

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2023010303

高朋杰, 杜寒冰, 沈韵, 等. 2019 年河北省人为源氨排放清单建立及空间分布特征[J]. 环境化学, 2024, 43(7): 2454-2464.

GAO Pengjie, DU Hanbing, SHEN Yun, et al. The emission inventory and spatial distribution characteristics of anthropogenic ammonia in 2019 of Hebei Province[J]. Environmental Chemistry, 2024, 43 (7): 2454-2464.

2019 年河北省人为源氨排放清单建立及空间分布特征*

高朋杰¹ 杜寒冰¹ 沈 韵¹ 赵睿东² 李京日³ 于兴娜^{1**}

(1. 南京信息工程大学, 中国气象局气溶胶-云-降水重点开放实验室, 南京, 210044; 2. 浙江省金华市气象局, 金华, 321000;
3. 金日成综合大学地球环境科学学院, 平壤, 999093, 朝鲜)

摘 要 通过 2019 年河北省人为氨排放源活动水平的统计数据, 利用排放因子法构建了河北省人为源氨排放清单, 并利用 ArcGIS 软件研究了氨排放量和排放强度的空间分布特征. 结果表明, 2019 年河北省人为源氨排放量为 767.52 kt, 其中农业源氨排放量占到 93.17%, 主要与对肥料和粪便缺少有效处理有关. 主要的氨排放源为畜禽养殖和化肥施用, 其排放量分别占氨排放总量的 69.59% 和 21.19%, 其中畜禽养殖中肉禽对 NH₃ 的贡献最高, 分担率高达 37.04%. 非农业源中人体排放与燃料燃烧排放源贡献较高, 分别占 2.03% 和 2.28%. 2019 年河北省氨平均排放强度为 4.10 t·km⁻², 其中石家庄市氨排放量和排放强度最高, 分别为 116.73 kt 和 8.03 t·km⁻². 空间分布特征上, 较高的氨排放量和排放强度均主要集中在河北省南部及中部地区.

关键词 氨 (NH₃), 人为源, 排放清单, 空间分布, 河北省.

中图分类号 X-1; O6 **文献标识码** A

The emission inventory and spatial distribution characteristics of anthropogenic ammonia in 2019 of Hebei Province

GAO Pengjie¹ DU Hanbing¹ SHEN Yun¹ ZHAO Ruidong²
LI Jingri³ YU Xingna^{1**}

(1. Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing, 210044, China; 2. Jinhua Meteorological Bureau of Zhejiang Province, Jinhua, 321000, China; 3. College of Earth Environmental Sciences, Kim Il Sung University, Pyongyang, 999093, Korea)

Abstract Based on the statistical data of the activity level of anthropogenic ammonia emission sources in 2019 of Hebei Province, the ammonia emission inventory of Hebei Province was established using the emission factor method. The spatial distribution characteristics of ammonia emissions and emission intensity were studied by ArcGIS software. The anthropogenic ammonia emissions in 2019 of Hebei Province were up to 767.52 kt, of which the agricultural sources ammonia accounted for 93.17%. This result is mainly attributed to the lack of effective treatment of fertilizers and manure agricultural. The breeding of livestock and poultry and the application of chemical fertilizer were main emission sources, accounting for 69.59% and 21.19% of the total ammonia emissions, respectively. Meat poultry had the highest contribution to NH₃ with a sharing rate of 37.04%. For the non-agricultural sources, human and fuel combustion emissions had higher

2023 年 1 月 3 日收稿 (Received: January 3, 2023).

* 国家重点研发计划课题 (2019YFC0214604), 国家自然科学基金 (41775154) 和江苏省“六大人才高峰”项目 (JNHB-057) 资助.

Supported by the National Key Research and Development Program of China (2019YFC0214604), National Natural Science Foundation of China (41775154) and Six Talent Peak Projects in Jiangsu Province (JNHB-057).

** 通信联系人 **Corresponding author**, E-mail: xnyu@nuist.edu.cn

contributions with contribution rates of 2.03% and 2.28%, respectively. An average emission intensity in 2019 of Hebei Province was $4.10 \text{ t}\cdot\text{km}^{-2}$, of which Shijiazhuang had the highest ammonia emissions and emission intensity with averages of 116.73 kt and $8.03 \text{ t}\cdot\text{km}^{-2}$, respectively. The areas with higher ammonia emission and emission intensity mainly concentrated in the southern and central regions of Hebei Province.

Keywords ammonia, anthropogenic source, emission inventory, spatial characteristic, Hebei Province.

氨(NH_3)是大气中一种重要的碱性气体,人为排放的氨进入大气后会与 SO_2 和 NO_x 等酸性气体发生化学反应^[1],对大气环境造成不利的影响.例如,大气中的水与二氧化硫(SO_2)、二氧化氮(NO_2)反应会生成亚硫酸与亚硝酸,在一定的氧化环境中,氨气会与之发生中和反应生成硫酸铵($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$)和硝酸铵(NH_4NO_3),这些二次颗粒物在雾霾中含量很高,对雾霾的形成有重要的影响^[2].除此之外,氨沉降到陆地和水生生态系统中会直接或间接导致严重的环境问题,如水体富营养化、生物多样性减少,氨反应生成的铵盐进入土壤后还会导致土壤酸化^[3].

