

李阳,徐晓斌,林伟立,等. 基于观测的污染气体区域排放特征. 应用气象学报,2012,23(1):10-19.

## 基于观测的污染气体区域排放特征

李 阳<sup>1)</sup> 徐晓斌<sup>1)\*</sup> 林伟立<sup>2)</sup> 赵花荣<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>(中国气象科学研究院,北京 100081)

<sup>2)</sup>(中国气象局气象探测中心 中国气象局大气成分观测与服务中心,北京 100081)

### 摘 要

利用 2006 年 9 月—2007 年 8 月河北省固城生态与农业气象试验基地(固城站)反应性气体观测数据获得了 CO 与 NO<sub>x</sub>, CO 与 SO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比的变化特征,并将观测得到的体积分数比与从 INTEX-B 等排放源资料得到的排放比进行比较研究。当风向来自北方向(北京)时,固城站的 CO 和 NO<sub>x</sub> 体积分数显著高于其他方向,而来自南方向(保定、石家庄)时,SO<sub>2</sub> 体积分数显著高于其他方向。固城站观测到的 CO 与 SO<sub>2</sub>, CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比分别为 43.7 和 31.6,较排放比高出 2~12 倍。分析表明:排放源清单对 CO 排放低估了大约 2 倍以上,生物质燃料燃烧,尤其是收获季节大规模秸秆燃烧排放可能是重要的且被低估了的源。从观测数据估计得到秸秆燃烧期比平时 CO 大约多排放了 90%±30%,忽略秸秆燃烧期额外排放对 CO 排放强度估计有重要影响。未来排放源清单编制和使用需要更加关注我国农业区秸秆燃烧排放对排放强度的影响。

**关键词:** SO<sub>2</sub>; NO<sub>x</sub>; CO; 排放比; 固城站

### 引 言

在过去的 30 年,我国经济保持快速增长,能源的消耗和污染物的排放也越来越多<sup>[1]</sup>。我国的空气污染程度高、范围广,2002 年在 343 个有观测的城市中大约 1/3 的空气污染程度超过了国家二级标准<sup>[2]</sup>。突出的大气污染问题引起了公众的普遍关注和各级政府的高度重视。二氧化硫(SO<sub>2</sub>)、氮氧化物(NO<sub>x</sub>)和一氧化碳(CO)等是大气中主要的气态污染物,与气候、生态环境和人类健康密切相关,是我国首要气态污染物,同时也是 WMO/GAW 推荐的优先观测的反应性气体<sup>[3]</sup>。

大气污染物排放源清单是对某一地区一种或几种污染物的各种排放源排放量的估算结果,它对于政策制定和科学研究都具有重要价值。排放源调查者通常基于源排放系数调查及统计资料来估算排放

源,即所谓自下而上(bottom-up)方法,这种方法不可避免地存在监测误差、随机误差、统计误差、关键数据缺乏以及数据代表性不足等不确定因素<sup>[4-6]</sup>。如果这些不确定因素不能被正确识别、量化和纠正,将有可能导致对排放趋势、排放源分配、重要不确定性源的识别以及污染源与空气质量关系等产生错误认识,甚至可能因此而制定错误的空气污染控制策略<sup>[7]</sup>。

虽然目前排放源资料的不确定性较大,但是许多污染物浓度观测的可靠性已有了较好的保证。基于观测数据对排放源资料进行验证、评价和校验是污染物浓度观测在排放源方面的主要应用方式之一。目前涉及观测资料与排放源清单的比较通常采用两种办法:一种是用模式方法研究污染物与排放源的关系<sup>[8-11]</sup>,这种方法量化了传输中气象和化学反应等因素的影响,但当得到的结果与观测数据有较大差别时,难以确定具体误差原因;另一种是利用

2011-04-08 收到,2011-10-08 收到再改稿。

资助项目:国家自然科学基金项目(40775074),公益性行业(气象)科研专项(GYHY200706005),中国气象科学研究院基本科研业务费(2008Z011,2011Z003)

\* 通信作者, E-mail: xuxb@cams.cma.gov.cn

排放源清单和观测数据,基于一定假设,通过简单的浓度比与排放比的对比分析,建立观测数据与排放源之间半定量的分析检验关系<sup>[12-14]</sup>。本文利用在河北省固城站获取的 1 年观测数据计算污染气体体积分数比,并与从不同排放源清单获得的排放比进行比较分析,研究所关注区域的污染物排放特征及排放源资料中可能存在的问题。

## 1 数据与方法

### 1.1 观测数据

污染气体数据来自 2006 年 9 月 1 日—2007 年 8 月 31 日在河北省固城生态与农业气象试验基地(以下简称固城站)进行的观测。固城站(39°08′N, 115°40′E, 海拔 15.2 m)位于华北平原北部的河北省定兴县固城镇境内,其东北、西南和东面分别有北京、保定和天津等大中城市。其中,距离北京市区约 110 km,距离保定市区约 35 km,距离天津市区约 130 km。有关该站的详细信息和观测资料方面可参见文献<sup>[15-16]</sup>。

### 1.2 排放源数据

本工作中涉及的 4 种排放源清单格点化 CO, NO<sub>x</sub> 和 SO<sub>2</sub> 数据,分别来自 INTEX-B, REAS(A-sia), TRACE-P 和 华北区域排放清单(以下简称为 HB)。INTEX-B 清单数据来自网站 [www.cgrrer.uiowa.edu/EMISSION\\_DATA\\_new/data/intex-b\\_](http://www.cgrrer.uiowa.edu/EMISSION_DATA_new/data/intex-b_)

emissions,其详细情况参见文献<sup>[17]</sup>。REAS(A-sia)清单数据来自网站 [www.geiacenter.org](http://www.geiacenter.org),清单的详细情况参见文献<sup>[5]</sup>。TRACE-P 清单数据是 Streets 等基于以往清单并利用 TRACE-P 项目成果编制的,数据可从网站下载([www.cgrrer.uiowa.edu/EMISSION\\_DATA/index.htm](http://www.cgrrer.uiowa.edu/EMISSION_DATA/index.htm))。HB 排放清单由中国气象科学研究院马建中研究小组基于县级统计资料编制的高分辨率排放清单,其详细情况参见文献<sup>[6]</sup>。表 1 列出了各排放源清单的基本信息。

