

中国人为源 VOC 排放清单不确定性研究

魏巍^{1,2}, 王书肖^{2*}, 郝吉明²

(1. 北京工业大学环境与能源工程学院, 北京 100124; 2. 清华大学环境科学与工程系, 北京 100084)

摘要: 针对采用“排放因子法”构建的中国人为源 VOC 排放清单, 开展了不确定性研究工作。基于排放清单输入信息的准确性和可靠性, 构建了活动水平和排放因子的不确定度评估系统, 获得了清单输入信息概率密度分布函数。利用 Monte Carlo 模型将输入信息的不确定度传递到清单的输出值, 计算了 2005 年我国人为源 VOC 排放概率密度分布函数。结果表明, 2005 年我国人为源 VOC 排放量概率密度呈对数正态分布, 相对标准差为 $\pm 52\%$, 95% 置信区间的确定度为 $[-51\%, +133\%]$ 。若利用传统的误差分析法, 在相同输入信息基础上, 计算同一清单的不确定性时, 其结果比上述 Monte Carlo 数值模拟法的结果偏低约 40%。此外, 通过敏感度分析找出了对清单不确定性影响最大的 20 个输入信息, 为今后进一步改善我国人为源 VOC 排放清单提供了指导和依据。

关键词: 排放清单; 不确定性; 挥发性有机物; 蒙特卡罗数值模拟; 敏感性分析

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2011)02-0305-08

Uncertainty Analysis of Emission Inventory for Volatile Organic Compounds from Anthropogenic Sources in China

WEI Wei^{1,2}, WANG Shu-xiao², HAO Ji-ming²

(1. College of Environment and Energy Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China; 2. Department of Environmental Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: This study analyzed the uncertainties in the Chinese anthropogenic volatile organic compound (VOC) emission inventory. The uncertainty evaluation system for input information including activity data and emission factors was established to provide the probability density function of each input datum. Monte Carlo method was applied to propagate the uncertainties of emissions' input data and calculate the probability density function of total VOC emissions. The results indicated that the Chinese national anthropogenic VOC emissions in year 2005 had a log-normal distribution, with a relative standard deviation of 52%, and with 95% confidence interval of $[-51\%, +133\%]$. However, if the traditional method for error analysis was used based on the same input information, the uncertainty of the 2005 VOC emission inventory calculated was 40% lower than the former results. In addition, sensitivity analysis was conducted to identify the 20 most sensitive inputs influencing the uncertainty of emissions, which will be helpful to improve the accuracy of VOC emission inventory in the future.

Key words: emission inventory; uncertainty analysis; volatile organic compound (VOC); Monte Carlo simulation; sensitivity analysis

挥发性有机化合物 (VOC) 在强光照、低风速、低湿度等条件下, 可以和氮氧化合物发生光化学反应, 形成光化学烟雾。目前, 该类型污染几乎成为世界各大城市的普遍大气环境问题^[1~3]。同时, VOC 也能与大气中的 $\cdot\text{OH}$ 、 NO_3^- 、 O_3 等氧化剂发生多途径反应, 形成有机酸、多官能团羰基化合物、硝基化合物等半挥发性有机物, 再通过吸附、吸收等过程进入颗粒相, 生成二次有机气溶胶^[4,5]。一些研究表明: 当前, VOC 已成为影响中国大气区域性复合型污染的重要前体物和参与物, 并对京津唐、长江三角洲、珠江三角洲等地区的区域复合大气污染起着关键作用^[3,6]。因此, 一份科学、准确、高分辨率的中国人为源 VOC 排放清单成为了区域空气质量监测数据解析、半球或区域污染物排放趋势分析、模型研究及区域控制策略制定的重要基础, 受到了国内外学

者的广泛关注。如国际岩石圈-生物圈研究计划 (IGBP-GEIA)、太平洋地区输送和化学演变研究计划 (TRACE-P)、应对北半球空气污染综合分析模型研究计划, 均采用排放因子法, 计算了中国全国和典型地区的 VOC 排放水平和特征^[7~14]。

“排放因子法”是将污染源按照经济部门、技术特征等划分为若干个基本排放单元, 为每个单元获取相应的活动水平信息和包含了控制减排效果的排放因子信息, 从而计算出污染物的排放量, 如公式 (1) 所示。

