含有的总铵态氮量计算如下。

(1) 不同养殖方式室内、户外的总铵态氮:

$$TAN_{\text{室内、室外}} = Q_i \times S \times J \times Y \times H \quad (3)$$

式中:Q_i 为畜禽年内饲养量,头(只);i 为畜禽种类;S 为单位禽排泄量,kg;J 为含氮量,%;Y 为铵态氮比例,%;H 为室内户外比,%.单位畜禽排泄量、含氮量、铵态氮比例见表 2。统计年鉴未细分散养放牧与集约化养殖,本文均按集约化养殖计算。集约化养殖条件下畜禽排泄物在室内户外分别占 100% 和 0^[33]。湖北省年均气温在 15~17℃ 之间,排放系数选取 10~20℃ 推荐值(表 3)。

表2 畜禽粪便排泄物铵态氮量的估算参数^[31]

Table 2 Parameters used in estimating annual TAN excretion per animal for each livestock class

畜禽种类	饲养周期(天)	排泄量[kg/(d·头)]		[kg/(d·头)]含氮量(%)		铵态氮比例(%)	R 饲料(%)
		尿液	粪便	尿液	粪便		
肉牛<1a	365	5.0	7.0	0.90	0.38	60	20
肉牛>1a	365	10.0	20.0	0.90	0.38	60	20
奶牛<1a	365	5.0	7.0	0.90	0.38	60	20
奶牛>1a	365	19.0	40.0	0.90	0.38	60	20
山羊<1a	365	0.66	1.5	1.35	0.75	60	20
山羊>1a	365	0.75	2.6	1.35	0.75	50	0
绵羊<1a	365	0.66	1.5	1.35	0.75	60	20
绵羊>1a	365	0.75	2.6	1.35	0.75	50	0
母猪	365	5.70	2.1	0.40	0.34	70	30
肉猪<75d	75	1.20	0.5	0.40	0.34	70	30
肉猪>75d	75	3.20	1.5	0.40	0.34	70	30
马	365	6.50	15.0	1.40	0.20	60	0
驴	365	6.50	15.0	1.40	0.20	60	0
骡	365	6.50	15.0	1.40	0.20	60	0
骆驼	365	6.50	15.0	1.40	0.20	60	0
蛋鸡	365	-	0.12	-	1.63	70	50
蛋鸭	365	-	0.13	-	1.10	70	0
蛋鹅	365	-	0.13	-	0.55	70	0
肉鸡	50	-	0.09	-	1.63	70	50
肉鸭	55	-	0.1	-	1.10	70	0
肉鹅	70	-	0.1	-	0.55	70	0

客车、大型载客车、轻型载货车、重型载货车与摩托车,获得其保有量^[32]和年均行驶里程,按照《道路机动车大气污染物排放清单编制技术指南》^[37]中的公式估算:

$$E_i = \sum_i P_i \times EF_i \times VKT_i \times 10^{-6} \quad (12)$$

式中: E_i 为不同类型机动车尾气NH₃排放量,t; P 为机动车保有量,辆; EF 为基于行驶里程的排放系数,g/(km·辆); VKT 为年均行驶里程(见表4),km/辆.

表4 各车型的年均行驶里程($\times 10^3$ km)^[38]

Table 4 Mileage for different types of vehicles ($\times 10^3$ km)

机动车	年均行驶里程
小型客车	25.9
小型货车	32.3
大型客车	40.0
大型货车	44.0
摩托车	9.9

1.2.7 化石燃料燃烧化 石燃料燃烧过程中排放NH₃,主要来源分为煤炭、燃料油和天然气等.根据《中国能源统计年鉴》^[39]获得化石燃料各类消耗量,按照公式(1)进行估算.

1.2.8 生物质燃烧 家用秸秆燃烧、秸秆露天燃烧和森林(草原)火灾等都会向大气排放NH₃.基于农作物产量^[32],采用公式(13)进行室内(露天)秸秆燃烧NH₃排放估算;基于MODIS卫星产品中过火面积,采用He等^[40]的公式(14)对森林(草原)火灾进行估算,如下:

$$E_{ij} = \sum_{ij} (P \times N \times S \times R \times \eta \times EF) \quad (13)$$

式中: E_{ij} 为NH₃排放量;t; i 为地区; j 为不同农作物类型; P 为主要农作物产量,t; N 为农作物谷草比,%; S 为

秸秆干燥比,%; R 为燃烧比例,%; η 为燃烧率,%; EF 为排放因子,kg NH₃/kg 农作物.

$$M = A \times D \times F \quad (14)$$

式中: M 为火灾燃烧生物量,t; A 为过火面积,hm²; D 为生物荷载量,t/hm²,取221.94t/hm²^[41]; F 为燃烧效率,取33.0%^[42].

各类秸秆燃烧排放参数见表5.

