

1994~2006年中国人为源大气氨排放时空分布

董文煊,邢佳,王书肖*

(清华大学环境科学与工程系,北京 100084)

摘要: 大气中的氨对酸沉降、区域细粒子、水体富营养化等重要环节问题都有直接或间接的影响。对我国人为源大气氨排放进行估算可以为酸沉降和区域细粒子污染控制对策的制定提供依据。利用排放因子法,基于牲畜养殖、化肥施用、化工生产、人体呼吸排汗和排泄等部门的排放因子和分省活动水平,建立了1994~2006年我国分省分部门的大气氨排放清单,分析了其历史变化趋势和地理分布特征。2006年,全国大气氨排放量从1994年的11.06 Mt增长到16.07 Mt。其中,牲畜养殖、化肥施用、化工生产、人呼吸排汗和排泄的氨排放分别从1994年的4.47、5.94、0.09、0.59 Mt增长到2006年的6.61、8.68、0.14、0.65 Mt。牲畜养殖和化肥施用是最主要的氨排放源,分别贡献了2006年氨排放总量的40.79%和53.53%。2006年,全国平均的氨排放强度为 $1.67 \text{ t} \cdot \text{km}^{-2}$,但是全国大气氨排放量的地理分布很不均衡,河南、山东、四川、河北、江苏等省的排放量分别为11.0%、9.7%、6.9%、6.7%、6.6%,共占全国总排放量的40.82%。

关键词: 氨;排放清单;历史变化;地理分布;中国

中图分类号:X511 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2010)07-1457-07

Temporal and Spatial Distribution of Anthropogenic Ammonia Emissions in China: 1994-2006

DONG Wen-xuan, XING Jia, WANG Shu-xiao

(Department of Environmental Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Ammonia has both direct and indirect impacts on important environmental issues including acid deposition, regional fine particles and eutrophication. Estimation of anthropogenic ammonia emissions will provide valuable information for the pollution control of acid deposition and regional fine particle. Based on the provincial activity data on N-fertilizer application, livestock farming, N-fertilizer production and populations, this paper uses emission factor method to estimate China's atmospheric ammonia emissions, analyzes its historical trends and presents its geographical distributions from year 1994 to 2006. The national total atmospheric ammonia emissions are estimated to be 11.06 million tons (Mt) in 1994, which increase quickly to 16.07 Mt in 2006. Emissions from livestock farming, N-fertilizer application, N-fertilizer production and human excreta have increased from 4.47 Mt, 5.94 Mt, 0.09 Mt, and 0.59 Mt in 1994 to 6.61 Mt, 8.68 Mt, 0.14 Mt, 0.65 Mt respectively in 2006. Livestock farming and N-fertilizer application are the most important ammonia emission sources, which contributed 40.79 and 55.53 percent of total emissions respectively in 2006. In 2006, the average ammonia emission intensity is $1.67 \text{ t} \cdot \text{km}^{-2}$ but there are large variations among atmospheric ammonia emissions from each province. Emissions from provinces including Henan, Shandong, Hebei, Sichuan and Jiangsu accounted for 40.82 percent of national emissions.

Key words: ammonia; emission inventory; historical change; geographical distribution; China

氨(NH_3)是大气中最重要的微量气体之一,它参与氮的循环,作为大气中最重要的碱性物质,在底层大气环境酸化中起着重要的缓冲作用,对酸沉降和二次颗粒物的形成有重要的影响^[1, 2]。排放到大气中的 NH_3 还会产生温室效应^[3]。此外,进入地表水体的 NH_3 又会增加水体富营养化^[4]。因此, NH_3 排放量的计算是大气环境化学研究的基础工作之一,具有重要意义。

近年来,国内外一些学者先后估算了中国大气 NH_3 排放量。Klimont^[5]采用RAINS-Asia模型计算了1990年和1995年中国大气 NH_3 排放清单,——预测了2030年的排放量。王文兴等^[6]分析了1951年~1991年全国大气 NH_3 排放趋势。孙庆瑞等^[7]计算

了1993年各省大气 NH_3 排放量,同时在北京、广西、广东、湖南、江西和山东测定了大气中 NH_3 的浓度。上述中国大气 NH_3 排放清单研究均直接引用了美国和欧洲的 NH_3 排放因子,且研究结果限于1995年以前,无法反映近年来我国经济快速发展情况下 NH_3 排放的变化。

为了提高我国大气氨排放清单的准确度,本研究对国外主要学者和研究机构关于各种 NH_3 排放

收稿日期:2009-08-24;修订日期:2009-12-15

基金项目:国家重点基础研究发展计划(973)项目(2005CB422201);