收稿日期: 2010-03-16; 修订日期: 2010-05-12

基金项目: 国家高技术研究发展计划 (863) 项目 (2006AA06A309); 国家自然科学基金重大国际合作项目 (20437010)

作者简介: 魏巍 (1981~), 女, 博士, 讲师, 主要研究方向为大气污染与控制, E-mail: weiwei@bjut.edu.cn

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

$$E_p = \sum_j \left\{ A_{p,j} \times EF_j \times \sum_y \left[\left(1 - \sum_y f_{p,j,y} \right) + f_{p,j,y} \times (1 - \eta_{j,y}) \right] \right\} \quad (1)$$

式中, E 为污染物排放量, p 为基本排放单元的时空范围, j 为基本排放部门, A 为排放部门的活动水平, EF 为排放单元 j 在未实施控制措施条件下的排放因子, y 为具体的控制技术类型, $f_{p,j,y}$ 为某时空范围 p 内控制技术 y 在 j 部门的应用率, $\eta_{j,y}$ 为控制技术 y 在 j 部门对污染物的平均去除效率.

从公式(1)可知,VOC 排放清单的构建过程实质上是对基本排放单元活动水平信息和排放因子信息的整合计算过程.而这些通过统计、测试或数学模拟获取的活动水平信息和排放因子信息,则由于统计误差、试验系统误差、试验精度误差、模型设计误差的存在,不可避免地携带着自身误差;当这些信息被用来代表某个部门的活动通量或污染物排放速率时,还存在着应用误差.最终,这些误差会随着计算过程传递给排放清单,造成排放清单的不确定性.这种不确定性若得不到正确评估,就无法识别排放清单的缺陷,从而影响到基于清单建立的污染物削减方案的有效性和可行性,降低基于清单的空气质量模拟的准确性.另一方面,通过排放清单的不确定性分析,还能有效识别对清单不确定性贡献较大的污染源,有助于在未来工作中提高这些污染源相关信息的准确性,以降低整个清单的不确定性.因此,科学评估清单结果的不确定性是建立排放清单过程中必要且非常重要的内容^[15-21].

然而,在已有的关于我国 VOC 排放清单文献中,多数研究没有分析清单的不确定性,少数研究利用误差分析法粗略地估算了清单的不确定度,而未

考虑该方法的使用限制条件(输入信息概率密度函数需为正态分布,且相对标准偏差 < 30%).为此,本研究采用更为科学的数值模拟法,分析我国人为源 VOC 的不确定性,识别对清单不确定性贡献较大的污染源.

1 方法

1.1 排放清单不确定性的评估方法

排放清单不确定性评估方法有定性评估、半定量评估和定量评估 3 种,各类评估方法及其优缺点见表 1.其中,定性分析法是通过描述性的语言来评价排放源清单的不确定性,如文献[22]使用数据质量评价方法,按 A~E 来评价排放因子和清单估算中的不确定性大小,其中 A 代表较小的不确定性,E 表示极大的不确定性,该方法的主要缺陷是依据个人的主观判断来评定级别.半定量的方法使用主观判断打分的方式来识别排放源清单的置信度,如美国环保署(US EPA)在排放源清单开发指南中介绍的数据属性评价系统,其优点是能够对排放源清单的不确定性大小提供一个快速的评价.然而,定性评价方法和半定量方法均无法定量排放清单不确定度范围^[23].因此,近年来,定量分析方法在排放清单开发中受到了越来越多的重视.本研究试图采用定量分析的方法评价我国人为源 VOC 排放清单的不确定性.

排放清单不确定性定量评估包括两部分关键工作,一是确定输入数据(即基本排放单元活动水平数据和排放因子数据)的概率密度分布函数;二是应用各种数学方法,将众多输入信息的不确定度传递演算至清单的不确定度.