表5 秸秆燃烧排放估算参数

Table 5 Dataset for emission estimation from straw burning

作物 类型	秸秆室 内焚烧		秸秆户 外焚烧		燃烧效 率 ^[23]	室内排 放因子 (g/kg) ^[43]	室外排 放因子 (g/kg) ^[43]
	谷草比 ^[23]	干燥比 ^[43]	内焚烧 比 ^[43]	外焚烧 比 ^[23]			
稻谷	0.9	0.89	0.283	0.319	0.93	0.53	0.53
小麦	1.1	0.89	0.283	0.319	0.92	0.37	0.37
玉米	1.2	0.87	0.283	0.319	0.92	0.68	0.68
大豆	1.6	0.91	0.283	0.319	0.68	1.3	0.605
薯类	0.5	0.45	0.283	0.319	0.68	1.3	0.605
棉花	9.2	0.83	0.283	0.319	0.804	1.3	0.605
花生	0.8	0.94	0.283	0.319	0.82	1.3	0.605
油菜	1.5	0.83	0.283	0.319	0.804	0.52	0.52

1.2.9 废弃物处理 废弃物处理过程包括污水处理(活性污泥微生物吸收、消化污水中营养成分过程和淤泥铺摊^[18])与固废处理(固废填埋、固废焚烧和固废堆肥)向大气排放NH₃.通过《中国城市建设统计年鉴》^[44]获取废弃物处理量.本研究仅考虑由填埋和焚烧产生的NH₃排放量;参照公式(1)进行废弃物焚烧过程估算.

1.2.10 工业生产 合成氨与氮肥生产工业制造过程向大气排放NH₃,基于氮肥生产量^[32]按照公式(1)进行估算.

表6 汇总了所选取的各类源NH₃排放因子.

表6 各类源氨排放因子

Table 6 Emission factors of ammonia from various sources

分类	排放因子	分类	排放因子	
固氮植物[kg/(hm ² ·a)]	大豆	1.05 ^[31]	煤炭(kg/t)	0.014 ^[21]
	花生	1.2 ^[31]	化石燃料固定燃烧源 燃料油(kg/10 ³ L)	0.096 ^[21]
	绿肥	1.35 ^[31]	天然气(kg/10 ⁶ m ³)	51.259 ^[21]
机动车尾气排放(g/km)	小型载客车	0.026 ^[33]	固废焚烧(g/kg)	0.21 ^[31]
	大型载客车	0.017 ^[33]	废弃物处理 固废填埋(g/kg)	0.56 ^[31]
	轻型载货车	0.026 ^[33]	污水处理(g/m ³)	0.003 ^[31]
	重型载货车	0.017 ^[33]	生物质燃烧(g/kg)	森林火灾 2.9 ^[17]
工业生产(g/kg)	摩托车	0.007 ^[33]	草原火灾 0.7 ^[18]	
	合成氨	0.01 ^[31]	人体排泄[kg/(人·a)]	0.787 ^[18]
	氮肥生产	3 ^[32]	土壤本底[kg/(亩·a)]	0.12 ^[31]

1.3 不确定性分析

采用蒙特卡洛模拟法,使用 Oracle Crystal Ball 工具进行 10000 次模拟,输入排放源活动水平和排放因子等参数,然后将参数的不确定性传递到清单计算结果,得到各个排放源的 NH₃ 排放量不确定性范围。

2 结果与讨论

2.1 1996~2016 年湖北省 NH₃ 排放量年际变化

如图 2,湖北省大气 NH₃ 排放总量从 1996 年的 375.0kt 增长到 2016 年的 475.4kt,整体呈现增加的趋势,年均增长率为 1.2%。

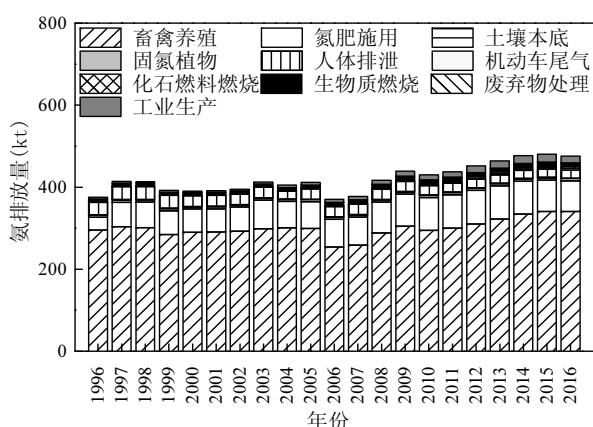


图 2 1996~2016 年湖北省不同源氨排放总量变化
Fig.2 Annual ammonia emissions for different sources in Hubei from 1996 to 2016

2005 年孝感市孝南区存在 H5N1 亚型高致病性禽流感疫情,针对疫区采取了封锁、扑杀、消毒和对受威胁区畜禽进行紧急免疫等措施,畜禽养殖业 NH₃ 排放由 2005 年 299.2kt 下降到 2006 年的 254.3kt,下降率为 15.0%。随着疫情消除,畜禽数量逐步增加,到 2008 年畜禽养殖业 NH₃ 排放总量增加到 305.2kt,与 2005 年持平。

氮肥施用年际变化从 1996~1997 年快速上升,增长率为 94.7%,增长至 1998 年的 62.0kt 开始呈现下降趋势,下降至 2000 年的 56.6kt。这可能与 1998 年夏季长江流域遭遇特大暴雨与洪水有关。2000 年后,氮肥施用排放的 NH₃ 持续增长,2012 年排放量到达峰值 81.9kt。随着国家出台重点区域大气污染防控政策,排放量持续下降至 2016 年的 75.1kt。