鉴于氨在大气中的重要性,近年来国内外学者针对氨的排放源清单进行了大量研究.杨旭等^[4] 2017 年对京津冀地区空气污染物类型及比例做出了一定的分析.廖文玲等^[5] 建立了 2013 年至 2018 年中国县级氨排放清单,并在以往研究基础上,增加了对居民散煤燃烧氨排放的估算.董文煊等^[6] 于 2010 年对 1996 年至 2004 年中国人为源氨排放分布进行研究,得出中国氨排放的主要来源为畜禽养殖和化肥施用的结论.Kang 等^[3] 对 1980—2012 年中国高分辨率氨排放清单进行了构建,对我国氨排放源作出了详细的划分和分析.朱聪聪等^[7] 于 2020 年对河北省空气质量及影响因素进行了证实研究,得出河北省的煤炭消费和化工企业生产是对我国空气质量产生影响的重要因素,但未对产业排放量作出数据统计.程龙等^[8] 于 2018 年研究了京津冀农业氨排放清单建立及其控制方案,但没有具体对河北省人为源氨的排放作出详细分析.除此之外,大多数排放清单未经验证,构造清单的年份需要实时更新,准确的清单对于支持空气质量模型、指导氨排放的控制措施和制定缓解策略至关重要^[9].河北省是华北地区人口大省、农业大省,也是高度聚集重化工产业的省份,污染气体的过度排放导致了河北省雾霾天气频现,对人们生产生活 and 交通都造成了严重的影响.因此,研究氨的排放特征和清单的建立对河北省空气污染治理有着极为重要的意义.

本文根据河北省统计年鉴以及中国农村、城市、能源、畜牧兽医统计年鉴,讨论畜禽养殖、化肥施用、土壤本底、固氮植物、秸秆堆肥、生物质燃烧、人类活动、交通排放、废弃物处理、化工生产和燃料燃烧等 11 类氨排放源,估算了 2019 年河北省下辖 11 个地级市的氨排放量,构建 2019 年河北省人为源氨排放清单,并对河北省的氨排放特征进行分析.

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 数据来源

本研究基准年为 2019 年,采用河北省下辖 11 个地级市的数据统计结果,主要分为农业源和非农业源两大类.其中农业源包括畜禽养殖和农田生态系统两部分,非农业源则包括生物质燃烧、道路移动源、人体排放、化工生产、废弃物处理和燃料燃烧六部分.畜禽养殖和农田生态系统的活动水平数据来源于《河北省农村统计年鉴》《中国畜牧兽医统计年鉴》,废弃物处理的活动水平数据来源于《中国城市建设统计年鉴》,生物质燃烧、人类活动、机动车排放、化工生产的活动水平数据来源于《河北省 2020 年统计年鉴》、燃料燃烧的活动水平来源于《中国能源统计年鉴》.氨排放因子除个别单独注释引用外,其余均引自文献^[10].

1.2 计算方法

本研究主要采用排放因子法.根据各市的活动水平数据,对河北省人为源氨排放量进行估算,计算公式为:

$$E_{i,j} = \sum_j A_{i,j} \times EF_{i,j} \times \gamma$$

式中*i*、*j*分别为地区、氨排放源类别，*E*为氨排放量；*A*为活动水平数据；EF为排放因子，*E_{i,j}*为*i*地区*j*排放源的排放量； γ 为氮-大气氨转换系数，其取值在畜禽养殖时为1.214，其他源时为1.0。

1.3 清单的构建

1.3.1 畜禽养殖

畜禽养殖过程中，氨的排放主要来自畜禽排泄物。畜禽每日进食中包含的蛋白质会经过肠胃消化代谢转化成排泄物。畜禽排泄物中包含有机氮和无机氮，其中一部分无机氮会转化成氨气排放进入大气^[11]。氨的排放量受畜禽种类、性别、饲养周期、体重、家畜饲养目的、房屋结构、粪便储存和堆肥的影响。由于不同畜禽饲养周期不同，现将畜禽分为出栏和存栏两类，畜禽种类主要为研究区统计年鉴中记载的饲养品种，分为黄牛、马、驴、骡、肉鸡、肉鸭、肉鹅、奶牛、肉牛、山羊、绵羊、母猪、肉猪、蛋鸡、蛋鸭和兔。本文将肉鸡、肉鸭、肉鹅统一为肉禽进行计算。由于不同畜禽饲养周期不同，现将畜禽分为出栏和存栏两类，其中统计出栏的畜禽包括肉牛、肉猪、肉禽、兔，其饲养周期小于1a；统计存栏的畜禽包括黄牛、马、驴、骡、山羊、绵羊、母猪、蛋鸡和蛋鸭，其饲养周期大于1a。由于部分地级市没有对蛋鸡、蛋鸭存栏数据进行统计整理，现根据文献^[12]提供公式(1)进行估算：

$$Q_i = \frac{O_i}{M_i \times N_i} \tag{1}$$

其中，*i*为畜禽种类；*Q*为畜禽年末存栏数，只；*O*为禽蛋产量，个；*M*为平均禽蛋质量，g·只⁻¹；*N*为家禽年平均产蛋数，个。禽类生产性能如表1：

表 1 禽类生产性能^[12]
Table 1 Poultry production performance

指标 Index	蛋鸡 Laying hens	蛋鸭 Egg-laying duck
平均蛋重/(g·只 ⁻¹) Average egg weight	57.41	69.52
平均产蛋个数/只 Average number of eggs laid	201.88	220.04