表 1 3 种不确定性评估方法的描述
Table 1 Three methods for uncertainty analysis

项目	定性评估	半定量评估	定量评估
方法	主观感性评价排放清单的不确定性	可提供一个数值,以帮助确定清单各部分的置信度,通过数学操作得出明确的清单结果	获得输入数据的概率分布特征;将输入数据的不确定性递推到清单的不确定性
例子	Steiner 等 ^[20]	DARS (data attribute rating system)	TRACE-P 清单不确定性评估 ^[10]
优点	不要求大量的基础数据	可快速评估代表因子对清单的作用;可有效描述清单的不确定性	清晰描述清单的可变性估算和不确定性估算;识别清单不确定性的关键源
缺点	主观性强;不能对不确定性给出一个定量的评判	无法描述一个清单不确定性的值域范围;无法给出清单不确定性的关键源	需要大量的输入数据的概率分布表征数据

1.2 输入信息的不确定性评判系统的建立

对于一个数据不确定性的科学评估方法为:在样本库抽取随机样本,通过数值模拟获得包含了分布形式、平均值及标准方差 3 类信息的概率密度分

布函数,其不确定性以相对标准差概念表达.然而,我国 VOC 排放清单建立过程所需要的活动水平信息多源于各类统计公报数据,大多情况下仅存在一个有效数值;而排放因子信息多源于各种文献的测

试或模拟结果,有效数值样本数也非常有限.在样本信息有限的情况下,文献[24~26]假设排放清单的输入信息均呈正态分布或对数正态分布形式,定义从文献直接获取的数值为平均值,相对标准差由数据来源的可靠性、数据数值的准确性决定.

本研究采用相同的方法来确定清单活动水平信息和排放因子信息的不确定度.因部分输入数据具有很大的不确定性,为避免负值的出现,研究假设输入数据均呈对数正态分布.从 VOC 排放清单研究的文献可知,VOC 排放活动水平信息的获

取途径有 3 种:①直接源于国家、行业的分省/市/县统计公报数据;②仅有国家范围数据,利用相关技术指标分配获得分省/县/市数据;③依据其他相关统计公报数据,利用转化系数计算获得,例如表征机动车活动水平信息的行使里程,可利用机动车保有量(统计信息)和平均行使里程(转化系数)计算得到.基于此 3 种途径,本研究建立了我国 VOC 排放清单中活动水平数据质量评估系统,其不确定度(即相对标准差)数值参考 TRACE-P 清单的经验数值^[10],详见表 2.

表 2 活动水平信息不确定性等级分类
Table 2 Evaluation system for uncertainty in activity data

级别	获取方式	评判依据	不确定度/%
I	直接源于统计数据	—	± 30
II	分配系数分配统计数据 依据其他统计信息,利用转化系数估算而出	分配系数可靠度高 1. 依据的统计信息相关度高 2. 转化系数可靠度高 3. 估算结果得到了验证	± 80
III	分配系数分配统计数据 依据其他统计信息,利用转化系数估算而出	分配系数可靠度低 1. 依据的统计信息相关度高 2. 转化系数可靠度高 3. 估算结果未得到验证	± 100
IV	依据其他统计信息,利用转化系数估算而出	1. 依据的统计信息相关度高 2. 转化系数可靠度低 3. 估算结果未得到验证	± 150
V	依据其他统计信息,利用 转化系数估算而出	1. 依据的统计信息相关度低 2. 转化系数可靠度低	± 300

针对排放因子信息的不确定度,US EPA 提出了基于测试次数的不确定性等级分类.其中,采用同样测量技术,测试 10 个以上同类污染源得出的排放因子为 A 级;测试少数几个污染源得出的排放因子为 B 级;根据调查收集或用污染物排放过程相似的排放因子推导所得到的排放因子为 C~E 级.然而,我国人为源 VOC 排放因子获取途径复杂多样,包括国内外现场测试结果、我国本土法律法规排放限值、以及经验公式计算结果.因此,在评价其不确定性时,需要考虑更多的影响因素.如测试对象是否代表本土排放源的平均水平,国外发达国家的排放因子是否适合本土排放特征,法律法规的实施效果,经验公式和模型的认可度,经验公式和模型中参数代表性等.此外,即使同一类排放源也可能存在着 VOC 排放强度特征差异.例如,满足同一排放标准的某类机动车因劣化系数不同,其 VOC 排放强度也存在差异;同类型涂料因生产企业产品品质定位不同,其 VOC 含量不同;同类型有机化工生产企业因工艺技术、管理水平不同,其 VOC 泄露速率也不同.所以,

在评判排放因子的不确定性时,还需考虑排放源的行业差异.表 3 总结了通过不同途径获取的排放因子数据的不确定性评估方法,其不确定度数值参考了 TRACE-P 清单的经验数值的上限^[10].