表 1 排放源数据基本信息

Table 1 Basic information about the emission inventories

名称	研究区域	基准年份	分辨率
INTEX-B	东亚	2006	0.5°×0.5°
REAS	东亚	2006	0.5°×0.5°
HB	华北	2003	0.1°×0.1°
TRACE-P	东亚	2000	1.0°×1.0°

通过提取研究地点所在的格点排放数据,计算 CO 与 NO<sub>x</sub> 及 CO 与 SO<sub>2</sub> 排放比,用来代表该格点的平均排放特征。如固城站的经纬度坐标为 39°08′N, 115°40′E,在 INTEX-B 和 REAS 中对应格点的坐标范围均为 38.75°~39.25°N 和 115.25°~115.75°E,在 TRACE-P 中为 39°~40°N 和 115°~116°E。为了方便统一比较,HB 排放源也取了包含固城站的 0.5°×0.5°区域,其坐标范围为 38.75°~39.25°N 和 115.25°~115.75°E。图 1 显示了基于 REAS 的华北 CO, NO<sub>x</sub> 和 SO<sub>2</sub> 年排放量分布图。

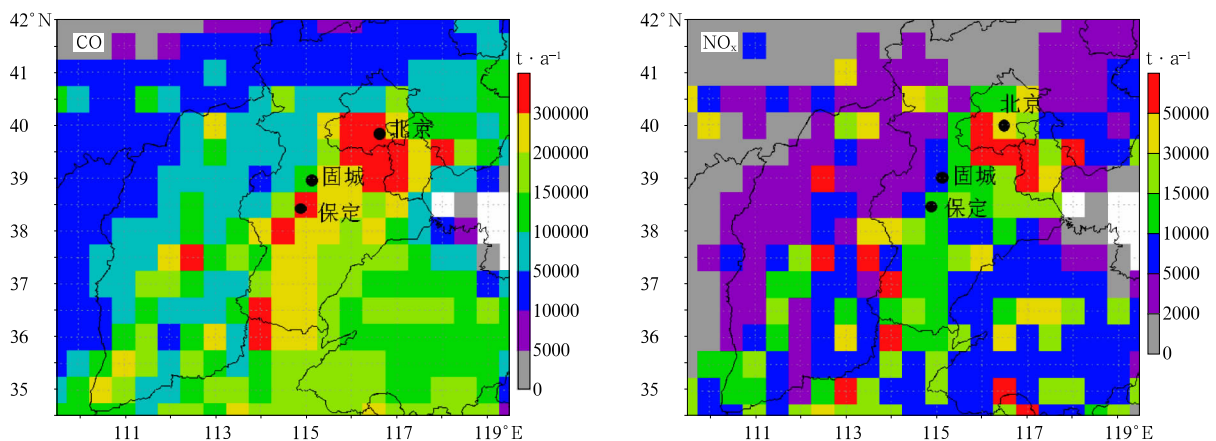
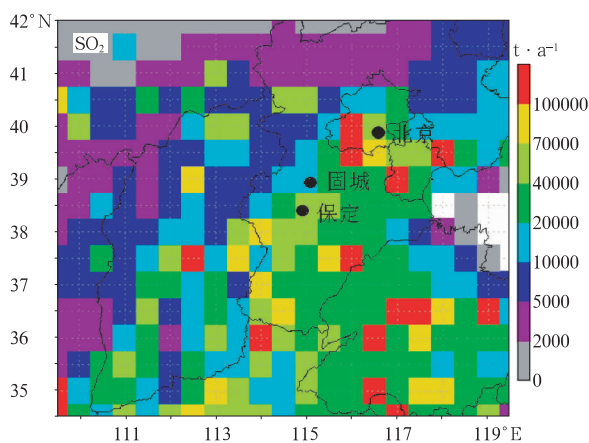


图 1 基于 REAS 的华北 CO, NO<sub>x</sub> 和 SO<sub>2</sub> 年排放量分布图

Fig. 1 REAS emission strengths of CO, NO<sub>x</sub> and SO<sub>2</sub> in North China



续图 1

### 1.3 研究方法

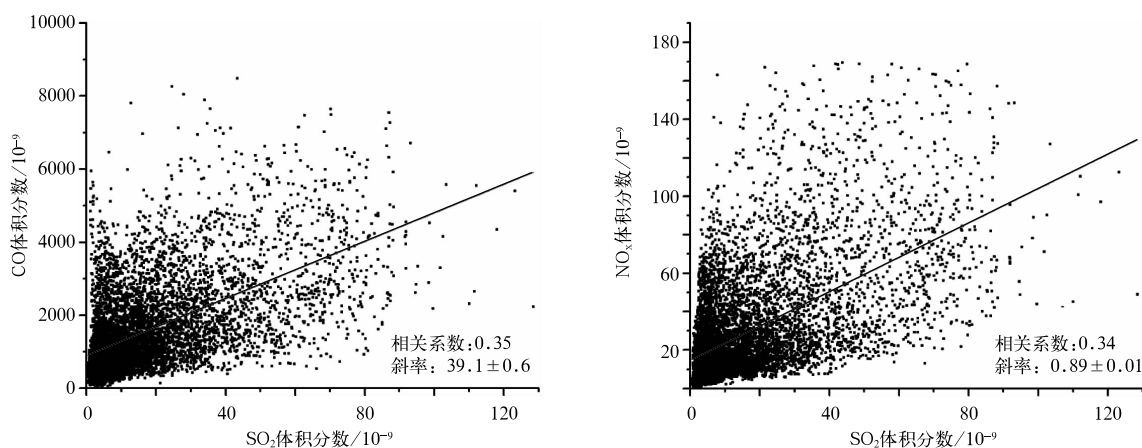
首先对固城站观测到的污染物体积分数的时间变化特征及与地面风的关系进行表征,然后分析不同污染物体积分数比之间的相关性,并基于相关性获得体积分数比的变化特征,再将基于观测的体积分数比与基于排放源估算的排放比进行比较。污染物体积分数不仅与排放量大小有关,还受到扩散、输送、转化等因素的影响。但在一定的假设前提下,即污染物排放后,化学反应、干湿沉降作用不是特别显著,或者对不同污染物的影响程度比较接近,一个区域不同污染物的体积分数比应该能较好地反映该区域的实际排放比。基于这种认识,本文利用观测得到的CO、NO<sub>x</sub>和SO<sub>2</sub>数据取得体积分数比与排放源清单计算得到的排放比进行对比,以期揭示排放源清单在所研究区域可能存在的问题。