国家高技术研究发展计划(863)项目(2006AA06A305)

作者简介:董文煊(1987~),男,主要研究方向为大气污染控制,E-mail:dongwx06@mails.tsinghua.edu.cn

* 通讯联系人,E-mail: shxwang@tsinghua.edu.cn

源的排放因子进行了比较和修正,根据中国各省乳牛、黄牛、猪、羊、兔、蛋鸡及其它家禽养殖量、化肥产量和施用量、人口等氨排放活动水平数据,对中国大陆 1994~2006 年大气 NH₃ 排放清单及其分行业、分地区分布特征进行了估算和分析。

1 研究方法

研究区域包括中国大陆 31 个省、直辖市及自治区。暂未考虑香港、澳门特别行政区和台湾地区。

1.1 计算方法

目前国内外对人为源 NH₃ 排放清单的研究主要采取排放因子法进行计算。人为 NH₃ 排放源主要包括牲畜养殖、化肥施用、工业生产、人体呼吸排汗和排泄。

1.1.1 牲畜养殖

牲畜养殖对人为源 NH₃ 排放总量的贡献很大^[2, 8~10]。牲畜养殖 NH₃ 排放主要来自圈养、放牧、厩肥保存和施肥 4 个阶段。来自牲畜饲养及排泄物的 NH₃ 排放(EL)采用公式(1)来计算^[5]:

$$EL_{i,l} = \sum_j L_{j,l} \sum_{s=1}^4 (ef_{i,j,l,s}) \quad (1)$$

式中, i、j、l 分别为省(市)、牲畜种类和年份; s 为 NH₃ 排放的 4 个阶段(即圈养、放牧、贮存和施用); L 为牲畜数量; ef 为排放因子。

1.1.2 化肥施用

氮肥施放到农田后,通过微生物作用或者自身的分解向大气排放出 NH₃。与 NH₃ 排放相关的化肥主要是氮肥和复合肥,氮肥包括尿素、碳酸氢铵、硫酸铵、硝酸铵、氯化铵和氨水,复合肥主要是磷酸一铵、磷酸二铵、三元复合肥。来自化肥施用的氨排放(EFC)采用公式(2)计算^[5]:

$$EFC_{i,l} = \sum_j \left(nf_i \frac{17}{14} \times FC_{i,j,l} \right) \quad (2)$$

式中, i、j 分别为省(市)、化肥种类; nf_i 表示每单位化肥的氮损失量, 氮含量% / 100; FC 为化肥施用(以 N 计), Gg · a⁻¹。

1.1.3 工业生产、人体排泄

工业生产氨水、尿素及含氮酸和肥料是氨排放的主要来源。一般认为工业生产中氨排放的总量和肥料施用中氨的排放量成一定比例。化工生产厂家的氨排放因子数值取决于工厂的规模、生产历史和其生产过程。

作为正常的新陈代谢结果, 氨从人体的释放主要来自人体排泄物, 另一部分则来自排汗和呼吸。

这两部分的氨排放 E 采用公式(3)计算:

$$E = ef \cdot L \quad (3)$$

式中, ef 为排放因子, L 为人口数量或工业生产氮肥的质量。

1.2 排放因子的确定

由于 NH₃ 排放的复杂性, 影响 NH₃ 排放因子的因素很多, 给排放因子的确定带来了很大的困难。鉴于其重要性, 国外已经在这方面做了很多有意义的研究。例如, 牲畜养殖的排放因子取决于饲料氮元素的相对含量、饲料中的氮元素与肉和奶中氮元素的转化因子、动物的年龄以及动物粪便的储存及处理方式等; 化肥施用的排放因子取决于化肥施用地的土壤性质和日照时长、温度、湿度、降水量等; 化肥生产的排放因子则取决于化肥中含氮元素的比例及废渣处理的方式等; 人体呼吸和排泄的排放因子则取决于人种、地区气温及排泄物处理方式等。本研究基于国外的测试结果, 结合中国的实际情况, 对文献中的 NH₃ 排放因子进行了系统的汇编分析, 确定了更适用于中国的 NH₃ 排放因子。

1.2.1 牝畜养殖

牲畜养殖的 NH₃ 排放因子是每头动物一年平均的氨排放量, 由圈养、放牧、厩肥保存和施肥 4 个阶段的 NH₃ 排放组成, 每个阶段的 NH₃ 排放量可通过动物总氮排放和年氨氮挥发率得到^[8~10]。表 1 给出了本研究所采用的圈养、放牧、厩肥保存和施肥 4 个阶段的氮挥发率。