活动水平信息和排放因子信息的概率密度函数可由公式(2)表达.

$$f(x|\mu,\sigma) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \frac{\exp\left(-\frac{(\ln x - \mu)^2}{2\sigma^2}\right)}{x} \quad (2)$$
$$\mu = \ln(\bar{x}) \quad (3)$$

式中, x 为输入信息可能的赋值; $\bar{x}$ 为排放清单计算过程中输入信息的取值; f 代表 x 的概率; μ 为输入信息的对数平均值,在此以输入信息取值的对数表达; σ 为 x 对数的标准差.

1.3 不确定性传递模型

从上述 VOC 排放清单输入信息不确定度评价中可知,绝大部分信息的不确定度超过了 30%;而传统的误差分析法要求输入信息概率密度函数为正态分布,且相对标准偏差 < 30%.因此,本研究未采

表 3 排放因子信息不确定性等级分类
Table 3 Evaluation system for uncertainty in emission factors

等级	获取方式	评判依据	不确定度/%
I	现场测试	1. 行业差异不大 2. 测试对象可代表我国该类源平均水平 3. 测试次数 > 10 次	± 50
II	现场测试	1. 行业差异不大 2. 测试对象可代表我国该类源平均水平 3. 测试次数 3 ~ 10 次	± 80
	公式计算	1. 行业差异不大 2. 经验公式得到广泛认可 3. 公式内参数准确性和代表性高	
III	现场测试	1. 行业差异大 2. 测试对象可以代表我国该类源平均水平 3. 测试次数 > 3 次	± 150
	公式计算	1. 行业差异大 2. 经验公式得到广泛认可 3. 公式参数准确性和代表性高	
IV	法规限值	法规实施效果好	± 300
	现场测试	1. 行业差异大 2. 测试对象不能代表我国该类源平均水平	
	公式计算	1. 行业差异大 2. 经验公式得到广泛认可 3. 公式内参数取自国外参考文献	
V	法规限值 未知情况	法规实施效果差 无排放因子,参考了相近活动部门的排放因子	± 500

用误差分析法计算清单不确定度.此外,考虑到上述两类输入信息的不确定性评判标准具有主观性,笔者利用 Monte Carlo 数值模拟法将输入信息的不确定度传递到清单计算结果,以获得我国人为源 VOC 排放清单的不确定性.该方法没有使用限制条件,其基本原理为在输入值的个体概率密度函数上选择随机值,计算相应的输出值;通过多次重复计算构成输出值的概率密度函数;当输出值的平均值不再变化时,结束重复计算.图 1 详细描述了其工作原理.

2 结果与分析

2.1 2005 年全国范围人为源 VOC 排放清单的不确定度

本研究中,我国人为源 VOC 排放清单的活动水平数据和排放因子数据及相应的不确定度评判结果参见文献[11,27].经模型10 000次重复计算,研究获得了 2005 年我国人为源 VOC 排放清单的概率密度分布,突破了传统的排放清单方法仅获得一个计算结果的局限性,详见图 2.

因假设输入数据呈对数正态分布形式,全国范围内 VOC 排放量计算结果亦呈对数正态分布.从图 2 可知,2005 年我国人为源 VOC 排放中值略低于其平均值,为平均值水平的 86%;相对标准差为 ±

52%,90% 置信区间的不确定度为 [- 47%, + 89%],95% 置信区间的不确定度为 [- 51%, + 133%].

在我国人为源 VOC 排放清单的构建过程中,研究划分了 7 类一级排放源,固定燃烧源、道路移动源、非道路移动源、工业过程源、化石燃料储运分配源、溶剂产品使用源和其他排放源.不同类别污染源的排放水平不确定度差异较大,分别为 ± 139%、± 101%、± 136%、± 80%、77%、82%、± 202%.

目前针对我国大气污染物排放清单的不确定性研究较少.一些研究在建立污染物排放清单时,虽然其输入信息的不确定度在很大程度上超过了 30%,但仍采用误差分析法评估其构建清单的不确定度.例如,文献[28]将 PM₁₀排放清单的输入信息不确定度划分为 5% ~ 500% 共 10 个等级,采用误差分析法评估得到其清单的 95% 置信区间为 [- 136%, + 136%];文献[10]研究者采用误差分析方法评估其针对亚洲地区建立的 SO₂ 排放清单和 CO 排放清单的不确定性,得到 2 个清单的 95% 置信区间分别为 [- 16%, + 16%]和 [- 185%, + 185%].为便于和这些研究进行对比,本研究基于同样的输入信息及其不确定度评判水平,采用误差分析方法计算了我国人为源 VOC 排放清单的不确定度,见表 4.从