根据各年鉴统计结果及估算结果，全面统计出2019年河北省各市畜禽出栏(存栏)量。针对畜禽种类及饲养周期的不同，将畜禽的养殖方式分为散养和集约化两种，猪、牛、家禽和羊的散养比例分别为10%、5%、5%和50%^[13]。根据文献^[10]粪便按照其处理阶段及状态分为户外、圈舍-液态、圈舍-固态、存储-液态、存储-固态、施肥-液态和施肥-固态七类。由于粪便储存过程中会有氮的逸散，其逸散形式包括N₂O、NO和N₂，在计算中采用文献^[10]中的逸散系数。

1.3.2 农田生态系统

农田生态系统由氮肥施用、土壤本地、固氮植物、秸秆堆肥四部分构成。

(1)氮肥施用

农业种植过程中，肥料的施用是必不可少的环节之一，我国常用肥料包括氮肥、磷肥、钾肥和复合肥，其中氮肥为农业种植过程中使用率最高、使用量远超其他肥料的化肥，施用过程中会造成大量氨的释放。根据文献^[14]对2019年河北省氮肥用量的调查，可将氮肥分为尿素、碳铵、其他氮肥、磷酸氢二铵和三元复合肥。根据文献^[15]，尿素、碳铵、其他氮肥分别占氮肥施用比例的92.89%、6.41%、0.7%，磷酸氢二铵和三元复合肥分别占复合肥的15.26%和54.52%。氮肥施用过程中氨排放量的计算使用公式(2)：

$$E_i = A_i \times EF_i \tag{2}$$

式中，*E_i*为各类氮肥的氨排放量，*A_i*为各类氮肥的活动水平，EF_{*i*}为排放因子。氨排放量与化肥的种类、施用量、气候条件和土壤性质等因素有关，英国国家尺度模型NARSES能够根据研究区域特点对排放进行多因素修正，因此本论文利用NARSES模型以及张美双等^[16]的研究结果，以各城市为空间分布尺度，以月份作为时间分布尺度，分别计算各城市各类氮肥每个月的氨排放因子，在NARSES模型下计

算各城市 2019 年每个月的氨排放量,再相加得到河北省各城市 2019 年的氮肥施用源氨排放量,本论文根据文献 [17] 获取了河北省各月份的施肥百分比,河北省各月氮肥施用比例及氨排放量,见表 2.

表 2 河北省各月施肥比例及氨排放量

Table 2 Monthly fertilization ratio and ammonia emission in Hebei Province												
月份 Month	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
施肥比例 Fertilizer proportion/%	0.56	0.56	3.99	29.12	3.55	19.57	19.38	9.48	9.94	1.74	0.76	1.33
氨排放量 Ammonia emission/kt	0.91	0.91	6.49	47.37	5.77	31.83	31.52	15.42	16.17	2.83	1.24	2.16

该模型根据田间试验结果确定各类氮肥的最大排放因子,以土壤酸碱度、温度、降水量、氮肥施用率和土地利用方式作为氨排放的影响因素来对最大排放因子进行修正,见公式(3):

$$EF_i = EF_{i,max} \times RF_T \times RF_{rainfall} \times RF_{rate} \times RF_{landuse}$$

(3)

上式中,EF 为各类氮肥修正后的排放因子;EF_{i,max}为各类氮肥最大排放因子;RF 为消减因子,式中分别为土壤 PH 消减因子、温度消减因子、降水消减因子、氮肥施用速率消减因子和土地利用消减因子.从中国土壤数据库中 1:1000000 数字化土壤所提供的数据中得到河北省酸性和碱性土壤的占比,河北省碱性土壤占比 81.99%,其余均为酸性土壤.排放因子修正方法详见文献 [16].

(2)土壤本底

河北省各市土壤本底排放源中氨排放量的计算基于该市耕地面积及氨排放因子,土壤本底氨排放因子为每亩 0.12 kg.

(3)固氮植物

固氮植物主要包括大豆、花生和绿肥,其中由于河北省绿肥数据缺失^[14],现只统计前两种植物的播种面积,大豆和花生的排放因子分别为每亩 0.07 kg 和每亩 0.08 kg.

(4)秸秆堆肥

根据河北省农业种植统计结果,可用于秸秆堆肥的农作物包括稻谷、小麦、玉米、大豆、薯类、棉花、花生、菜油和蔬菜.由文献 [18] 可知秸秆堆肥量计算如公式(4):

$$Ms_i = Mc_i \times G_i \times 0.432$$

(4)

式中,*i* 为可用于秸秆堆肥的农作物类别,Ms 为秸秆堆肥量,Mc 为农作物产量,*G* 为谷草比,0.432 为秸秆施肥比例^[19].秸秆堆肥排放因子为 0.32 kg·t⁻¹.