表 1 牝畜养殖中氮的挥发率/%

Table 1 N-volatilization rates in livestock farming/%

牲畜分类	圈养	放牧	厩肥保存	施肥
乳牛	12	8	6	20
黄牛	12	8	6	20
猪	17	3	6	20
蛋鸡	20	—	4	20
家禽	20	—	3	20
羊	10	4	0	10
马、驴、骡	12	8	0	12
兔	—	—	—	—
骆驼	—	—	—	—

将每个阶段的氮排放总量乘以每个阶段的氮挥发率后累加即是牲畜养殖 NH₃ 的排放因子。

由于我国幅员辽阔各地的牲畜养殖方式方法差异显著, 只能选取具有代表性的牲畜养殖中的氮挥发率进行计算。其中, 本研究针对乳牛进行了本地化的因子校正。

乳牛采用了各地区牛奶产量对乳牛氮氨排放进

行核算,根据公式(4):

$$N_x = 0.0178 \times M + 0.2271 \quad (4)$$

式中, N_x 为氮的年挥发率, M 为牛奶的年产量.

表2所示排放因子为本地化后的结果.

1.2.2 化肥施用

表2 牲畜养殖 NH_3 排放因子/ $\text{kg} \cdot (\text{a} \cdot \text{unit})^{-1}$

Table 2 Ammonia emission factors for livestock farming/ $\text{kg} \cdot (\text{a} \cdot \text{unit})^{-1}$

牲畜分类	本研究	文献值
乳牛	16.4~26.1	19.4~24.8 ^[5] , 22.3~39.7 ^[11] , 28.5 ^[12] , 25.1 ^[13] , 17.4 ^[4]
黄牛	9.70	9.5~9.9 ^[5] , 9.7~17.7 ^[11] , 14.3 ^[12] , 25.1 ^[13] , 10.0 ^[4]
猪	4.80	4.8 ^[4, 5, 12, 13] , 2.3~6.7 ^[11]
蛋鸡	0.320	0.32 ^[5, 13] , 0.16~0.42 ^[11] , 0.37 ^[12] , 0.24 ^[4]
家禽	0.220	0.26
羊	1.20	1.2 ^[4, 5] , 1.1~3.0 ^[11] , 1.34 ^[12] , 1.9 ^[13]
马、驴、骡	10.6	10.6 ^[4, 5] , 12.5 ^[11, 13] , 8.0 ^[12]
兔	0.620	0.62 ^[11]
骆驼	12.9	12.9 ^[4, 5]

表3 化肥施用 NH_3 排放因子/%

Table 3 Ammonia emission factors for fertilizer application/%

氮肥种类	本研究(N含量)	文献值(N含量)
尿素	15(温带地区)/20(热带地区)	15/20 ^[5] , 15/25 ^[4] , 15 ^[12~14]
碳酸氢铵	20(温带地区)/30(热带地区)	20/30 ^[4, 5]
氨水	4	4 ^[4, 5, 12] , 1 ^[14]
硫酸	8	8 ^[5, 13] , 10 ^[12]
硝酸	2	2 ^[5, 12, 13]
磷酸	3	3 ^[5] , 2~5 ^[4, 12] , 4 ^[13]
其它复合肥	2~4	2~4 ^[5]

工业 NH_3 排放源主要是氮肥的合成和生产企业,其它还有一些炼油和焦炭等.本研究重点计算了尿素、碳酸氢铵、硫酸铵、合成氨、硝酸铵、氯化铵、磷酸铵、复合肥、其它肥料、炼油和焦炭的 NH_3 排放,其排放因子见表4.

表4 氮肥生产 NH_3 排放因子/ $\text{kg} \cdot \text{t}^{-1}$

Table 4 Ammonia emission factors for fertilizer production/ $\text{kg} \cdot \text{t}^{-1}$

化工产品	文献值	化工产品	文献值
尿素	9.98 ^[15]	磷酸铵	0.07 ^[15]
碳酸氢铵	2.15 ^[5]	复合肥	2.50 ^[5]
硫酸铵	1.06 ^[5]	其它肥料	1.00 ^[5]
合成氨	1.05 ^[15]	炼油	0.16 ^[15]
硝酸铵	23.38 ^[15]	焦炭	0.01 ^[15]
氯化铵	1.11 ^[5]		

1.2.4 人体的 NH_3 排放

根据文献调研,各种研究的人体 NH_3 排放因子差异很大,一般为 $0.01 \sim 1.3 \text{ kg} \cdot (\text{Person} \cdot \text{a})^{-1}$ ^[5].考虑中国广大的农村地区基本都以旱厕作为卫生间,这导致氨的排放量增多,故

化肥施用的 NH_3 排放因子主要取决于每单位化肥的氮损失量,即挥发到大气中的氨氮量与所施化肥氮含量之比,国外通过田间实测得到了化肥施用的 NH_3 排放因子,见表3.