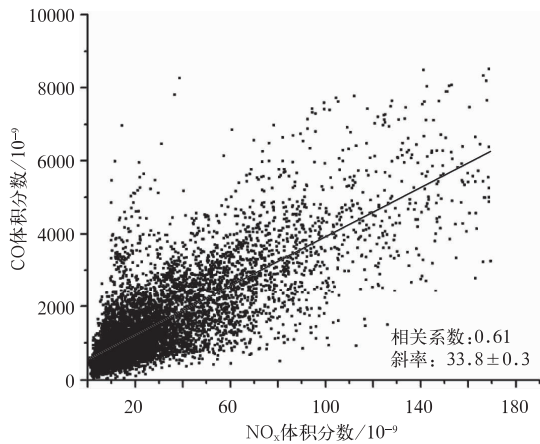
## 2 结果与讨论

### 2.1 一次污染物体积分数间的相关性

Lin等<sup>[15]</sup>和刘希文<sup>[16]</sup>对固城的污染物体积分数变化特征进行了详细的分析。从季节特征来看,一次污染物CO、NO<sub>x</sub>和SO<sub>2</sub>的季节变化特征相似,最大值出现在冬季,最小值出现在夏季。其中,6月表现出明显的受生物质燃烧影响的特征。从平均日变化来看,CO和NO<sub>x</sub>的日变化曲线特征比较一致,但与SO<sub>2</sub>和O<sub>3</sub>的日变化曲线显著不同;SO<sub>2</sub>和O<sub>3</sub>的日变化曲线类似,但前者的峰值出现在正午前后,后者的峰值出现在15:00(北京时,下同)左右。

图2是固城CO、NO<sub>x</sub>和SO<sub>2</sub>小时平均值体积分数的散点图和相关关系。SO<sub>2</sub>与CO、SO<sub>2</sub>与NO<sub>x</sub>之间的散点图线性关系较差,相关系数分别为0.35和0.34,而CO和NO<sub>x</sub>则线性关系较好,相关系数为0.61,均通过0.01显著性检验。为了进一步检验CO和NO<sub>x</sub>的同源性,将数据分成两组,一组是较高的SO<sub>2</sub>与NO<sub>x</sub>体积分数比( $\geq 1$ ),大致代表主要受煤炭燃烧排放影响的情况,另一组是较低的SO<sub>2</sub>与NO<sub>x</sub>体积分数比( $< 1$ ),大致代表主要受机动车排放影响的情况。对每组数据分别计算CO和NO<sub>x</sub>的相关性。结果表明:这两组数据所得的斜率差异不大,较高和较低SO<sub>2</sub>与NO<sub>x</sub>体积分数比数据组对应的CO与NO<sub>x</sub>体积分数比的斜率分别是44.5和38.2。这一结果显示,CO和NO<sub>x</sub>基本来自相同源,并且这类源的SO<sub>2</sub>排放不显著。

图2 固城站CO、SO<sub>2</sub>和NO<sub>x</sub>关系图Fig. 2 Correlations among CO, SO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub> at Gucheng Station



续图 2

### 2.2 体积分数比的季节变化特征

表 2 列出了对不同季节白天、夜晚及全天 CO, SO<sub>2</sub> 和 NO<sub>x</sub> 日平均数据分别进行线性回归分析的结果,包括斜率、截距和相关系数。基于日均值数据取得的 CO 与 NO<sub>x</sub>, CO 与 SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比的季节变化并不大,4 个季节的平均值分别为 38.5 ± 4.3, 44.7 ± 19.7, 0.44 ± 0.15。冬季 CO 与 NO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub> 与 SO<sub>2</sub>, CO 与 SO<sub>2</sub> 的相关性好于其他 3 个季节。冬季温度低,光照弱,光化学反应弱,污染物体积分数主要受排放和大气混合作用的影响,如果污染物来自相同或相近的源,则在大气稀释之后,它们的相关性也会很好。夏季,光化学反应强,

导致不同物质在输送过程中消耗量不一样,这可削弱一次污染物间的相关性。白天 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数拟合的斜率总大于夜晚,这是因为白天光化学反应导致更多的 NO<sub>x</sub> 转化成 HNO<sub>3</sub> 等二次污染物,而 CO 的光化学消耗要慢得多。夏季白天与夜晚 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数拟合的斜率差异最大(分别为 60.7 和 9.0),而冬季最小(分别为 44.8 和 39.9)。冬天温度低,光照弱,光化学反应弱,白天和夜晚 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数拟合斜率的差异较小。SO<sub>2</sub> 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比具有和 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比类似的特点。固城站全年的 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比(38)较以前在其他一些地区得到的结果高,如美国 Denver-Boulder 地区得到 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比大约为 10<sup>[18]</sup>,香港得到 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比大约为 3<sup>[19]</sup>。这说明,固城站的排放特征与上述城市地区非常不同。由表 3 可见,固城交通源排放 CO 和 NO<sub>x</sub> 较多,分别占到 CO, NO<sub>x</sub> 总排放量的 44% 和 51%,电厂排放 SO<sub>2</sub> 较多,占 SO<sub>2</sub> 总排放量的 73%。北京交通源排放 CO 和 NO<sub>x</sub> 占总排放量的比例较固城大,分别占到 CO, NO<sub>x</sub> 总排放量的 60% 和 53%,电厂排放的 SO<sub>2</sub> 占总排放量的比例较固城小,占 SO<sub>2</sub> 总排放量的 31%。基于表 3 数据得出的固城和北京的 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比分别为 12.0 和 9.5。可见,上述主要基于化石燃料燃烧排放的数据不足以解释固城站这样的农村站点与城市站点的 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比差异。

表 2 不同季节 CO, NO<sub>x</sub> 和 SO<sub>2</sub> 体积分数线性回归结果

Table 2 Results of linear regression among CO, NO<sub>x</sub> and SO<sub>2</sub> for different periods