在这 21a 中,工业生产、机动车尾气排放和化石

燃料燃烧产生的 NH₃ 排放量相比非农业源排放增长迅速,分别由 4.0、0.3 和 1.0kt 增长至 16.1、4.2 和 3.9kt。人体排泄产生的 NH₃ 排放量由 1996 年的 30.4kt 减少至 2016 年 19.4kt,下降率为 36.2%。这与城镇化发展过程中,农村人口逐步减少,冲水厕所普及且利用率提高有关。其它类源如生物质燃烧、土壤本底和固氮植物等 NH₃ 排放量基本保持不变。

湖北省 NH₃ 排放主要贡献源为畜禽养殖和氮肥施用,需开展有效的减排措施。如可分别采取优化饲料配方、使用酶制剂抑制脲酶与尿酸酶的活性^[45];以及更改施肥方式(覆盖施用、注射施用和快速下渗技术等)、使用新型肥料(硝基肥、缓控肥及添加脲酶抑制剂的肥料)^[46]等。

2.2 湖北省 NH₃ 排放空间分布变化

图 3 给出了 2000、2005、2010 和 2015 年湖北省 NH₃ 排放总量的空间分布,结合《湖北省统计年鉴》^[32]进行分析。2000 年,东部特大城市(武汉)、东部中小城市(孝感和黄冈)、中部平原城市(襄阳和荆州)和西部山区城市(十堰和宜昌)的城市中心区域 NH₃ 排放密集,排放量为 5.0~5.5t/a。这与当年湖北省产业结构和城市发展有关。第二产业 GDP 占比为 49.7%。高值区域集中在城市及其周边平原区域,以种植业和畜禽养殖业排放贡献为主。2005 年,东部特大城市及周边畜禽养殖业、工业产业等发展较快。粮食种植面积为 392.7 万 hm²,比上年增加 21.4 万 hm²,增长率为 5.5%;肉类总产量 342.6 万 t,比上年增长 5.2%。氮肥产量为 213.5 万 t,比 2000 年增加 94.9 万 t。上述因素使得武汉及其周边 NH₃ 排放量由 3.5~4.0t/a 上升至 6.0~10.0t/a。2010 年,交通运输业产值比上年增长 10.6%,机动车由 2005 年的 368.7 万辆增加至 2010 年的 700 万辆。上述因素导致湖北省中部(荆门周边)NH₃ 排放量由 3.0~3.5t/a 上升至 4.0~4.5t/a。2010~2015 年,种植业、畜禽养殖业和工业生产总体保持增长。粮食种植面积从 406.8 万 hm² 增长至 446.6 万 hm²,生猪出栏从 3827.4 万头增长到 4363.2 万头,化肥产量从 899.1 万 t 增加到 1408.1 万 t。周边中小城市 NH₃ 排放量由 3.5~4.0t/a 上升至 6.0~15.0t/a,襄阳地区 NH₃ 排放量由 6.4kt 增加到 7.0kt。2000~2015 年间,湖北省 NH₃ 排放量高值表现出以各个地市城区为中心向四周扩展的态势,尤其是在中部平原城市和东部中小城市更为突出,成为

NH_3 排放控制的重点区域.西部山区城市(十堰),由于畜禽养殖 NH_3 排放量快速增长(由 2000 年的 12.0kt 增长至 2015 年的 24.4kt),人口居住相对集中,排放高值区域扩大到一定范围后停止,污染物排放量从 2.5~3.0t/a 增加至 10.0~15.0t/a.西部山区城市

(宜昌)氮肥施用和畜禽养殖从 2000~2010 年快速增长(分别从 4.8kt 增加至 8.2kt、从 12.0kt 增加至 20.5kt),而后畜禽养殖排放量保持在一定范围(20.0kt 左右),氮肥施用开始逐年持续减少(从 8.2~5.9kt).