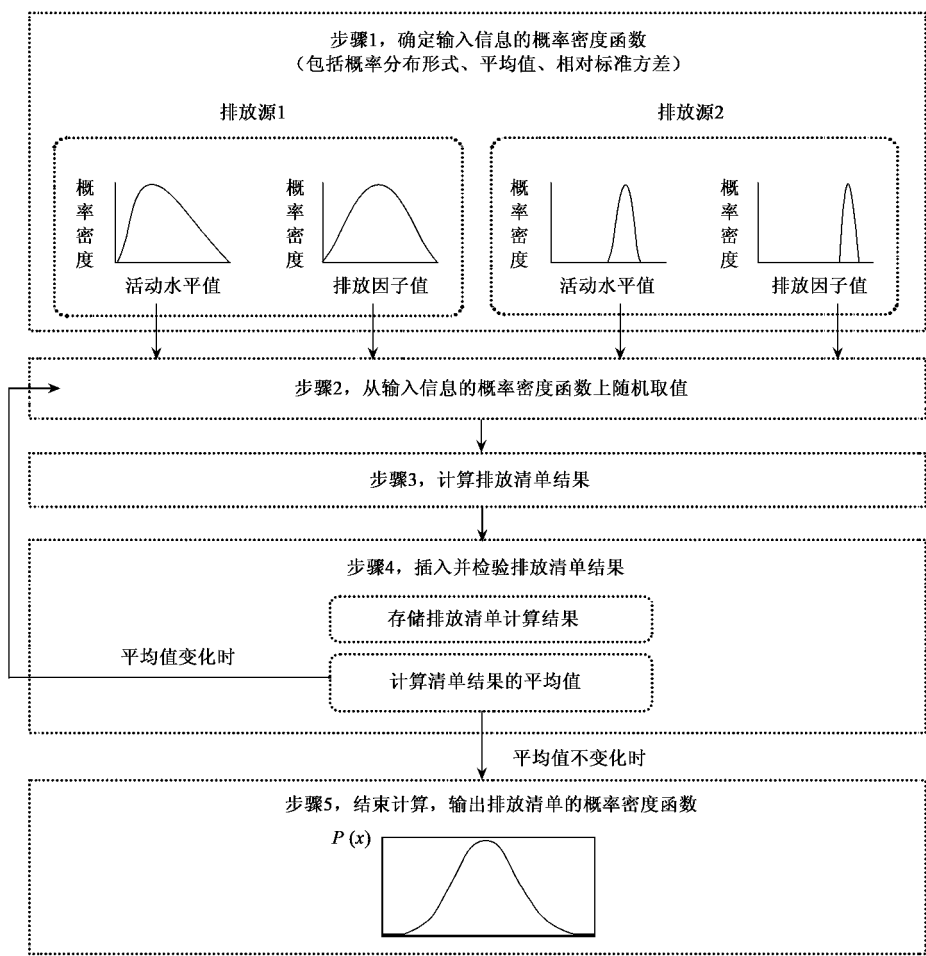


图 1 Monte Carlo 数值模拟确定排放清单不确定性工作原理

Fig. 1 Framework for propagation of uncertainty in emission inventory by using Monte Carlo method