季节	时段	CO 与 NO <sub>x</sub>			CO 与 SO <sub>2</sub>			SO <sub>2</sub> 与 NO <sub>x</sub>		
		斜率	截距/10 <sup>-9</sup>	相关系数	斜率	截距/10 <sup>-9</sup>	相关系数	斜率	截距/10 <sup>-9</sup>	相关系数
春季	全天	40.5	419	0.63	34.5	700	0.44	0.66	0.9	0.74
	白天	56.2	319	0.71	30.6	647	0.44	0.87	2.1	0.75
	夜晚	28.0	589	0.49	25.9	917	0.31	0.48	0.8	0.70
夏季	全天	32.4	592	0.24	59.6	593	0.43	0.40	2.3	0.41
	白天	60.7	226	0.50	28.0	618	0.60	1.42	-5.8	0.60
	夜晚	9.0	772	0.24	45.1	696	0.45	0.11	3.4	0.29
秋季	全天	38.6	162	0.75	22.9	1144	0.27	0.30	4.3	0.50
	白天	43.6	217	0.76	36.2	791	0.48	0.41	6.0	0.54
	夜晚	29.5	497	0.66	31.2	1436	0.30	0.20	2.5	0.45
冬季	全天	42.3	129	0.89	61.8	148	0.76	0.41	16.1	0.70
	白天	44.8	28	0.89	54.5	-102	0.79	0.56	15.4	0.77
	夜晚	39.9	246	0.86	58.0	727	0.72	0.38	13.3	0.66
全年	全天	38.4	326	0.82	49.9	599	0.73	0.54	1.5	0.81
	白天	39.4	446	0.82	42.0	560	0.72	0.68	3.8	0.82
	夜晚	36.1	388	0.82	53.3	869	0.72	0.46	-0.8	0.76

注:春、夏、秋、冬季节划分分别为 3—5 月、6—8 月、9—11 月和 12 月一次年 2 月;白天时段为 08:00—19:59,夜晚时段为 20:00—次日 07:59。

表3 基于INTEX-B的固城和北京CO、NO<sub>x</sub>和SO<sub>2</sub>排放量(单位:10<sup>3</sup>t·a<sup>-1</sup>/网格)

地点	工业			居民			交通			电厂		
	CO	NO <sub>x</sub>	SO <sub>2</sub>	CO	NO <sub>x</sub>	SO <sub>2</sub>	CO	NO <sub>x</sub>	SO <sub>2</sub>	CO	NO <sub>x</sub>	SO <sub>2</sub>
固城	13.6	0.7	0.3	14.4	0.2	0.4	22.7	2.2	0.1	0.3	1.1	2.3
北京	103.5	6.2	4.8	58.6	2.7	5.7	247.9	23.0	0.9	2.6	11.4	13.6