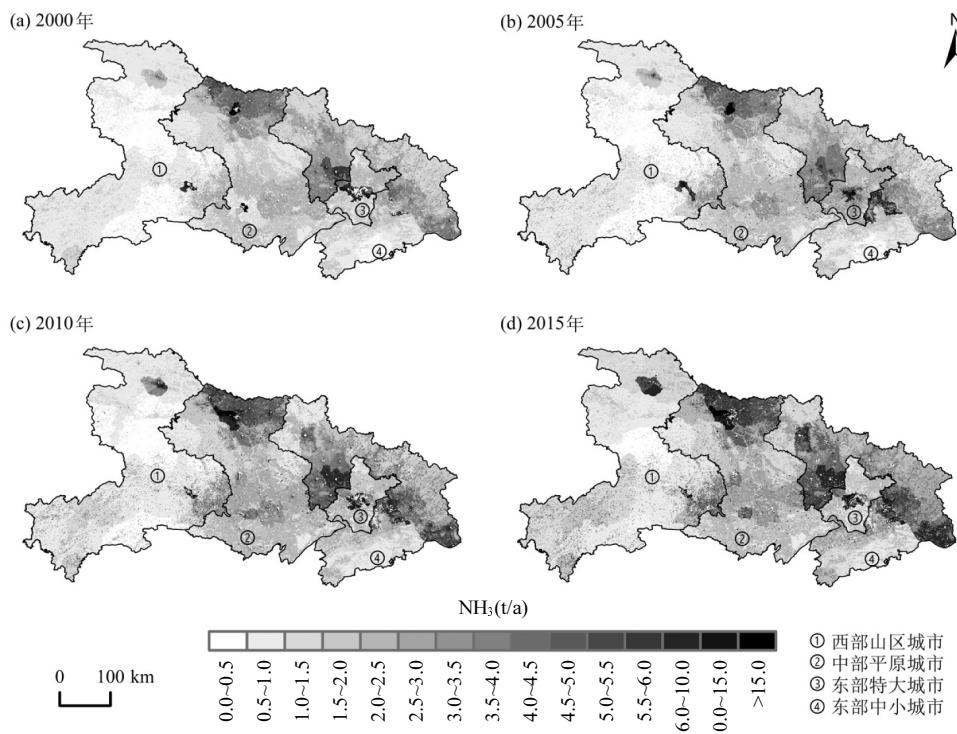


图 3 2000~2015 年湖北省氨排放总量空间分布

Fig.3 Spatial distribution of annual total ammonia emissions of 2000 to 2015 in Hubei

2.3 2016 年不同地理单元 NH_3 排放源贡献对比

2016 年西部山区城市、中部平原城市、东部特大城市和东部中小城市 NH_3 排放总量分别为 91.3, 133.9, 23.5 和 143.5kt.4 个区域各类 NH_3 排放源贡献率如图 4 所示.

农业源是 NH_3 排放的主要来源,其中畜禽养殖 NH_3 排放量最大,分别占各自区域 NH_3 排放总量的 71.4%、61.9%、35.1% 和 71.8%.除畜禽养殖外,中部平原城市的氮肥施用占比最高,为 24.0%,最低为东部中小城市(16.2%).这与中部江汉平原作为我国重要的粮棉基地,大量施用氮肥有关.东部特大城市工业生产 NH_3 排放占比仅次于畜禽养殖排放(24.1%),并且在非农业源中,人体排泄、废弃物处理和化石燃料燃烧 NH_3 排放占比最高,分别为 11.1%、4.5% 和 2.5%,远高于其他区域.在特大城市,除农业源外,此 4 类源的 NH_3 排放也需

引起重视.

图 5 对比了不同地理单元单位面积、单位人口和单位 GDP 的 NH_3 排放量和各排放源贡献占比.如图 5(a),东部特大城市单位面积 NH_3 排放强度最高($2.8\text{t}/\text{km}^2$),且单位面积人体排泄、化石燃料燃烧、机动车、废弃物处理和工业生产占比也最高.中部平原城市农业源(氮肥施用、土壤本底、固氮植物和生物质燃烧)单位面积 NH_3 排放强度最高.如图 5(b),西部山区城市单位人口 NH_3 排放量最高($83.3\text{t}/\text{万人}$),最低为东部特大城市($21.9\text{t}/\text{万人}$).东部特大城市单位人口化石燃料燃烧、废弃物处理和工业生产 NH_3 排放占比最高.如图 5(c),东部中小城市单位 GDP 的 NH_3 排放量最高($19.5\text{t}/\text{亿元}$),东部特大城市最低($2.0\text{t}/\text{亿元}$).由此可见,东部特大城市对于 NH_3 的排放控制更加有效,尤其是对于机动车尾气、生物质燃烧和人体排泄等.

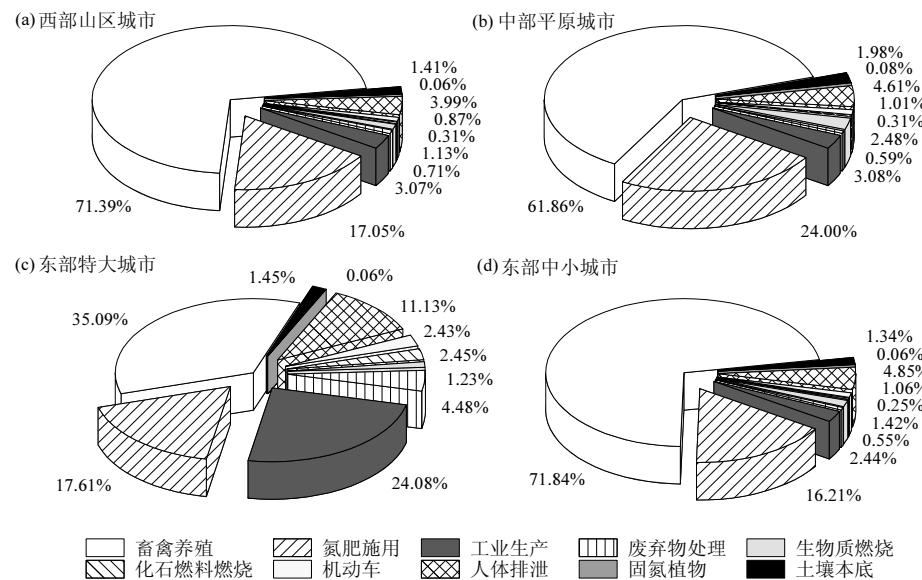


图 4 2016 年湖北省不同区域氨源贡献率

Fig.4 Contributions (%) of the ten ammonia emission sources in different geographic units in Hubei of 2016