1.3.3 生物质燃烧

生物质燃烧源通常包括四种类型:秸秆露天焚烧、家用秸秆燃烧、家用薪柴燃烧和森林火灾.本文中仅考虑秸秆露天焚烧,秸秆露天焚烧排放的氨计算见公式(5)^[20]:

$$E = Mc_i \times G_i \times D_i \times \eta_i \times \xi_i \times EF_i$$

(5)

式中,*i* 为农作物类别,*E* 为氨排放量,Mc 为农作物产量,*G* 为谷草比,*D* 为谷草干燥比, ξ 焚烧比例, η 为焚烧效率,EF 为排放因子.秸秆排放源相关计算参量见表 3.

表 3 秸秆排放源相关计算参量

Table 3 Calculation parameters of straw emission source				
农作物种类 Crop species	谷草比 ^[21] Seed-straw ratio <i>G</i>	谷草干燥比 ^[21] Grain grass drying ratio <i>D</i>	焚烧比例 ^[22] Incineration ratio ξ	焚烧效率 ^[21] Incineration efficiency η
稻谷	0.9	0.89	0.248	0.93
小麦	1.1	0.89	0.248	0.93
玉米	1.2	0.87	0.248	0.92
豆类	1.6	0.91	0.248	0.68
薯类	0.5	0.45	0.248	0.68
棉花	3.4	0.83	0.248	0.8
油料	1.5	0.83	0.248	0.804

1.3.4 人体排放

人体主要通过排泄物排放氨,排放量与人口数量和处理条件密切相关,本论文以各市年末常驻人口数量为该氨排放源的活动水平数据.农村人口氨排放因子取每人 0.5 kg.

1.3.5 道路移动源

机动车尾气催化装置在消除 NO_x 时会产生氨,而机动车的氨排放量又与机动车的保有量、所用燃料种类、机动车行驶里程、车龄和行驶状态有关有密切的关系^[23],本文暂不考虑车龄和行驶状态对氨排放的影响,只对机动车保有量、所用燃料种类及机动车行驶里程进行分析,根据车型和燃料种类将机动车分为 5 类,见表 4. 机动车氨排放量的计算采用公式(6)进行计算:

$$E = B_{i,j} \times Mv_{i,j} \times EF_j$$

(6)

式中,*i* 为地区,*j* 为机动车类型,*B* 为机动车保有量,*Mv* 为机动车年行驶里程,*EF* 为排放因子.其中机动车的排放因子和不同车型年行驶里程,如表 4 所示.

表 4 机动车排放因子(g·km⁻¹)和机动车年行驶里程^[24]
Table 4 Vehicle emission factors and annual vehicle mileage

机动车类型 Motor vehicle type	大型载客汽车 Carryall	小型载客汽车 Small passenger cars	大型载货汽车 Large truck	小型载货汽车 Small truck	摩托车 Motorcycle
排放因子/(g·km ⁻¹) Emission factor	0.028	0.026	0.017	0.004	0.007
年行驶里程/km Annual mileage traveled	40000	25900	44000	32300	9900

1.3.6 废弃物处理

根据文献和实际获取的活动水平数据,将废弃物处理分为垃圾处理 and 污水处理过程.垃圾处理过程主要包括卫生填埋、堆肥和燃烧,本研究暂不考虑垃圾堆肥造成的氨排放;污水处理过程产生的氨直接用污水排放量进行估算.垃圾焚烧和垃圾填埋的排放因子分别取 0.21 kg·t⁻¹ 和 0.56 kg·t⁻¹,污水处理的氨排放因子取为 3.2 g·m⁻³.

1.3.7 化工生产

在化工生产过程中,氮肥和合成氨生产是主要的氨排放源.氮肥和合成氨生产的氨排放因子分别为 5 kg·t⁻¹ 和 0.01 kg·t⁻¹.

1.3.8 燃料燃烧

燃料燃烧根据燃料类型和使用部门,主要分为居民生活和工业的燃煤、燃油和天然气.其中,居民生活燃料燃烧的活动水平数据通过河北省各市统计年鉴获得河北省各类民用燃料的年消耗量,结合各市年末常住人口数比例估算;工业燃料燃烧量可直接通过河北省各市统计年鉴获得.燃料燃烧源中的排放因子的选取见表 5.