1.2.3 工业生产

表2 牲畜养殖 NH_3 排放因子/ $\text{kg} \cdot (\text{a} \cdot \text{unit})^{-1}$

Table 2 Ammonia emission factors for livestock farming/ $\text{kg} \cdot (\text{a} \cdot \text{unit})^{-1}$

本研究中农村人口的 NH_3 排放因子的取值为 $0.50 \text{ kg} \cdot (\text{Person} \cdot \text{a})^{-1}$,城市人口的 NH_3 排放因子的取值为 $0.25 \text{ kg} \cdot (\text{Person} \cdot \text{a})^{-1}$,见表5.

表5 人体排泄的 NH_3 排放因子/ $\text{kg} \cdot (\text{Person} \cdot \text{a})^{-1}$

Table 5 Ammonia emission factors of human

beings/ $\text{kg} \cdot (\text{Person} \cdot \text{a})^{-1}$

项目	本研究	文献值
人体排泄	农村:0.50 城市:0.25	0.5 ^[5] , 0.25 ^[15] , 0.13 ^[16]

1.3 活动水平

活动水平的定义是以排放因子为基础的,不同的氨排放源有不同的定义.如牲畜养殖的氨排放活动水平是动物的数量,工业生产氨排放的活动水平是工业产品的产量.本研究中活动水平的数据均来自国家统计资料,包括中国畜牧业年鉴^[17~29]、中国农村统计年鉴^[30~42]、中国化学工业年鉴^[43~55]等.

表6给出了1994~2006年间,我国主要 NH_3 排放活动水平的增长情况.可见,1994~2006年,各种牲畜的数量均呈上升趋势,其中乳牛数量增幅最

表 6 1994~2006 年中国 NH₃ 排放的活动水平

Table 6 Activity data of ammonia emissions in China, 1994-2006

年份	乳牛 ×10 ⁸ /头	黄牛 ×10 ⁸ /头	猪 ×10 ⁸ /头	蛋鸡 ×10 ⁸ /只	其它家禽 ×10 ⁸ /只	羊 ×10 ⁸ /只	兔 ×10 ⁸ /只	氮肥 ×10 ⁸ /t	人口 ×10 ⁸ /人
1994	0.04	0.92	4.15	5.79	37.40	2.41	1.49	0.25	11.74
1995	0.04	0.99	4.42	6.49	41.09	2.77	1.47	0.27	11.85
1996	0.04	1.06	4.57	7.19	47.12	3.03	1.66	0.29	11.95
1997	0.05	0.87	3.89	7.89	46.57	2.56	1.68	0.30	12.23
1998	0.04	0.93	4.23	8.51	46.02	2.69	1.71	0.31	12.33
1999	0.04	0.87	3.89	9.46	45.47	2.56	1.58	0.30	12.83
2000	0.05	0.97	4.47	9.90	80.99	2.90	1.78	0.31	12.61
2001	0.07	0.95	5.49	9.81	80.88	2.98	1.91	0.31	12.68
2002	0.08	0.96	5.67	23.61	83.29	3.17	3.06	0.32	12.75
2003	0.11	0.97	5.92	18.90	79.40	3.41	2.76	0.33	12.84
2004	0.12	1.01	6.18	14.20	81.05	3.66	2.91	0.34	12.94
2005	0.12	1.00	5.03	15.74	98.81	3.73	3.78	0.36	12.83
2006	0.14	0.99	4.92	15.39	77.74	3.68	3.54	0.39	12.91

大, 约增加了 2.5 倍。氮肥产量也增加了 0.5 倍, 人口数量相对比较稳定。

2 结果与讨论

2.1 全国大气 NH₃ 排放量的年际变化

图 1 给出了 1994~2006 年全国 NH₃ 排放的增长情况。1994~2006 年, 全国大气氨排放总量从 11.06 Mt 增长到 16.07 Mt, 年均增长率为 3.1%。其中, 牲畜养殖、化肥施用、化肥生产和人体排放的年均增长率分别为 3.4%、3.2%、3.7% 和 0.8%。