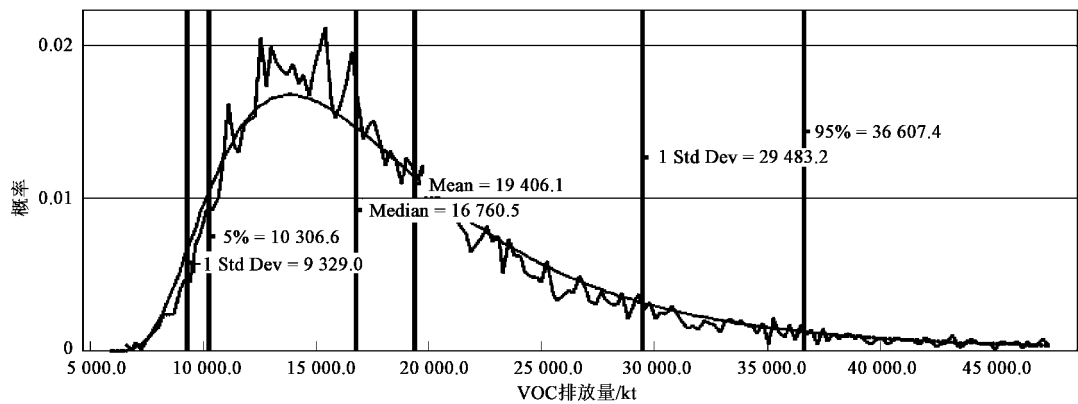


图 2 2005 年中国人为源 VOC 排放量不确定性模拟结果

Fig. 2 Simulation results of uncertainty in Chinese anthropogenic VOC emission inventory for year 2005

表 4 可知,在本研究中,误差分析法的评估结果比 Monte Carlo 方法的评估结果低 40%。

2.2 输入信息灵敏度分析

研究还利用 Monte Carlo 法计算过程所产生的

10 000 次模拟值,进一步分析输出结果对输入变量的敏感程度,并寻找到了影响清单不确定性的 20 个最为敏感的信息,如图 3 所示. 识别出的敏感输入信息集中出现在生物质燃烧、轻型汽油机动车、摩托车、机