表 5 燃料燃烧排放因子^[25]
Table 5 Fuel combustion emission factors

排放源种类 Types of emission sources	工业燃煤 Industrial firing coal	工业燃油 Commercial burner oil	工业天然气 Industrial gas	民用燃煤 Residential coal burning	民用燃油 Civil fuel oil	民用天然气 Civil natural gas
排放因子/(kg·t ⁻¹) Emission factor	0.015	0.096	51.3	0.908	0.12	320.5

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 2019 年河北省人为源氨排放清单

2019 年河北省人为源氨排放情况如表 6 所示.2019 年河北省人为源氨排放量达到 767.52 kt,农业排放源分担率为 93.17%,非农业排放源分担率为 6.83%.其中最大的氨排放源为畜禽养殖(534.13 kt),其分担率高达 69.59%.第二大氨排放源为氮肥施用(162.66 kt),占排放总量的 21.19%,说明农业源是河北省氨排放最主要的人为排放源.除此之外,非农业排放源对河北省氨排放的贡献也不能忽视,例如

人体排放和燃料燃烧的氨排放量为 15.56 kt 和 17.46 kt, 分别占 2.03% 和 2.28%, 与较多的人口数量和河北省较高的工业生产量数量相关. 对氨排放影响较小的非农业源是废弃物处理和生物质燃烧, 氨排放量为 2.07 kt 和 4.86 kt, 分担率共占 0.9%.

表 6 2019 年河北省人为源氨排放清单

Table 6 Inventory of anthropogenic ammonia emissions in Hebei Province in 2019

农业源 Agricultural source	氨排放量/kt Ammonia emissions	分担率/% Sharing rate	非农业源 Non-agricultural sources	氨排放量/kt Ammonia emissions	分担率/% Sharing rate
畜禽养殖	534.13	69.59	生物质燃烧	4.86	0.63
氮肥施用	162.66	21.19	人体排放	15.56	2.03
土壤本底	11.74	1.53	道路移动源	10.05	1.31
固氮植物	0.56	0.07	废弃物处理	2.07	0.27
秸秆堆肥	1.13	0.15	化工生产	7.31	0.95
			燃料燃烧	17.46	2.28

2.2 排放源贡献分析

2.2.1 畜禽养殖贡献分析

河北省氨排放量中畜禽养殖的分担率远超其他排放源, 其占比高达 69.59%. 故针对畜禽养殖展开分析(表 7). 其中肉禽、蛋鸡、肉牛是河北省畜禽养殖的主要氨排放源. 其中肉禽产生的氨排放量最高为 197.82 kt, 占 37.04%. 蛋禽氨排放量为 108.72 kt, 占比 20.35%. 这主要是因为人们日常对鸡蛋、禽肉等畜牧产品的需求量较大, 导致这些禽畜的饲养量较多, 并且这些禽畜的饲养周期较短, 导致相应的氨排放分摊率较大. 而其中黄牛、马(包括驴、骡)氨排放分担率较低, 均不超过 1%. 这与牛、马、驴、骡均为大牲畜饲养周期较长, 消费量较少. 兔的年均氨排放量最少, 这与兔的养殖数量少, 消费量少有关.

表 7 畜禽养殖系统氨排放量及其分担率

Table 7 Ammonia emissions and its sharing rate in livestock and poultry breeding system

畜禽种类 Species of livestock	氨排放量/kt Ammonia emissions	分担率/% Sharing rate
黄牛	3.48	0.65
马(包括驴、骡)	2.02	0.38
肉禽	197.82	37.04
奶牛	48.40	9.06
肉牛	84.15	15.75
山羊	18.03	3.38
绵羊	41.02	7.68
母猪	6.52	1.22
肉猪	23.15	4.33
蛋鸡	97.29	18.21
蛋鸭	11.43	2.14
兔	0.82	0.15

2.2.2 农田生态系统贡献分析

图 1 给出了河北省 2019 年农田生态系统氨排放贡献比例. 氮肥施用是河北省第二大氨排放贡献源, 占氨排放总量的 21.19%, 其中尿素的氨排放量最大. 这与河北省作为华北地区的农业大省, 其种植面积广阔有关. 据统计, 河北省以生产小麦、玉米、棉花为主, 其中棉花对氮肥的需求量较高. 这导致氮肥施用在农田生态系统中对氨的排放量影响最大, 占比 92.7%, 而土壤本底、秸秆堆肥和固氮植物共占 7.3%. 由此可见, 化肥施用对氨排放的影响需要加大关注和控制, 其中降低施肥量是最有效的氨减排措施, 其次是深施化肥和施用包膜尿素.

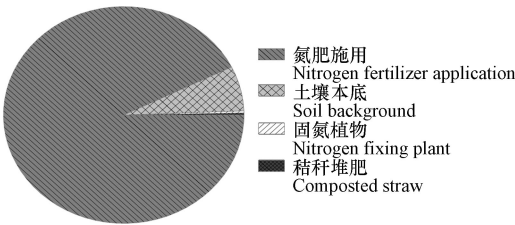


图 1 2019 年河北省农田生态系统氨排放比例

Fig.1 Proportion of ammonia emissions from Farmland ecosystem in Hebei Province in 2019