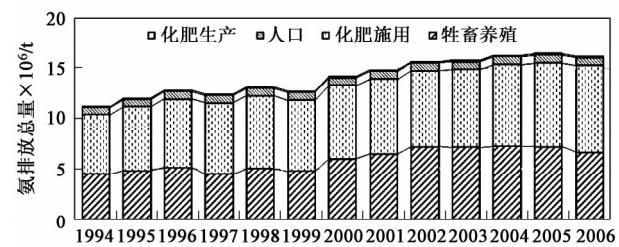


图 1 1994~2006 年全国人为源氨排放总量

Fig. 1 Anthropogenic emissions of ammonia in China, 1994-2006

2.2 全国大气 NH₃ 排放量的部门分布特征

2006 年中国人为源大气 NH₃ 排放的部门分布特征见表 7。可见, 化肥施用的 NH₃ 排放最大, 高达 8 678.2 kt, 占全国 NH₃ 总排放量的 54.01%; 其次是牲畜养殖, 其 NH₃ 排放为 6 612.3 kt, 约占 41.14%; 人体排泄、化肥生产、生物质燃烧分别为 645.7、136.0、84 kt, 分别占 4.01%、0.84%、0.52%。

全国化肥施用所排放的 NH₃ 中, 尿素施用和碳

铵施用的 NH₃ 排放最大, 分别占化肥施用总排放量的 53.80% 和 30.24%。

全国牲畜养殖所排放的 NH₃ 主要由猪和家禽养殖的排放组成, 分别占牲畜养殖总排放量的 35.70% 和 33.31%。

表 7 2006 年全国人为源氨排放源组成

Table 7 Anthropogenic ammonia emissions in China, 2006

部门	排放量/kt	比例/%
牲畜养殖	6 612.3	41.14
乳牛	236.5	1.46
黄牛	957.4	5.91
猪	2 360.6	14.56
蛋鸡	492.5	3.04
其它家禽	1 710.2	10.55
羊	441.9	2.73
马	76.2	0.47
驴	77.3	0.48
骡	36.5	0.23
兔	219.7	1.36
骆驼	3.5	0.02
化肥施用	8 678.2	54.01
尿素	4 669.0	28.80
碳铵	2 624.7	16.19
其它复合肥	1 384.5	8.54
化肥生产	136.0	0.84
尿素	121.2	0.75
碳铵	12.3	0.08
其它复合肥	2.6	0.02
其它排放	868.0	4.53
人体排放	645.7	4.01
生物质燃烧	84.0	0.52

2.3 全国大气 NH₃ 排放的空间分布特征

表 8 给出了 2006 年各省的 NH₃ 排放量及排放密度。可见, NH₃ 排放量最大的省是河南、山东、四川、河北、江苏, 排放量均超过 1 000 kt, 分别占全国

表 8 2006 年分省 NH₃ 排放量及排放强度¹⁾
Table 8 Provincial ammonia emissions and emission intensity, 2006

省(市、自治区)	牲畜养殖/kt	化肥施用/kt	化肥生产/kt	人体排放/kt	总排放量/kt	排放强度/t·km ⁻²
安徽	229.98	592.44	5.58	37.10	865.09	6.47
北京	51.11	26.40	0.01	9.60	87.12	5.03
重庆	101.03	155.83	2.43	17.05	276.34	3.58
福建	74.62	214.17	1.97	21.60	312.36	2.85
甘肃	130.31	104.51	2.56	15.82	253.20	0.61
广东	126.49	382.58	0.34	56.49	565.89	3.63
广西	165.70	368.65	1.57	28.65	564.57	2.70
贵州	192.79	168.84	4.91	22.81	389.35	2.44
海南	25.95	75.24	3.35	5.08	109.61	3.78
河北	593.30	440.57	6.57	41.88	1 082.32	5.51
黑龙江	209.73	193.54	2.26	23.21	428.73	0.79
河南	695.03	1 018.90	12.65	57.02	1 783.61	11.05
湖北	235.94	559.53	7.49	34.56	837.53	4.77
湖南	350.52	452.25	5.46	38.51	846.73	4.37
内蒙古	251.64	247.84	2.47	14.55	516.50	0.40
江苏	293.90	721.43	5.60	45.84	1 066.76	10.95
江西	99.34	216.55	1.93	26.34	344.16	2.25
吉林	227.18	235.95	0.93	16.53	480.59	2.25
辽宁	310.84	187.75	2.95	25.93	527.47	3.37
宁夏	28.62	48.58	3.28	3.67	84.16	1.60
青海	70.38	8.18	0.00	3.33	81.88	0.11
陕西	106.85	233.64	2.81	22.68	365.99	1.79
山东	769.65	718.10	25.05	56.52	1 569.32	10.19
上海	7.83	37.59	0.02	11.02	56.47	9.54
山西	94.49	137.12	10.20	20.49	262.30	1.64
四川	615.71	439.81	10.26	49.60	1 115.37	2.45
天津	30.79	35.57	0.57	6.53	73.45	6.05
西藏	39.49	4.39	0.00	1.71	45.59	0.04
新疆	177.65	150.81	6.35	12.45	347.26	0.20
云南	242.53	303.38	4.64	27.22	577.76	1.69
浙江	62.91	198.04	1.81	30.24	292.99	3.10