### 2.3 体积分数及体积分数比与风向的关系

风既能输送污染物,又能使污染物与空气混合,降低其体积分数,因而风对大气污染物体积分数的

变化起很大作用,是大气污染研究中的重要影响因素。图3是固城污染物体积分数及体积分数比的风向玫瑰图。从北和北偏西来的风对应的CO、NO<sub>x</sub>

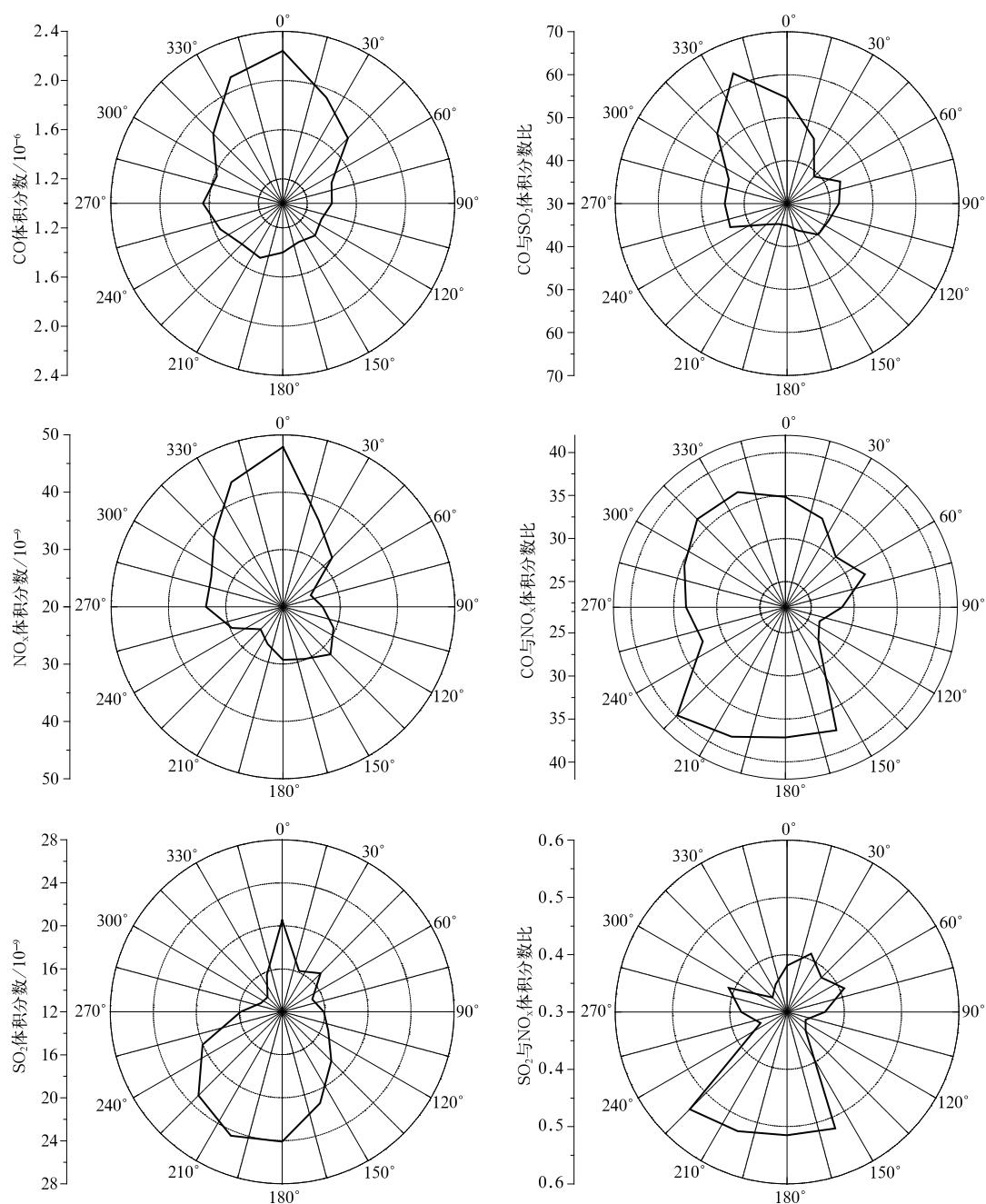


图3 固城站污染物体积分数和体积分数比的风向玫瑰图

Fig. 3 Windroses of pollutant concentrations and their ratios at Gucheng Station

体积分数,CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比相对高而 SO<sub>2</sub> 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比相对低,北京城区刚好在固城的东北方,受城市机动车排放影响的空气含有相对多的 CO 和 NO<sub>x</sub> 和相对少的 SO<sub>2</sub>。南和西南方向 SO<sub>2</sub> 体积分数,SO<sub>2</sub> 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比相对高而 CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比相对低,固城的西南方最近的污染区是保定市(距固城大约 35 km,人口大约 105 万),保定郊区有火电厂,其排放的高体积分数比的 SO<sub>2</sub> 的输送可能是偏南风条件下固城低 CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比和高 SO<sub>2</sub>,SO<sub>2</sub> 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比的原因。SO<sub>2</sub> 体积分数随风向的分布与 CO 及 NO<sub>x</sub> 的完全不同,说明 CO 和 NO<sub>x</sub> 很可能来自同一排放源,而与 SO<sub>2</sub> 同源性较差。CO 和 NO<sub>x</sub> 小时平均体积分数的相关系数为 0.61,而 SO<sub>2</sub> 与 CO 和 NO<sub>x</sub> 的小时平均体积分数的相关系数分别为 0.35 和 0.34。南风方向 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比最大,其次是西北风方向,但二者差异较小。固城站位于华北平原的农业区,其周围主要是农田以及相对均匀分布的村镇。在这样的地区,秸秆等生物质是燃烧的重要原料。高 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比可能与当地农村日常生活的生物质燃烧有很大关系,而这种燃烧源在各个方向的分布差异相对较小。固城站地面主导风向是西南风和东北风<sup>[15-16]</sup>,保定和北京城区刚好处于其主导风向的上、下风向,一次污染物随风向的变化特征可能正体现了两类不同气团来源的污染特征。

#### 2.4 观测体积分数比与排放比的比较

不同排放源有不同的排放特征,例如电厂锅炉火焰温度高,空气供应充足,可释放相对较多的 NO<sub>x</sub> 和较少的 CO,而农村家庭用的小炉灶火焰温度低,空气供应不很充足,可释放相对较多的 CO 和较少的 NO<sub>x</sub>。一般而言,早上空气混合不好,观测数据更多反映本地源的排放特征,下午混合较好,观测数据更能反应区域排放。为了获得能更好地代表站点所在区域的污染物均匀混合后的体积分数特征,这里均采用下午观测数据取得的体积分数比,以便与排放源得到的平均排放比值进行比较(详细讨论见 2.6 节)。

由 2.3 节的讨论可知,固城站除了受本地排放影响外,还主要受东北和西南方向输送的影响。由表 4 可以看到,固城站观测到的 CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分

数比(43.7)为排放源得到的相应格点 CO 与 SO<sub>2</sub> 排放比(最大值为 16.4,最小值为 6.4)的 3~7 倍,北和东北方向 CO 与 SO<sub>2</sub> 排放比(最大值为 12.6,最小值为 3.7)的 4~12 倍,南和西南方向 CO 与 SO<sub>2</sub> 排放比(最大值为 14.3,最小值为 3.5)的 3~13 倍,北京所在格点 CO 与 SO<sub>2</sub> 排放比(最大值为 16.5,最小值为 3.5)的 3~13 倍,保定所在格点 CO 与 SO<sub>2</sub> 排放比(最大值为 14.5,最小值为 3.7)的 3~12 倍。观测体积分数比和排放源排放比之间存在明显差异说明排放源或高估了 SO<sub>2</sub>,或低估了 CO,或两种情况都出现。SO<sub>2</sub> 排放数据通常被认为比 CO 更准确<sup>[12-13]</sup>,因此,较大可能是排放源清单对 CO 排放大约低估了 2 倍以上。同样,固城站观测到的 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比(31.6)为排放源得到固城所在格点 CO 与 NO<sub>x</sub> 排放比(最大值为 19.4,最小值为 12.0)的 2~3 倍,北和东北方向 CO 与 NO<sub>x</sub> 排放比(最大值为 12.6,最小值为 5.7)的 3~6 倍,南和西南方向 CO 与 SO<sub>2</sub> 排放比(最大值为 14.9,最小值为 8.0)的 2~4 倍,北京所在格点 CO 与 NO<sub>x</sub> 排放比(最大值为 11.9,最小值为 6.8)的 3~5 倍,保定所在格点的 CO 与 NO<sub>x</sub> 排放比(最大值为 19.1,最小值为 10.5)的 2~3 倍。固城站处于农村地区,周围居民日常生活的燃料很大一部分是秸秆等生物质燃料。在排放源调查中,生物质燃烧的排放量有很大的不确定度。例如,我国居民生物质燃烧 NO<sub>x</sub> 排放量的不确定度大约为 ±164%<sup>[20]</sup>,我国居民生物质燃烧和露天生物燃烧 CO 排放量的不确定度分别达到 ±164% 和 ±258%<sup>[4]</sup>。固城站所在区域在 5—6 月及 10 月常有大规模的露天秸秆燃烧。当北京地区空气受华北农业区秸秆燃烧排放影响时,观测到的 CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比高达 200 甚至 300 以上<sup>[21]</sup>,而在长三角地区,露天秸秆燃烧烟羽中的 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比超过 100<sup>[12]</sup>。高 CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比和 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比是秸秆燃烧的重要特征。我国区域较早的排放源调查包含做饭、取暖相关的生物质燃烧排放,但是不包含露天生物质燃烧排放,如收割季节的大规模的秸秆燃烧<sup>[12]</sup>。现在人们虽然认识到了露天燃烧(尤其在农村)的重要性,排放源调查加入了露天燃烧的贡献,但排放量估算有很大的不确定度<sup>[4]</sup>。