2.3 分地区氨排放清单特征

2019 年河北省各市各类人为源氨排放量及百分比如下表 8 和图 2 所示. 根据统计结果可知, 2019 年河北省石家庄市的氨排放量最高, 达到了 116.73 kt, 占全省排放总量的 15.21%; 其次为邯郸市和唐山市, 其贡献率分别占到 12.86% 和 11.26%, 氨排放量最小的市为廊坊市, 排放量仅有 33.26 kt, 贡献率占 4.33%. 对于畜禽养殖源, 除衡水市外, 各市畜禽养殖的氨排放量均占排放总量的 60% 及以上, 承德市占比最高, 达到了 87.44%. 而石家庄畜禽养殖造成的氨排放量最高, 达到了 78.23 kt. 在农田生态系统和人体排放源中, 石家庄和保定的氨排放量最高, 这与这两个城市的人口数量有直接关系. 生物质燃烧源中, 邯郸和邢台排放量最高, 分别为 0.68 kt 和 0.64 kt. 对于交通排放源和废弃物处理而言, 石家庄和邯郸因为拥有较高的汽车保有量和较多的人口数量使其排放量位居前二; 燃料燃烧源产生的氨排放量在非农业源中也占有较高的贡献, 比如唐山和保定的排放量分别达到了 2.48 kt 和 2.38 kt.

表 8 各市排放源及氨排放量(kt)

Table 8 Emission sources and ammonia emissions of each city

地区 Region	畜禽养殖 Livestock and poultry breeding	农田生态系统 Farmland ecosystem	生物质燃烧 Biomass burning	人体排放 Human emission	道路移动源 Road mobile source	废弃物处理 Waste disposal	化工生产 Chemical production	燃料燃烧 Fuel burning
石家庄	78.23	30.92	0.61	1.96	1.50	0.40	0.77	2.34
唐山	57.14	22.48	0.43	1.42	1.09	0.30	1.05	2.48
秦皇岛	26.46	5.25	0.11	0.62	0.43	0.10	0.32	0.70
邯郸	68.47	22.66	0.68	2.00	1.31	0.49	0.95	2.17
邢台	42.53	15.58	0.64	1.69	1.01	0.05	0.51	1.63
保定	52.75	23.22	0.62	2.41	1.29	0.11	0.60	2.38
张家口	39.57	7.48	0.22	0.92	0.61	0.32	0.45	0.91
承德	60.31	5.85	0.19	0.84	0.49	0.07	0.39	0.83
沧州	54.15	16.65	0.58	1.70	1.03	0.06	0.25	1.85
廊坊	22.30	7.38	0.21	0.95	0.67	0.11	0.47	1.17
衡水	32.23	18.62	0.56	1.05	0.62	0.07	1.55	1.00

氨的排放强度定义为单位面积上氨的排放量, 能够较为直观地反映各地级市氨的污染情况. 本研究利用 ArcGIS 提取河北省地理边界信息, 并绘制了河北省 2019 年各地级市氨排放量及排放强度空间分布(图 3). 从空间分布上看, 河北省氨的排放量主要集中在石家庄市和邯郸市, 其原因主要是石家庄和邯郸市处于平原地区且畜牧业发达, 其中 2010—2015 年石家庄市的畜牧业总产值是全省平均值的 1.7 倍以上, 邯郸市畜牧业产值的平均值总产值是全省平均值的 1.4 倍左右^[26]. 秦皇岛、张家口和廊坊市氨排放量较少, 这是由于秦皇岛、张家口和廊坊市畜牧业相对落后, 畜牧业产值低于全省平均水平^[26]. 从氨的排放强度分布图可以看出, 北部城市氨排放强度较小, 在 1.39 —3.77 t·km⁻² 之间, 均低于河北省平均排放强度(4.10 t·km⁻²). 河北省南部、中部地区及东部(唐山市)氨排放强度较高, 如石家庄、唐山和邯郸的排放强度均在 6.0 t·km⁻² 以上, 其中石家庄排放强度最高, 达到了 8.03 t·km⁻². 总体而言, 2019 年河北省氨平均排放强度为 4.10 t·km⁻².