1) 台湾省数据暂缺

NH₃ 排放的 11.0%、9.7%、6.9%、6.7%、6.6%。这主要是由于这几个省是农业大省,牲畜数量和施肥量都很大。西藏、宁夏、青海、海南等省排放量较小。

根据人口、农业人口、农作物产量等信息,在 ARCGIS 中对分省氨排放清单进行网格化,得到全国 18' × 18' 的网格排放分布,如图 2 所示,可用于大气污染物传输和沉降模型。可见,由于我国幅员辽阔,经济发展极不平衡,NH₃ 排放强度有比较大的空间差异。NH₃ 排放强度高的省份主要是河南、江苏、山东、上海,分别为 11.05、10.95、10.19、9.54 t·km⁻²;此外,安徽、天津和河北的 NH₃ 排放强度均高于 5 t·km⁻²,而黑龙江、甘肃、内蒙古、新疆、青海、西藏等省的 NH₃ 排放强度均小于 1 t·km⁻²。

2.4 NH₃ 排放清单的不确定性分析

影响 NH₃ 排放清单不确定性的主要因素包括 NH₃ 排放因子的准确性和牲畜数量、化肥用量等活

动水平数据的可靠性。本研究中采用的活动水平数据来自国家统计资料,能够较好地保证数据的可靠性。相对而言,排放因子的不确定性较大,一方面是由于国内还没有足够的具有代表性的排放因子可以利用;另一方面研究中也未考虑可能存在的养殖、施肥方式的差别,及温度、光照、土壤类型等因素的影响。

本研究使用如下公式来估算 95% 置信度下排放源的不确定性^[56]:

$$CV = \frac{U}{E} = 1.96 \times \sqrt{(1 + C_a^2)(1 + C_f^2)(1 + C_t^2)(1 + C_r^2) - 1} \quad (5)$$

$$U_j = \sqrt{\sum_k (U_{j,k}^2)} \quad (6)$$

$$U_j = \sqrt{\sum_j (U_j^2)} \quad (7)$$

式中,E 为排放源的排放量;j 为部门;k 为县区;C_a 为活动水平不确定度;C_f 为排放因子不确定度;C_t

为排放时间不确定度; C_r 为污染物去除效率不确定度; U 为排放源的不确定度; CV 为排放速率的不确定度。

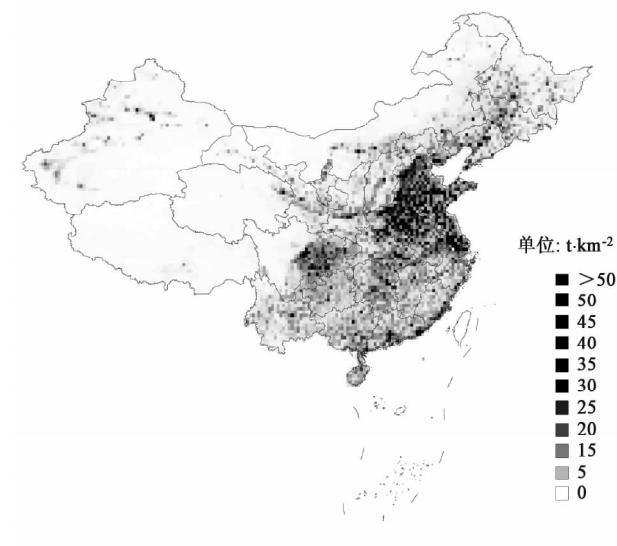


图 2 2006 年全国大气 NH_3 排放网格分布

Fig. 2 China grid distribution of ammonia emissions

采用划分②的方法来确定各排放源活动水平和排放因子的不确定度。对于活动水平和排放因子,根据其数据来源的可靠程度分为 7 级,每级对应的相对标准差从 2% ~ 100%。计算结果表明,95% 置信度下全国 NH_3 排放量的不确定性为 53%,其中不确定性最大的排放源为化肥施用。