表 4 固城站周围不同区域排放源的排放比

Table 4 Emission ratio derived from the emission inventories in different areas around Gucheng Station

格点区域	INTEX-B		REAS		TRACE-P*		HB	
	CO 与 SO <sub>2</sub>	CO 与 NO <sub>x</sub>	CO 与 SO <sub>2</sub>	CO 与 NO <sub>x</sub>	CO 与 SO <sub>2</sub>	CO 与 NO <sub>x</sub>	CO 与 SO <sub>2</sub>	CO 与 NO <sub>x</sub>
固城站北和东北方向(38.75°~41.25°N,115.25°~117.25°E)	10.1	8.7	3.7	5.7	5.8	10.2	12.6	11.4
固城站南和西南方向(37.25°~38.75°N,113.75°~115.25°E)	5.2	11.3	5.3	14.9	3.5	8.0	14.3	9.1
北京(39.75°~40.25°N,115.75°~116.25°E)	16.5	9.5	6.5	11.9	3.5	6.8	13.6	9.7
保定(38.25°~38.75°N,115.25°~115.75°E)	7.4	13.1	3.7	12.0	4.7	10.5	14.5	19.1
固城站(38.75°~39.25°N,115.25°~115.75°E)	16.4	12.0	6.4	19.4	9.4	15.6	7.5	16.1

注: \* TRACE-P 中固城站北和东北方向的区域范围为 38°~41°N,115°~117°E;固城站南和西南方向的区域范围为 37°~39°N,113°~115°E;北京的区域范围为 39°~40°N,116°~117°E;保定的区域范围为 38°~39°N,115°~116°E;固城站的区域范围为 39°~40°N,115°~116°E。

2.5 大规模秸秆燃烧排放 CO 与排放源比较

由 2.3 节分析可知,秸秆燃烧排放的 CO 可能被排放源调查严重低估。这里进行简单、快速的检验。露天秸秆燃烧主要发生在 4—10 月,尤其是 5,6,10 月最为严重<sup>[22-23]</sup>,将这 3 个月定义为秸秆燃烧

期,将 4,7,8,9 月定义为平常时期。图 4 是不同温度、湿度、风速和 UVB 辐射值区间下秸秆燃烧期与平常时期 CO 体积分数及两种情况下的 CO 体积分数比值。秸秆燃烧期的 CO 体积分数明显高于平常时期的 CO 体积分数,两者比值在 1.4~3.2 之间,

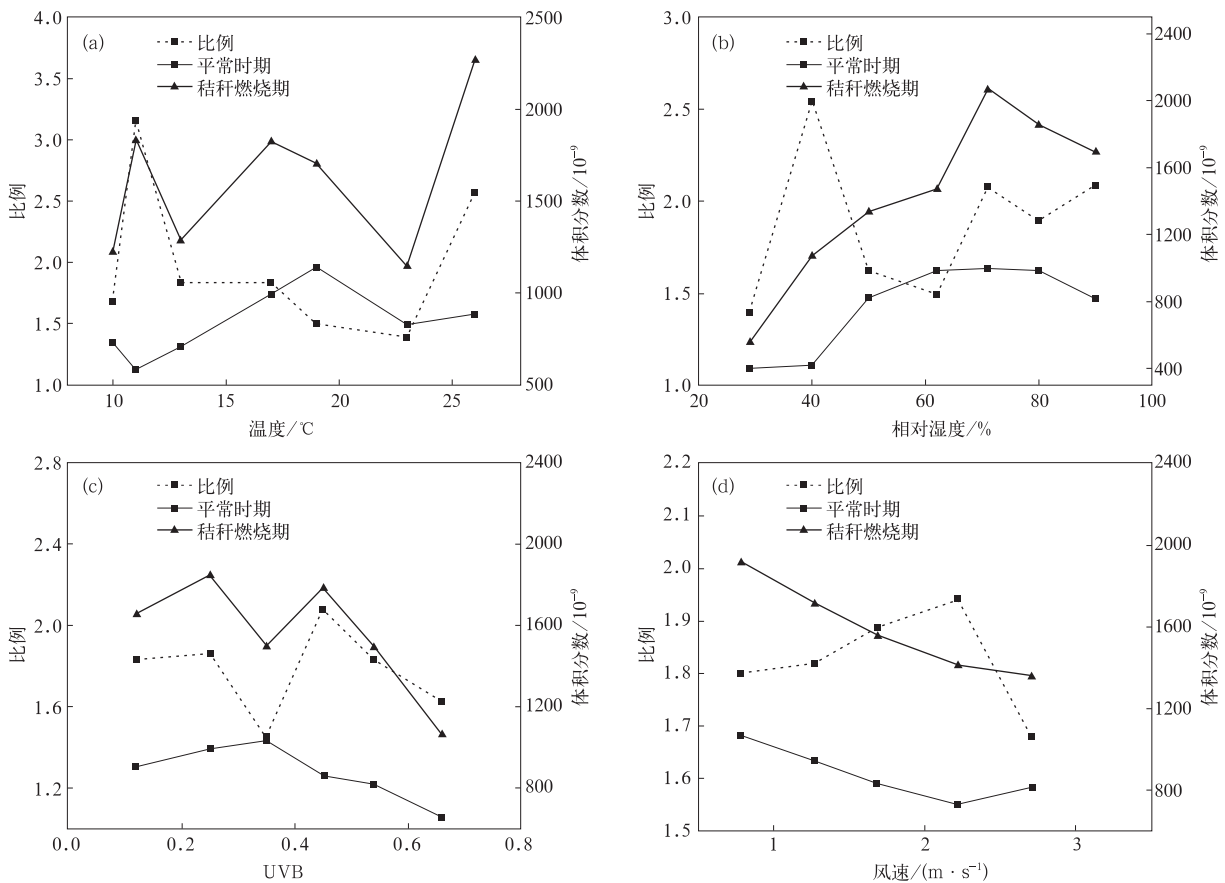


图 4 秸秆燃烧期和平常时期固城站观测的 CO 体积分数及两者比值随气象条件的变化

Fig. 4 Average CO concentrations observed during the open biomass burning period and the normal period under different meteorological conditions and their ratios at Gucheng Station