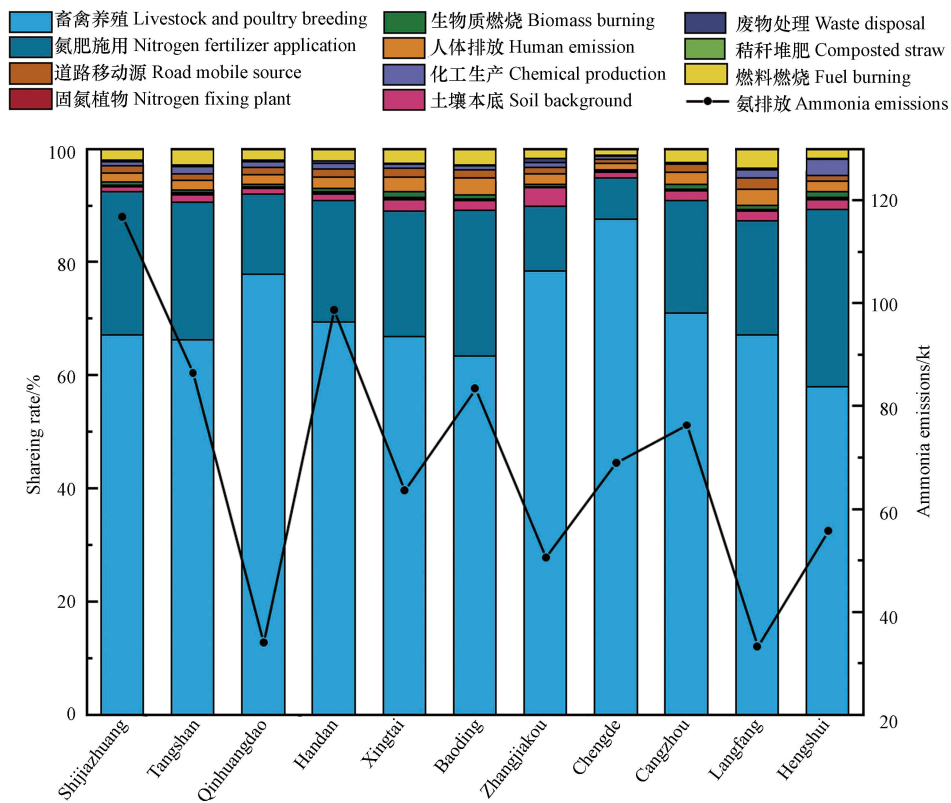


图 2 2019 年河北省各市氨排放总量以及各排放源氨排放分担率

Fig.2 Total ammonia emissions and ammonia emission sharing rate of each emission source in Hebei Province in 2019

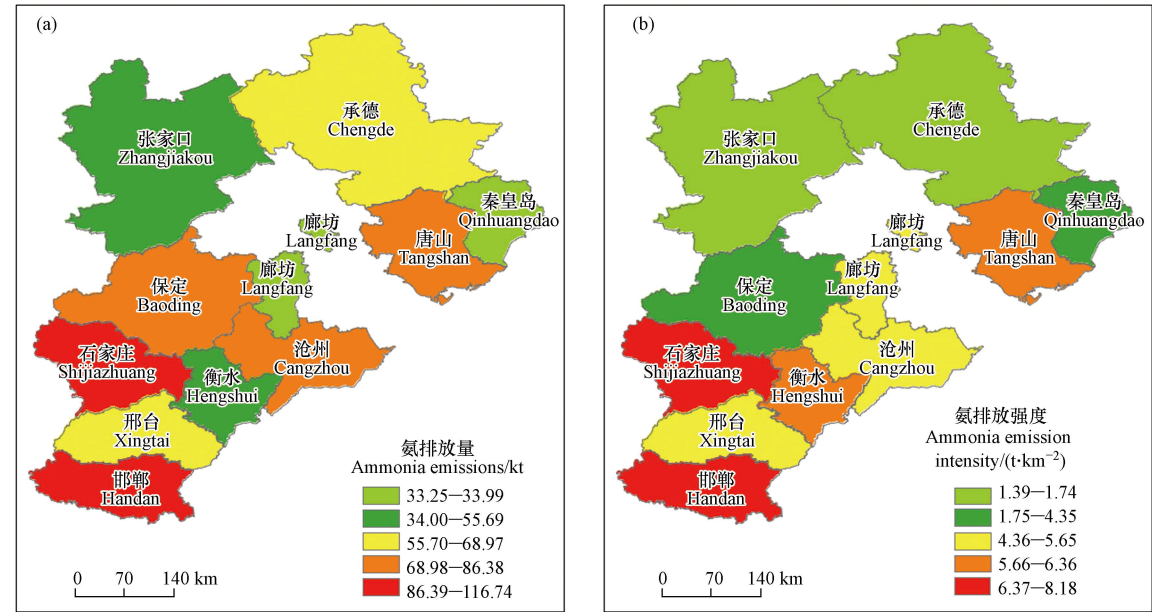


图 3 2019 年河北省氨排放量(a)和排放强度空间分布(b)

Fig.3 Spatial distribution of ammonia emissions and emission intensity in Hebei Province in 2019

2.4 同类排放清单的比较

通过将本文研究结果与其他省份氨排放清单进行对比的方法,可以更好地分析河北省 2019 年人为源氨排放情况. 由于全国各省不同年份氨排放清单统计资料不全,各排放清单中对排放源的划分也有所不同,因此仅统计可获得的文献中总氨排放量与农业源氨排放量进行对比分析,比较结果见表 9. 可以看出,除浙江省外,以畜禽养殖和氮肥施用为代表的农业源在各地氨排放水平中均占比超过 80%. 方立江等^[15]得到 2017 年京津冀地区的氨排放量为 825.18 kt,高于本研究河北省的氨排放量,这是因为京津冀地区的氨排放量包括北京和天津两市,同时从排放源贡献率来看,其畜禽养殖和氮肥施用的贡

献率与本研究总体接近. 浙江省^[20]、江苏省^[27]和安徽省^[28]的氨排放量均低于本研究. 从畜禽养殖来看, 主要是因为河北省畜牧业发达, 畜禽养殖所造成的氨排放量均大于其他三个地区. 从氮肥施用来看, 浙江省、江苏省和安徽省均以酸性土壤为主, 而酸性土壤条件下各类氮肥的排放因子均明显小于碱性土壤. 而河南省^[29]和山东省^[30]的氨排放总量均高于本研究, 这主要是因为河南省和山东省为人口大省, 且禽畜养殖业和种植业规模较大, 所造成的氨排放量较高.