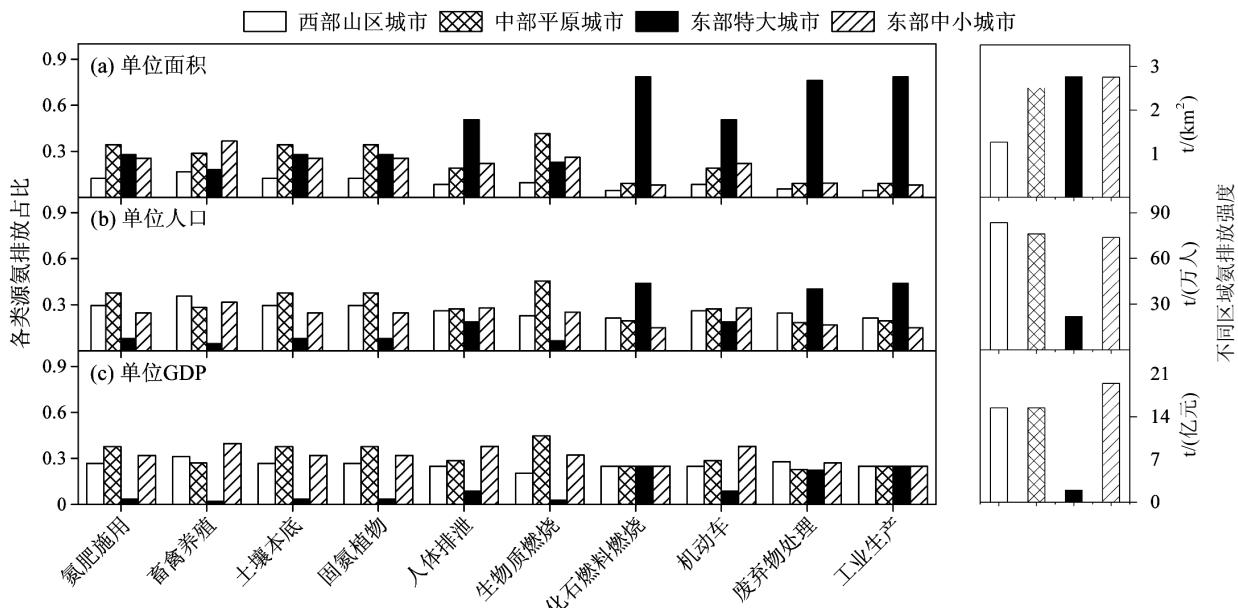


图 5 2016 年湖北省各类源不同地理单元氨排放贡献对比

Fig.5 Comparison of ammonia emission proportion and amounts for each geographic units of 2016 in Hubei

2.4 排放清单对比

如表 7 所示,本研究主要 NH_3 排放源贡献比例与王振刚等^[47]估算结果相近.本研究 1999 年湖北省 NH_3 排放总量为 392.1kt,虽估算源类多,却低于王振刚等^[47]所估算结果 439.9kt,其原因为排放因子均采用最新研究结果,人体排泄(31.1kt)、工业生产(4.5kt)和氮肥施用(57.6kt)均低于前人相应估算结果(77.2、10.9 和 77.8kt).本研究 2006 年湖北省 NH_3 排放总量为 370.8kt,与 Huang 等^[17]所估算的 323.7kt 结果较为

相近,低于董文煊等^[16]所估算的 837.5kt,同样与排放因子选择有关.董文煊等的研究中选取的氮肥释放比例较高(尿素 15.0%~20.0%),计算得到的氮肥施用排放占比高达 66.8%.

本研究 2016 年湖北省 NH_3 排放强度为 $2.6\text{t}/\text{km}^2$,与王文兴等^[1]、孙庆瑞等^[15]和王振刚等^[47]的排放强度相近,低于董文煊等^[16]的排放强度($4.5\text{t}/\text{km}^2$),这与源活动水平获取的完整性,尤其是排放因子选取有关.对于 NH_3 排放清单的更新,排

放因子的本地化实测或排放模型建立及完善是亟需开展的工作。

表7 不同研究氨排放量、排放强度和主要源贡献率对比

Table 7 Comparison of ammonia emission amount, emission intensity and contributions of major emission sources

文献	年份	区域	年排放量 (kt)	排放强度 (t/km ²)	研究涵盖的排放源	主要源贡献(%)
王文兴等 ^[1]	1991	湖北省	401.8	2.2	动物、氮肥施用、氮肥生产、人粪便	动物 57.7 氮肥施用 23.4
孙庆瑞等 ^[15]	1992	湖北省	487.1	2.6	动物、氮肥施用、氮肥生产、人排放	动物 45.2 氮肥施用 37.6
王振刚等 ^[47]	1999	湖北省	439.9	2.4	畜禽、人粪便、氮肥生产、氮肥施用	畜禽养殖 62.3 氮肥施用 17.7
董文煊等 ^[16]	2006	湖北省	837.5	4.5	牲畜养殖、化肥施用、化肥生产、人体排放	化肥施用 66.8 牲畜养殖 28.2
Huang 等 ^[17]	2006	湖北省	323.7	1.7	氮肥施用、土壤本底、固氮植物、堆肥、畜禽养殖、生物质燃烧、 人体排泄、化工生产、废弃物处理、交通源	氮肥施用 42.4 畜禽养殖 39.3
尹沙沙等 ^[18]	2006	珠三角	194.8	4.6	畜禽、氮肥施用、工业生产、人体、生物质燃烧、垃圾处理、燃 料燃烧、污水处理、道路移动源	畜禽养殖 62.1 氮肥施用 21.7
董艳强等 ^[19]	2004	长三角	460.7	2.2	牛、猪、其他动物、氮肥施用、人类源、生物质燃烧、其他源	氮肥施用 49.3 猪 26.3
沈兴玲等 ^[21]	2010	广东省	582.9	3.2	畜禽、氮肥施用、工业生产、道路移动源、人体、燃料燃烧、污 水处理、垃圾处理、生物质燃烧	畜禽养殖 44.2 氮肥施用 40.4
沈丽等 ^[23]	2014	江苏省	729.8	4.4	畜禽养殖、氮肥施用、人体、工业、机动车、化石燃料燃烧、生 物质燃烧、废水处理、垃圾处理	氮肥施用 58.7 畜禽养殖 29.5
本研究	2016	湖北省	475.4	2.6	氮肥施用、畜禽养殖、土壤本底、固氮植物、人体排泄、机动车、 化石燃料燃烧、生物质燃烧、废弃物处理、化工生产	畜禽养殖 71.6 氮肥施用 15.8