平均为 1.9, 相对标准差为 30%。两个时期平均的体积分数比代表秸秆燃烧排放引起的 CO 体积分数的相对增长, 可见, 估算 CO 秸秆燃烧时期比平日多排放了 90% ( $\pm 30\%$ )。由于一些排放源清单或者不考虑露天秸秆燃烧, 或者在估算中存在很大误差, 因此, 秸秆燃烧期 CO 的排放量可能被低估。如果居民生活方面的排放也被低估, 出现上述 1 倍以上的差值是完全有可能的。当然, 这一判断还需要从不同角度来检验, 此外, 也需要对其他地区的估算进行验证(详见文献[24])。

## 2.6 排放源及观测数据的影响因素

污染物从排放源排放到大气中, 在传输过程中其大气浓度受到物理和化学过程的影响。如果污染物来自相同或相近地方的源, 则在大气稀释之后, 它们的相关性也会很好, 这时观测的体积分数间关系能较好地反映排放源的排放特征。如果污染物在大气中的化学转化过程比较强, 且不同污染物转化速率不同时, 则会削弱观测数据反映排放源信息的准确性。CO 有比较长的大气寿命, 在北半球中纬度地区, CO 的平均寿命大约为 1~2 月<sup>[25]</sup>, 而 SO<sub>2</sub> 和 NO<sub>x</sub> 的生命大约为 1 d 至数日之间<sup>[26]</sup>, 这种大气寿命的显著差异可导致观测得到的 CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比和 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比实际排放高。但是, 化学反应的影响在本工作中基本可以忽略, 因为附近的农村污染排放源对测站污染物体积分数的影响较大, 北京和保定方向的污染物如果输送条件具备, 在数小时至半日也能到达固城<sup>[15]</sup>, 因此可供污染物反应的时间很短, 化学反应对上述比值的影响总体较小。

如果不同的污染物在不同的高度释放, 导致垂直分布不同, 地面测量有时不能准确反映区域内排放源的排放情况<sup>[27]</sup>。由于大气 SO<sub>2</sub> 主要来自排放量很大的点源(如电厂等), 其排放高度一般较高, 而 CO 大部分来自较低排放源, 如机动车、小型锅炉、生物质燃烧等<sup>[14]</sup>。在垂直混合较差的情况下, 这种排放高度的差异可导致地面测量 CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比较排放源推算的比值高。为此, 上述分析中选取了除夏季外的下午数据, 对应于大气混合较好的情况, 能较好地反映区域污染的特征, 而且避免了化学反应最快的夏季的影响, 因此较好地避免了化学反应和排放高度差异这两个重要因素对本文研究方法的影响。

## 3 小 结

来自北京城区方向的输送对固城的 CO 和 NO<sub>x</sub>

有较大贡献, 而来自保定方向的输送对 SO<sub>2</sub> 贡献较大。CO 和 NO<sub>x</sub> 具有很好的同源性, 并且这种源排放 SO<sub>2</sub> 不显著。CO, NO<sub>x</sub> 及 SO<sub>2</sub> 间存在显著的相关性, 并且冬天的相关性比其他季节更显著。将上述气体体积分数间的回归线斜率作为基于观测的、扣除了背景影响的体积分数比。CO 与 NO<sub>x</sub>, CO 与 SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比四季平均值分别为  $38.5 \pm 4.3$ ,  $44.7 \pm 19.7$ ,  $0.44 \pm 0.15$ 。风向来自西北时的 CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比显著高于其他方向, 风向来自西南时的 SO<sub>2</sub> 与 NO<sub>x</sub>, CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比显著高于其他方向, 风向来自西北时的 CO 与 NO<sub>x</sub> 体积分数比也相对较高。

将固城站观测得到的 CO 与 NO<sub>x</sub>, CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比与从几种排放源清单数据计算的排放比进行比较, 发现观测得到的 CO 与 NO<sub>x</sub>, CO 与 SO<sub>2</sub> 体积分数比数倍于基于排放源数据计算得到的比值, 这很可能是低估 CO 排放的结果, 而秸秆燃烧排放的低估则是最可能的原因。在相同气象条件下, 秸秆燃烧期排放 CO 比平常时期要高出 90% ( $\pm 30\%$ )。露天秸秆燃烧及其他非化石燃烧源有可能在 CO 的排放清单中被严重低估。由于露天秸秆燃烧是我国许多农业区依然存在的现象, 上述低估可能在其他地区也很显著。因此, 在未来排放源清单编制和使用过程中需要加以重视。