2.5 NH_3 排放清单的比较

图 3 是本研究计算的中国 NH_3 排放量与已有报道^[5~7,56,57]数据的比较。各研究 NH_3 排放量差异的根本原因是各排放源排放因子选择不一致造成的,尤其是牲畜养殖的排放因子和化肥施用时的排放因子。鉴于目前我国本土化的 NH_3 排放因子严重缺失,要提高 NH_3 排放清单的准确性,必须加强我国牲畜养殖及化肥施用的氨排放因子的测定工作。

由于 NH_3 排放是形成大气二次无机盐硫酸盐、硝酸盐和铵盐的主要物种,主要通过大气中化学异相转化形成,涉及大气物理传输及干湿沉降等过程,因此需要借助空气质量复杂模型进行模拟估算。本研究借助美国 EPA 开发的第三代空气质量模式 CMAQ 进行模拟,将本研究所算得的 NH_3 排放清单作为模型的输入,通过对模拟结果与观测数据的比较,间接对排放清单进行验证。模拟结果表明,北京清华站点(城区)与密云站点(郊区)的硝酸盐、硫酸盐和铵盐的模拟与观测数据的相关系数均大于

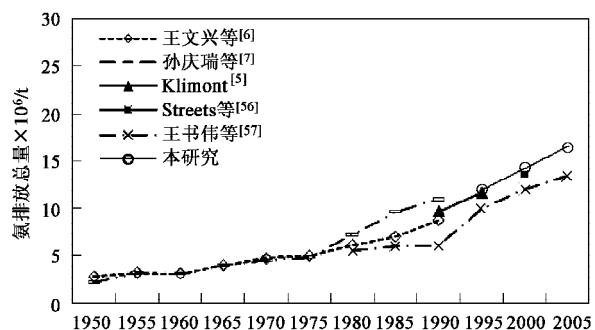


图 3 本研究结果与其它研究结果对比

Fig. 3 Results of this study contrast with other studies

0.7,间接验证了本研究的 NH_3 排放量估算结果。

3 结论

(1) 本研究采用排放因子方法,计算了 1994 ~ 2006 年中国大陆各省人为源氨的排放量。1994 ~ 2006 年,全国大气氨排放总量从 11.06 Mt 增长到 16.07 Mt,年均增长率为 3.1%。

(2) 中国大气氨排放主要来自化肥施用和牲畜养殖,分别占排放总量的 53.53% 和 40.79%。

(3) 中国大气氨排放主要集中在人口密集、经济发展较快的河南、江苏、山东、上海、安徽、天津和河北等省,其 NH_3 排放强度高于 $5 \text{ t} \cdot \text{km}^{-2}$ 。这些地区 NH_3 排放对区域细粒子污染和酸沉降的影响应引起高度重视。

参考文献:

- [1] Metcalfe S E, Atkins D, Derwent R G. Acid deposition modeling and the interpretation of the united-kingdom secondary precipitation network data [J]. *Atmos Environ*, 1989, **23** (9): 2033-2052.
- [2] Battye R, Battye W, Overcash C, et al. Development and selection of ammonia emission factors: final report [M]. Research Triangle Park, NC: U. S. Environmental Protection Agency, Atmospheric Research and Exposure Assessment Laboratory, 1994.
- [3] Sutton M A, Place C J, Eager M, et al. Assessment of the magnitude of ammonia emissions in the United Kingdom [J]. *Atmos Environ*, 1995, **29** (12): 1393-1411.
- [4] Bouwman A F, Lee D S, Asman W A H, et al. A global high-resolution emission inventory for ammonia [J]. *Global Biogeochem Cy*, 1997, **11** (4), 561-587.
- [5] Klimont Z. Current and Future Emissions of Ammonia in China [Z]. Laxenburg, Austria: 2000. 1-8.
- [6] 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.
- [7] 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.
- [8] Faulkner W B, Shaw B W. Review of ammonia emission factors