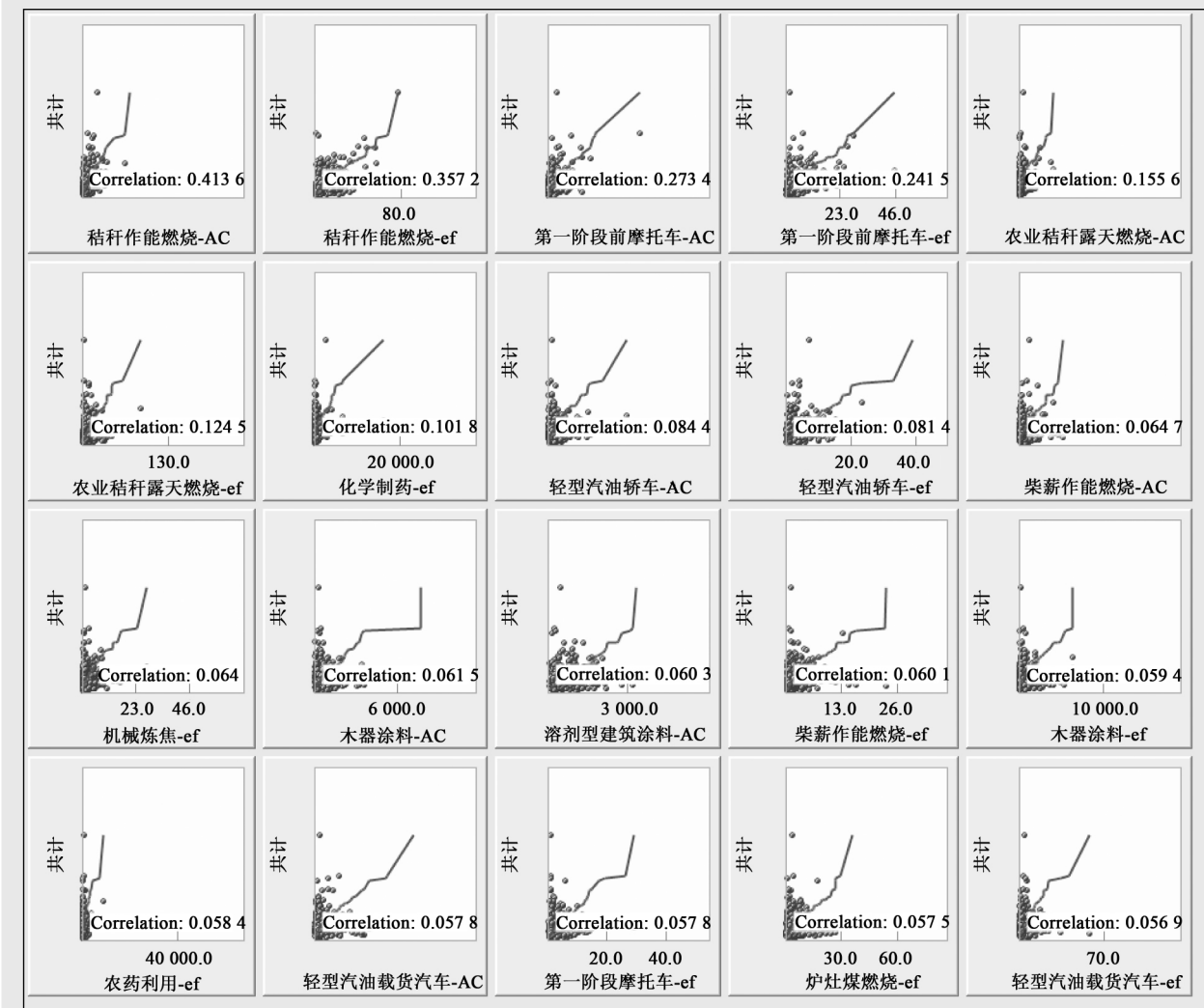
表 4 基于同样输入信息不确定度水平而获得的
排放清单不确定性

Table 4 Uncertainty in emission inventory estimated by using
two different methods of propagation

不确定度传输方法	Monte Carlo 法	误差分析法
概率分布形态	对数正态分布	正态分布
相对标准差	± 52%	± 31%
95% 置信区间	[- 51% , + 109%]	[- 61% , + 61%]

械炼焦和化学制药工业过程、及木器涂料和建筑涂料的使用等部门。图 3 中显示的相关系数为 Spearman 秩相关系数,可以度量输入信息与输出结果的相关程度,介于 -1 ~ +1 范围内,正值表示正相关,负值表示负相关。秩相关系数越高 (>0 时),输入信息不确定性对清单结果的干扰越大,灵敏度越高。

从图 3 可见,用作农村家庭能源的秸秆燃烧量及其排放因子、第一阶段前摩托车的行驶里程及其排放因子对清单不确定度的影响最大;而其余 16 个输入信息对于排放清单计算结果的秩相关系数均不显著,在 0.05 ~ 0.20 范围内。这主要是由于 VOC 的来源广泛,不仅来源于不完全燃烧行为,如机动车尾气排放、燃料燃烧等;还来源于低沸点物质的挥发散逸,如汽油挥发、溶剂挥发等。本研究中包含 150 余个基本排放单元,涉及 300 余个输入信息。因此,若期望有效降低我国人为源 VOC 排放清单的不确定性,在保证图 3 所示敏感信息准确性的同时,还须全面关注其他输入信息的可靠性。



AC: 活动水平; ef: 排放因子

图 3 影响中国人为源 VOC 排放水平的 20 个敏感信息识别结果

Fig. 3 Top 20 most sensitive inputs affecting anthropogenic VOC emissions in China

3 结论

(1) 采用 Monte Carlo 数值法计算得到 2005 年我国人为源 VOC 排放的相对标准差为 $\pm 52\%$, 90% 置信区间的不确定度为 $[-47\%, +89\%]$, 95% 置信区间的不确定度为 $[-51\%, +133\%]$. Monte Carlo 数值模拟方法计算得到的不确定度高于传统误差分析方法的计算结果.

(2) 计算了输出结果对输入变量的秩相关系数, 识别出了影响清单不确定性最为敏感的 20 个输入信息. 其中, 用作农村家庭能源的秸秆燃烧量及其排放因子、第一阶段前摩托车的行使里程及其排放因子具有最高的敏感度, 对清单不确定度的影响最大. 未来, 可通过提高这些敏感信息的准确性, 进一步降低我国人为源 VOC 排放清单的不确定性.

参考文献:

- [1] Zhang Y H, Su H, Zhong L J, *et al.* Regional ozone pollution and observation-based approach for analyzing ozone-precursor relationship during the PRIDE-PRD2004 campaign [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(25): 6203-6218.
- [2] Duncan B N, Yoshida Y, Olson J R, *et al.* Application of OMI observations to a space-based indicator of NO_x and VOC controls on surface ozone formation [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(18): 2213-2223.
- [3] Toro M V, Cremades L, Calbo J. Relationship between VOC and NO_x emissions and chemical production of tropospheric ozone in the Aburra Valley [J]. *Chemosphere*, 2006, **65**(5): 881-888.
- [4] Wipawee D, Alexandra E, Yosuke K, *et al.* Secondary organic aerosol formation from aromatic precursors [J]. *Environmental Science and Technology*, 2003, **37**(16): 3662-3670.
- [5] Cocker D R, Clegg S L, Flagan R C, *et al.* The effect of water on gas-particle partitioning of secondary organic aerosol: II. *m*-xylene and 1,3,5-trimethylbenzene photo oxidation systems [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(35): 6073-6085.
- [6] Geng F, Tie X X, Xu J M, *et al.* Characterizations of ozone, NO_x and VOCs measured in Shanghai, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(29): 6873-6883.
- [7] GEIA. Total NMVOC summary table [EB/OL]. 2004-08-23. http://www.mnp.nl/geia/data/NMVOC_Groups/.
- [8] Tonooka Y, Kannari A, Higashino H, *et al.* NMVOCs and CO emission inventory in East Asia [J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 2001, **130**(1): 1199-1204.
- [9] Klimont Z, Streets D G, Gupta S, *et al.* Anthropogenic emissions of non-methane volatile organic compounds in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(8): 1309-1322.
- [10] Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, *et al.* An inventory of gaseous and primary aerosol emission in Asia in the year 2000 [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2003, **108**(23): 8809.
- [11] Wei W, Wang S X, Chatani S, *et al.* Emission and speciation of non-methane volatile organic compounds from anthropogenic sources in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(20): 4976-4988.
- [12] 刘金凤, 赵静, 李滔滔, 等. 我国人为源挥发性有机物排放清单的建立 [J]. *中国环境科学*, 2008, **28**(6): 496-500.
- [13] Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, *et al.* Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(14): 5131-5153.
- [14] Bo Y, Cai H, Xie S D. Spatial and temporal variation of historical anthropogenic NMVOCs emission inventories in China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, **8**(23): 7297-7316.
- [15] Brown L, Brown S A, Jarvis S C, *et al.* An inventory of nitrous oxide emissions from agriculture in the UK using the IPCC methodology: emission estimate, uncertainty and sensitivity analysis [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(8): 1439-1449.
- [16] Winiwarter W, Rypdal K. Assessing the uncertainty associated with national greenhouse gas emission inventories: a case study for Australia [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(32): 5425-5440.
- [17] NARSTO. Improving emission inventories for effective air quality management across North America [R]. Washington Pasco: NARSTO, 2005. 221-242.
- [18] 钟流举, 郑君瑜, 雷国强, 等. 大气污染物排放源清单不确定性定量分析方法及案例研究 [J]. *环境科学研究*, 2007, **20**(4): 15-20.
- [19] Beusen A H W, Bouwman A F, Heuberger P S C, *et al.* Bottom-up uncertainty estimates of global ammonia emissions from global agricultural production systems [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(24): 6067-6077.
- [20] Zheng J Y, Zhang L J, Che W W, *et al.* A highly resolved temporal and spatial air pollutant emission inventory for the Pearl River Delta region, China and its uncertainty assessment [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(32): 5112-5122.
- [21] Lumberras J, Garcia-Martos C, Mira J, *et al.* Computation of uncertainty for atmospheric emission projections from key pollutant sources in Spain [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(8): 1557-1564.
- [22] Steiner C K R, Gardner L, Causley M C, *et al.* Inventory quality issues associated with the development of an emissions inventory for the minerals management service gulf of Mexico air quality study [A]. In: *Proceedings of an International Specialty Conference VIP-38* [C]. Pittsburgh, 1994. 35-42.
- [23] U.S. Environmental Protection Agency. Emission Inventory Improvement Program EIIP-Phase 2: Future directions for the millennium [R]. Research Triangle Park, NC: USEPA, 1999.
- [24] El-Fadel M, Zeinati M, Ghaddar N, *et al.* Uncertainty in estimating and mitigating industrial related GHG emissions [J]. *Energy Policy*, 2001, **29**(12): 1031-1043.
- [25] Frey H C, Li S. Quantification of variability and uncertainty in AP-42 emission factors: case studies for natural gas-fueled

-
- engines [J]. Journal of the Air and Waste Management Association, 2003 , **53** (12) : 1436-1447.
- [26] Frey H C , Zhao Y. Quantification of variability and uncertainty for air toxic emission inventory with censored emission factor data [J]. Environmental Science and Technology, 2004 , **38** (22) : 6094-6100.
- [27] 魏巍. 中国人为源挥发性有机化合物的排放现状及未来趋势 [D]. 北京: 清华大学, 2009.
- [28] 雷宇. 中国人为源颗粒物及关键化学组分的排放与控制研究 [D]. 北京: 清华大学, 2008.