**致 谢:**感谢河北省固城生态与农业气象试验站工作人员协助观测。

## 参 考 文 献

- [1] Streets D G, Waldhoff S T. Present and future emissions of air pollutants in China: SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, and CO. *Atmos Environ*, 2000, 34: 363-374.
- [2] Hao J M, Wang L T. Improving urban air quality in China: Beijing case study. *J Air Waste Manage Assoc*, 2005, 55: 1298-1305.
- [3] 徐晓斌, 刘希文, 林伟立. 输送对区域本底站痕量气体浓度的影响. *应用气象学报*, 2009, 20(6): 656-664.
- [4] Streets D G, Zhang Q, Wang L, et al. Revisiting China's CO emissions after the Transport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P) mission: Synthesis of inventories, atmospheric modeling, and observations. *J Geophys Res*, 2006, 111, D14306, doi:10.1029/2006JD007118.
- [5] Ohara T, Akimoto H, Kurokawa J, et al. An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980—2020. *Atmos Chem Phys*, 2007, 7: 4419-4444.
- [6] 赵斌. 华北地区大气污染源排放状况研究. 北京: 中国气象科学研究院, 2007.
- [7] 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. 环境科学研究, 2007, 20(4): 15-20.
- [8] 颜鹏, 黄健, Draxler R. 北京地区 SO<sub>2</sub> 污染的长期模拟及不同类型排放源影响的计算与评估. 中国科学 D 辑: 地球科学, 2005, 35(特刊 D): 167-176.
- [9] 房小怡, 蒋维楣, 季崇萍, 等. 北京交通环境污染诊断模拟初步研究. 应用气象学报, 2002, 13(特刊): 214-222.
- [10] 颜鹏, 房秀梅, 李兴生. 临安地区地面 SO<sub>2</sub> 变化规律及其源地分析. 应用气象学报, 1999, 10(3): 265-275.
- [11] 颜鹏, 黄健. 周边地区对北京地面 SO<sub>2</sub> 影响的初步研究. 应用气象学报, 2002, 13(特刊): 144-152.
- [12] Wang T, Cheung T F, Li Y S, et al. Emission characteristics of CO, NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> and indications of biomass burning observed at a rural site in eastern China. *J Geophys Res*, 2002, 107(D12), doi:10.1029/2001JD000724.
- [13] Wang Y, Hao J, McElroy M B, et al. Ozone air quality during the 2008 Beijing Olympics-effectiveness of emission restrictions. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 5237-5251.
- [14] Li C, Marufu L T, Dickerson R R, et al. In situ measurements of trace gases and aerosol optical properties at a rural site in northern China during East Asian study of tropospheric aerosols: An international regional experiment 2005. *J Geophys Res*, 2007, 112, D22S04, 10.1029/2006JD007592.
- [15] Lin W L, Xu X B, Ge B Z, et al. Characteristics of gaseous pollutants at Gucheng, a rural site southwest of Beijing. *J Geophys Res*, 2009, 114, D00G14, doi: 10.1029/2008JD010339.
- [16] 刘希文. 北京及周边地区气态污染物区域特征及输送研究. 北京: 中国气象科学研究院, 2010.
- [17] Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, et al. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 5131-5153.
- [18] Parrish D D, Trainer M, Buhr M P, et al. Carbon monoxide concentrations and their relation to concentrations of total reactive oxidized nitrogen at two rural U. S. sites. *J Geophys Res*, 1991, 96: 9309-9320.
- [19] Kok G L, Lind J A, Fang M. An airborne study of air quality around the Hong Kong territory. *J Geophys Res*, 1997, 102: 19043-19057.
- [20] Zhang Q, Streets D G, He K, et al. NO<sub>x</sub> emission trends for China, 1995-2004: The view from the ground and the view from space. *J Geophys Res*, 2007, 112, D22306, doi:10.1029/2007JD008684.
- [21] Li L J, Wang Y, Zhang Q, et al. Wheat straw burning and its associated impacts on Beijing air quality. *Science in China Series D: Earth Sciences*, 2008, 51(3): 403-414.
- [22] 曹国良, 张小曳, 王丹, 等. 中国大陆生物质燃烧排放的污染物清单. 中国环境科学, 2005, 25(4): 389-393.
- [23] 郑晓燕, 刘咸德, 赵峰华, 等. 北京市大气颗粒物中生物质燃烧排放贡献的季节特征. 中国科学 B 辑: 化学, 2005, 35(4): 346-352.
- [24] 李阳. 基于观测的污染气体区域排放特征研究. 北京: 中国气象科学研究院, 2011.
- [25] Holloway T, Levy II H, Kasibhatla P. Global distribution of carbon monoxide. *J Geophys Res*, 2000, 105(D10): 12123-12147.
- [26] Warneck P. *Chemistry of the Natural Atmosphere*. New York: Academic Press, 1988.
- [27] 孟昭阳, 丁国安, 于海青, 等. 北京北部城区 SO<sub>2</sub> 和 NO<sub>2</sub> 浓度垂直分布特点初探. 应用气象学报, 2002, 13(特刊): 109-112.

## Regional Emissions of Gaseous Pollutants Based on Observations

Li Yang<sup>1)</sup> Xu Xiaobin<sup>1)</sup> Lin Weili<sup>2)</sup> Zhao Huarong<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> (*Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081*)

<sup>2)</sup> (*CMA Center for Atmosphere Watch & Services, CMA Meteorological Observation Center, Beijing 100081*)

### Abstract

Measurements of ambient CO, NO<sub>x</sub> and SO<sub>2</sub> made at Gucheng Station, Hebei Province, China from September 2006 to August 2007 are analyzed and applied to the validation of emission inventory data. It shows that the concentrations of these gases are significantly correlated among each other, suggesting that the gases have common sources. The concentration ratios of CO to NO<sub>x</sub>, CO to SO<sub>2</sub> and SO<sub>2</sub> to NO<sub>x</sub> for the entire day, daytime and nighttime in different seasons are obtained based on the slopes of the respective correlation lines. The results show that the seasonal variations of the ratios are not very high and the correlations of CO and NO<sub>x</sub>, CO and SO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub> in winter are more significant than those in other seasons. There is large difference between the daytime and nighttime in the ratio of CO to NO<sub>x</sub>, particularly in the warmer seasons, indicating strong photochemical impact on the ratio of CO to NO<sub>x</sub>. There are certain dependences of the gas concentrations and the concentration ratios on wind directions, reflecting the different impacts of sources from different wind sectors. The prevailing surface wind directions at the Gucheng Station are northeast and southwest, facilitating the transport of plumes from Beijing and Baoding, respectively. When winds come from the north sector (Beijing), surface concentrations of CO and NO<sub>x</sub> are significantly higher than those from other directions, and when the winds come from south sector (Baoding, Shijiazhuang), surface concentration of SO<sub>2</sub> is significantly higher than that from other directions. The characteristics of pollutants in different wind directions may reflect the characteristics of pollution sources in different directions. The concentration ratios from the observations are compared with emission ratios derived from the emission inventories (INTEX-B, TRACE-P, REAS, HB). To avoid the influences from inadequate vertical mixing and strong photochemistry, only afternoon data in seasons other than summer are considered. Under this condition, the observed concentration ratios are 43.7 and 31.6 for CO to SO<sub>2</sub> and for CO to NO<sub>x</sub>, respectively, which are 2–12 times higher than the respective emission ratios derived from the emission inventories. This result suggests that CO emission may be underestimated by more than two times in the emission inventories. Further studies show that CO emission from biomass combustion, especially the large-scale straw combustion in harvest seasons would be the important but greatly underestimated source. The analysis of the observation data indicates that the average CO level in open straw burning periods is (90% ± 30%) higher than that in the other periods under similar meteorological conditions. So far, biofuels are still used for cooking and heating by rural families in many Chinese regions and open burning of agricultural residues is often not effectively controlled. In the future, the impacts of emissions from agricultural straw burning on the emission strengths should be given more attention in the process of making and using the emission inventories.

**Key words:** SO<sub>2</sub>; NO<sub>x</sub>; CO; emission ratio; Gucheng Station