- for United States animal agriculture [J]. *Atmos Environ*, 2008, **42**(27): 6567-6574.
- [9] Hutchings N J, Sommer S G, Andersen J M, et al. A detailed ammonia emission inventory for Denmark [J]. *Atmos Environ*, 2001, **35**(11): 1959-1968.
- [10] Misselbrook T H, Van Der Weerden T J, Pain B F, et al. Ammonia emission factors for UK agriculture [J]. *Atmos Environ*, 2000, **34**(6): 871-880.
- [11] International institute for applied systems analysis (IIASA). GAINS-Asia[EB/OL]. <http://www.iiasa.ac.at/~rains>, 2006.
- [12] European Environment Agency. EMEP/CORINAIR Atmospheric emission inventory guidebook[R]. 2006.
- [13] Asman W A H. Ammonia Emission in Europe: updated emission and emission variation[R]. 1992.
- [14] Apsimon H M, Krusea M, Bell J N B. Ammonia emission and their role in acid deposition[J]. *Atmos Environ*, 1987, **21**(9): 1939-1987.
- [15] United States Environmental Protection Agency (USEPA). National Air Pollution Trends[EB/OL]. <http://www.epa.gov/ttnchie1/trends/>, 2000.
- [16] Möller D, Schieferdecker H. Ammonia emission and deposition of NH_x in the G. D. R. [J]. *Atmos Environ*, 1989, **23**(6): 1187-1193.
- [17] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 1995[M]. 北京: 中国农业出版社, 1995.
- [18] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 1996[M]. 北京: 中国农业出版社, 1996.
- [19] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 1997[M]. 北京: 中国农业出版社, 1997.
- [20] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 1998[M]. 北京: 中国农业出版社, 1998.
- [21] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 1999[M]. 北京: 中国农业出版社, 1999.
- [22] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 2000[M]. 北京: 中国农业出版社, 2000.
- [23] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 2001[M]. 北京: 中国农业出版社, 2001.
- [24] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 2002[M]. 北京: 中国农业出版社, 2002.
- [25] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 2003[M]. 北京: 中国农业出版社, 2003.
- [26] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 2004[M]. 北京: 中国农业出版社, 2004.
- [27] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 2005[M]. 北京: 中国农业出版社, 2005.
- [28] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 2006[M]. 北京: 中国农业出版社, 2006.
- [29] 中国畜牧业统计编委会. 中国畜牧业年鉴 2007[M]. 北京: 中国农业出版社, 2007.
- [30] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 1995[M]. 北京: 中国统计出版社, 1995.
- [31] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 1996[M]. 北京: 中国统计出版社, 1996.
- [32] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 1997[M]. 北京: 中国统计出版社, 1997.
- [33] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 1998[M]. 北京: 中国统计出版社, 1998.
- [34] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 1999[M]. 北京: 中国统计出版社, 1999.
- [35] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 2000[M]. 北京: 中国统计出版社, 2000.
- [36] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 2001[M]. 北京: 中国统计出版社, 2001.
- [37] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 2002[M]. 北京: 中国统计出版社, 2002.
- [38] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 2003[M]. 北京: 中国统计出版社, 2003.
- [39] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 2004[M]. 北京: 中国统计出版社, 2004.
- [40] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 2005[M]. 北京: 中国统计出版社, 2005.
- [41] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 2006[M]. 北京: 中国统计出版社, 2006.
- [42] 国家统计局农村社会经济调查司. 中国农村统计年鉴 2007[M]. 北京: 中国统计出版社, 2007.
- [43] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 1995[M]. 北京: 化学工业出版社, 1995.
- [44] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 1996[M]. 北京: 化学工业出版社, 1996.
- [45] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 1997[M]. 北京: 化学工业出版社, 1997.
- [46] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 1998[M]. 北京: 化学工业出版社, 1998.
- [47] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 1999[M]. 北京: 化学工业出版社, 1999.
- [48] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 2000[M]. 北京: 化学工业出版社, 2000.
- [49] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 2001[M]. 北京: 化学工业出版社, 2001.
- [50] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 2002[M]. 北京: 化学工业出版社, 2002.
- [51] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 2003[M]. 北京: 化学工业出版社, 2003.
- [52] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 2004[M]. 北京: 化学工业出版社, 2004.
- [53] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 2005[M]. 北京: 化学工业出版社, 2005.
- [54] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 2006[M]. 北京: 化学工业出版社, 2006.
- [55] 中国石油和化学工业协会. 中国化学工业年鉴 2007[M]. 北京: 化学工业出版社, 2007.
- [56] 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]. *J Geophys Res*, 2003, **108** (D21), 8809, doi:10.1029/2002JD003093.
- [57] 王书伟, 廖千家骅, 胡玉婷, 等. 我国 NH₃-N 排放量及空间分布变化初步研究[J]. *农业环境科学学报*, 2009, **28**(3): 619-626.