2.5 不确定性分析

除畜禽养殖和机动车尾气排放外,其余源类NH₃排放的不确定性范围低于±25% (表8).清单不确定性主要来自排放因子的不确定性和部分源活动水平数据缺失.本研究活动水平数据来自于统计年鉴.氮肥施用中尿素、碳铵、硝铵、硫铵和其他氮肥的分配比例参考董艳强等^[19]研究;生物质

秸秆燃烧数据参考 Zhou 等^[43]研究;机动车年均行驶里程数据参考车汝蔚等^[39].这些参数是本研究中主要的不确定性来源.此外机动车划分未考虑汽车的排放标准、油品标准及分类,也增加了估算结果的不确定性.畜禽养殖活动水平数据来源于统计年鉴,排放因子及修正因子均由指南所提供,不确定性较大.

表8 95%置信度下各类源氨排放的不确定性(%)

Table 8 Uncertainty in emission estimation of ammonia from various sources under ±95% confidence intervals (%)

氮肥施用	畜禽养殖	土壤本底	固氮植物	人体粪便	机动车	化石燃料燃烧	生物质燃烧	废弃物处理	工业生产
-20.0	-32.4	-19.7	-12.9	-19.7	-31.5	-16.0	-20.4	-19.6	-19.8
21.5	39.4	19.6	12.6	19.8	37.1	16.5	24.1	24.1	19.7

3 结论

3.1 利用排放因子法,计算得到 1996~2016 年湖北省 NH₃ 排放量由 375.0 kt 增长至 475.4 kt,年均增长率为 1.2%.

3.2 机动车尾气 NH₃ 排放量增长最快,年均增长率为 14.1%;人体排泄 NH₃ 排放量减少最快,年均增长

率为 -2.2%.

3.3 2016 年湖北省 NH₃ 排放主要为农业源.畜禽养殖与氮肥施用排放较高,分别占总排放量的 71.6% 和 15.8%.非农业源中人体排泄和工业生产排放占比较高,共占 7.5%.

3.4 湖北省 NH₃ 排放高值表现出以各个地市城区为中心向四周扩展的态势,尤其是在中部平原城市

和东部中小城市.单位面积 NH_3 排放最高的区域为东部特大城市($2.8\text{t}/\text{km}^2$);单位人口 NH_3 排放最高的区域为西部山区城市($83.3\text{t}/\text{万人}$);单位 GDPNH_3 排放最高的区域为东部中小城市($19.5\text{t}/\text{亿元}$).

3.5 对比 4 种地理单元各类源 NH_3 排放占比,中部平原城市氮肥施用占比最高,为 24.0%;东部特大城市的工业生产、人体排泄、废弃物处理和化石燃料燃烧排放 NH_3 在非农业源中排放占比最高,分别为 24.1%、11.1%、4.5% 和 2.5%,需引起重视.

参考文献:

- [1] 王文兴,卢筱凤,庞燕波,等.中国氨的排放强度地理分布 [J].环境科学学报,1997,17(1):2~7.
Wang W X, Lu X F, Pang Y B, et al. Geographical distribution of ammonia emission intensity in China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 1997,17(1):2~7.
- [2] Lynda H L, Meleux F, Beekmann M, et al. Improving ammonia emissions in air quality modelling for France [J]. *Atmospheric Environment*, 2014,92:584~595.
- [3] Ye X, Ma Z, Zhang J, et al. Important role of ammonia on haze formation in Shanghai [J]. *Environmental Research Letters*, 2011, 6(2):24019.
- [4] Wu Y, Gu B, Erisman J W, et al. $\text{PM}_{2.5}$ pollution is substantially affected by ammonia emissions in China [J]. *Environmental Pollution*, 2016,218:86~94.
- [5] Pui D Y H, Chen S, Zuo Z. $\text{PM}_{2.5}$ in China: Measurements, sources, visibility and health effects, and mitigation [J]. *Particology*, 2014,13: 1~26.
- [6] Guo J H, Liu X J, Zhang Y, et al. Significant acidification in major Chinese croplands [J]. *Science*, 2010,327(5968):1008~1010.
- [7] Yang Y, Ji C, Ma W, et al. Significant soil acidification across northern China's grasslands during 1980s~2000s [J]. *Global Change Biology*, 2012,18(7):2292~2300.
- [8] Behera S N, Sharma M, Aneja V P, et al. Ammonia in the atmosphere: a review on emission sources, atmospheric chemistry and deposition on terrestrial bodies [J]. *Environmental Science and Pollution Research*. 2013,20(11):8092~8131.
- [9] Erisman J W, Schaap M. The need for ammonia abatement with respect to secondary PM reductions in Europe [J]. *Environmental Pollution*, 2004,129(1):159~163.
- [10] Conley D J, Paerl H W, Howarth R W, et al. Ecology. Controlling eutrophication: nitrogen and phosphorus [J]. *Science*, 2009,323(5917):1014.
- [11] Hellsten S, Dragosits U, Place C J, et al. Modelling the spatial distribution of ammonia emissions in the UK [J]. *Environmental Pollution*, 2008,154(3):370~379.
- [12] Liu M, Huang X, Song Y, et al. Ammonia emission control in China would mitigate haze pollution and nitrogen deposition, but worsen acid rain [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2019,116(16):7760~7765.
- [13] 房效凤,沈根祥,徐 舜,等.上海市农业源氨排放清单及分布特征 [J]. *浙江农业学报*, 2015,27(12):2177~2185.
Fang X F, Shen G X, Xu C, et al. Agricultural ammonia emission inventory and its distribution characteristics in Shanghai [J]. *Acta Agriculturae Zhejiangensis*, 2015,27(12):2177~2185.
- [14] Chan C K, Yao X. Air pollution in mega cities in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008,42(1):1~42.
- [15] 孙庆瑞,王美蓉.我国氨的排放量和时空分布 [J]. *大气科学*, 1997,21(5):590~598.
Sun Q R, Wang M R. Ammonia emissions and spatial-temporal distribution in China [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 1997,21(5):590~598.
- [16] 董文煊,邢 佳,王书肖.1994~2006 年中国人为源大气氨排放时空分布 [J]. *环境科学*, 2010,31(7):1457~1463.
Dong W X, Xing J, Wang S X. Temporal and spatial distribution of anthropogenic ammonia emissions in China: 1994~2006 [J]. *Environmental Science*, 2010,31(7):1457~1463.
- [17] Huang X, Yu S, Li M, et al. A high-resolution ammonia emission inventory in China [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012,26(1).
- [18] 尹沙沙,郑君瑜,张礼俊,等.珠江三角洲人为源氨排放清单及特征 [J]. *环境科学*, 2010,31(5):1146~1151.
Yin S S, Zheng J Y, Zhang L J, et al. Anthropogenic ammonia emission inventory and characteristics in the Pearl River Delta Region [J]. *Environmental Science*, 2010,31(5):1146~1151.
- [19] 董艳强,陈长虹,黄 成,等.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*, 2009,29(8):1611~1617.
Dong Y Q, Chen C H, Huang C, et al. Anthropogenic emissions and distribution of ammonia over the Yangtze River Delta [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2009,29(8):1611~1617.
- [20] 尤翔宇,刘 湛,张青梅,等.长株潭地区人为源氨排放清单及分布特征 [J]. *环境科学*, 2016,37(1):94~101.
You X Y, Liu Z, Zhang Q M, et al. Anthropogenic emissions inventory and Its Spatial Distribution in Chang-Zhu-Tan Region [J]. *Environmental Science*, 2016,37(1):94~101.
- [21] 沈兴玲,尹沙沙,郑君瑜,等.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*, 2014,34(1):43~53.
Shen X L, Yin S S, Zheng J Y, et al. Anthropogenic ammonia emission inventory and its mitigation potential in Guangdong Province [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014,34(1):43~53.
- [22] 冯小琼,陈军辉,姜 涛,等.四川省 2005~2014 年农业源氨排放清单及分布特征 [J]. *环境科学*, 2017,38(7):2728~2737.
Feng X Q, Chen J H, Jiang T, et al. Agricultural ammonia emission inventory and its spatial distribution in Sichuan Province from 2005 to 2014 [J]. *Environmental Science*, 2017,38(7):2728~2737.
- [23] 沈 丽,于兴娜,项 磊.2006~2014 年江苏省氨排放清单 [J]. *中国环境科学*, 2018,38(1):26~34.
Shen L, Yu X N, Xiang L. Estimation of ammonia emissions inventories in Jiangsu Province from 2006 to 2014 [J]. *China Environmental Science*, 2018,38(1):26~34.
- [24] Shen J, Liu X, Zhang Y, et al. Atmospheric ammonia and particulate ammonium from agricultural sources in the North China Plain [J]. *Atmospheric Environment*, 2011,45(28):5033~5041.
- [25] Xu W, Wu Q, Liu X, et al. Characteristics of ammonia, acid gases, and

- PM_{2.5} for three typical land-use types in the North China Plain [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2016,23(2):1158–1172.
- [26] Meng Z Y, Lin W L, Jiang X M, et al. Characteristics of atmospheric ammonia over Beijing, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011,11(12):6139–6151.
- [27] Pan Y P, Tian S, Liu D, et al. Fossil fuel combustion-related emissions dominate atmospheric ammonia sources during severe haze episodes: evidence from 15N-stable isotope in size-resolved aerosol ammonium [J]. Environmental Science & Technology, 2016,50(15):8049.
- [28] Ma X, Jia H, Sha T, et al. Spatial and seasonal characteristics of particulate matter and gaseous pollution in China: Implications for control policy [J]. Environmental Pollution, 2019,248:421–428.
- [29] 谭成好,赵天良,崔春光,等.近50年华中地区霾污染的特征 [J].中国环境科学,2015,35(8):2272–2280.
Tan C H, Zhao T L, Cui C G, et al. Characterization of haze pollution over Central China during the past 50 years [J]. China Environmental Science, 2015,35(8):2272–2280.
- [30] Ju X T, Xing G X, Chen X P, et al. Reducing environmental risk by improving N management in intensive Chinese agricultural systems [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences. 2009,106(9):3041–3046.
- [31] 环境保护部科技标准司.大气氨源排放清单编制技术指南(试行) [M]. 北京:中华人民共和国环境保护部, 2014.
Ministry of Environmental Protection. Technical guidelines for atmospheric ammonia source inventory preparation (trial) [M]. Beijing: Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China, 2014.
- [32] 湖北省统计局.湖北省统计年鉴 1997~2017 [M]. 北京:中国统计出版社, 2017.
Hubei Provincial Statistics Bureau. Statistical yearbook of Hubei Province from 1997 to 2017 [M]. Beijing: China Statistics Press, 2017.
- [33] 贺克斌,王书肖,张强,等.城市大气污染物排放清单编制技术手册 [M]. 北京:中华人民共和国环境保护部, 2017.
He K B, Wang S X, Zhang Q, et al. Technical manual for the preparation of inventory of urban air pollutants [M]. Beijing: Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China, 2017.
- [34] Sutton M A, Dragosits U, Tang Y S, et al. Ammonia emissions from non-agricultural sources in the UK [J]. Atmospheric Environment, 2000,34(6):855–869.
- [35] Ianniello A, Spataro F, Esposito G, et al. Occurrence of gas phase ammonia in the area of Beijing (China) [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010,10(19):9487–9503.
- [36] Meng Z Y, Lin W L, Jiang X M, et al. Characteristics of atmospheric ammonia over Beijing, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011,11(12):6139–6151.
- [37] 环境保护部科技标准司.道路机动车大气污染物排放清单编制技术指南(试行) [M]. 北京:中华人民共和国环境保护部, 2014.
Ministry of Environmental Protection. Technical guidelines for the preparation of air pollutants emission inventory for road vehicles (trial) [M]. Beijing: Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China, 2014.
- [38] 车汝蔚.珠江三角洲高时空分辨率机动车污染排放清单开发及对策研究 [D]. 广州:华南理工大学, 2010.
Che W W. A highly resolved mobile source emission inventory in the Pearl River Delta and assessment of motor vehicle pollution control strategies [D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2010.
- [39] 国家统计局能源统计司.中国能源统计年鉴 1997~2017 [M]. 北京:中国统计出版社, 2017.
Department of Energy Statistics, National Bureau of Statistics. Statistical yearbook of China energy from 1997 to 2017 [M]. Beijing: China Statistics Press, 2017.
- [40] He M, Zheng J, Yin S, et al. Trends, temporal and spatial characteristics, and uncertainties in biomass burning emissions in the Pearl River Delta, China [J]. Atmospheric Environment, 2011,45(24):4051–4059.
- [41] 李高飞,任海.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, 2004,(4):306–310.
Li G F, Ren H. Biomass and net primary productivity of different types of forests in different climatic zones in China [J]. Tropical Geography, 2004,(4):306–310.
- [42] Ito A, Penner J E. Global estimates of biomass burning emissions based on satellite imagery for the year 2000 [J]. Journal of Geophysical Research, 2004,109(D14):D14S–D15S.
- [43] Zhou Y, Xing X, Lang J, et al. A comprehensive biomass burning emission inventory with high spatial and temporal resolution in China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017,17(4):2839–2864.
- [44] 国家统计局城市社会经济调查司.中国城市建设统计年鉴 1997~2017 [M]. 北京:中国计划出版社, 2017.
Department of Urban Social and Economic Surveys, National Bureau of Statistics. Statistical yearbook of Chinese urban construction from 1997 to 2017 [M]. Beijing: China Planning Press, 2017.
- [45] 孟庆平,王忠,姚中磊,等.畜禽舍内氨的减排措施 [J].中国家禽, 2009,31(2):55–57.
Meng Y P, Wang Z, Yao Z L, et al. Effects of ammonia on the performance of livestock and prevention strategies [J]. China Poultry, 2009,31(2):55–57.
- [46] 曹玉博,邢晓旭,柏兆海,等.农牧系统氨挥发减排技术研究进展 [J].中国农业科学, 2018,51(3):566–580.
Cao Y B, Xing X H, Bo Z H, et al. Review on ammonia emission mitigation techniques of crop-livestock production system [J]. Scientia Agricultura Sinica, 2018,51(3):566–580.
- [47] 王振刚,宋振东.湖北省人为源氨排放的历史分布 [J].环境科学与技术, 2005,28(1):70–71.
Wang Z G, Song Z D. Historical distribution of anthropogenic ammonia emissions in Hubei Province [J]. Environmental Science & Technology, 2005,28(1):70–71.

作者简介: 覃思(1994-),男,湖北宜昌人,中国地质大学(武汉)硕士研究生,主要研究方向为大气污染物排放源清单构建。