表 9 同类型排放清单
Table 9 Same type emission inventory

地区 Region	年份 Particular year	排放量 Emissions/kt	排放强度/(t·km ⁻²) Emission intensity	主要人为源占比 Proportion of main anthropogenic sources	数据来源 Data sources
河北省	2019	767.52	4.10	畜禽养殖占69.59%, 氮肥施用占21.19%	本研究
京津冀	2017	825.18	—	畜禽养殖占63.78%, 氮肥施用占25.08%	[15]
河南省	2013	1035.3	6.4	畜禽养殖占52.7%, 氮肥施用占31.5%	[29]
山东省	2015	1058	6.71	畜禽养殖占64.89%, 氮肥施用占29.14%	[30]
安徽省	2017	672.16	5.34	畜禽养殖占45.9%, 氮肥施用占40.0%	[28]
浙江省	2017	95.52	0.91	畜禽养殖占29.44%, 农田生态29.56%	[20]
江苏省	2017	562.47	5.3	畜禽养殖占37.2%, 氮肥施用占44.4%	[27]

2.5 清单不确定性分析

由于本研究所选用的计算方法对氨的实际排放过程进行了简化处理, 导致氨排放估算存在一定的不确定性. 影响氨排放清单准确性的不确定性因素包括活动水平数据和排放因子的选取, 本研究中活动水平数据沧州市、承德市缺少市统计年鉴, 针对机动车保有量的统计, 采用了 2020 年河北省统计年鉴中年底常住人口数进行估算; 针对合成氨和氮肥的产量统计, 采用了 2020 年河北省统计年鉴中工业生产总产值比例进行估算. 畜禽养殖人为源的统计中缺少具体的肉鸡、肉鸭与肉鹅数据, 因此将三者合并为肉禽, 相应的排放因子的选取有一定误差. 土壤本底人为源的统计中, 由于缺少各市耕地面积, 采用了各市播种面积比例进行估算. 燃料燃烧人为源的统计中, 部分地级市缺少对工业消费和民用消费的煤油天然气数据, 通过工业总产值进行估算. 除此之外, 近几十年来我国对合成肥料的过度使用导致土壤严重酸化, 这对氨的挥发有着一定的影响. 以上这些数据的估算都会导致清单的不确定性提升. 但相较于其他同类型清单而言, 本文在畜禽养殖源计算了包括户外、圈舍-液态、圈舍-固态、存储-液态、存储-固态、施肥-液态、施肥-固态共 7 类环节的氨排放量, 使得畜禽养殖氨排放量的结果更为准确. 在氮肥施用源中本文利用 NARSES 模型下计算各城市 2019 年每个月的氨排放量, 再相加得到河北省各城市 2019 年的氮肥施用源氨排放量, 使氮肥施用源产生的氨排放量更加详细, 这些都降低了清单的不确定性. 综上所述, 本文所构建 2019 年河北省人为源氨排放清单不确定性仍需降低, 深入调查, 采集实际的活动水平数据是提升河北省氨排放清单精度的最主要方法.

3 结论(Conclusion)

- 1) 通过排放因子法计算可知, 2019 年河北省人为源氨排放总量为 767.52 kt, 其中农业排放源分担率为 93.17%, 非农业排放源分担率为 6.83%.
- 2) 畜禽养殖和农田生态系统是 2019 年河北省农业源中最主要的氨排放源. 其中, 畜禽养殖源中肉禽、蛋鸡和肉牛氨的排放量最大, 农田生态系统源中氮肥施用对氨的排放量最大, 其中尿素氨的排放量最大. 此外, 废弃物处理是氨排放源中排放量最小的人为源.
- 3) 2019 年河北省人为源氨排放量最大的城市是石家庄市, 占全省排放总量的 15.21%, 氨排放量最小的城市是廊坊市, 占全省排放总量的 4.33%.
- 4) 从空间分布来看, 氨排放总量较大的地区主要集中在河北省南部及中部地区, 其中石家庄市氨排放量最高, 为 116.73 kt. 氨排放强度较高的地区主要集中在河北省南部及中南部, 其中石家庄市氨排放强度最大, 为 8.03 t·km⁻².

参考文献 (References)

[1] GOEBES M D, STRADER R, DAVIDSON C. An ammonia emission inventory for fertilizer application in the United States[J]. *Atmospheric Environment*, 2003, 37(18): 2539-2550.

[2] 王艳, 段学军. 氨污染: 被忽视的雾霾元凶 [J]. 生态经济, 2017, 33(6): 6-9.
WANG Y, DUAN X J. Ammonia pollution: The neglected culprit of smog [J]. *Ecological Economy*, 2017, 33(6): 6-9 (in Chinese).

[3] KANG Y N, LIU M X, SONG Y, et al. High-resolution ammonia emissions inventories in China from 1980 to 2012[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(4): 2043-2058.

[4] 杨旭. 京津冀地区空气污染特征与气象成因及其预报研究 [D]. 兰州: 兰州大学, 2017.
YANG X. Research on characteristics of air pollution and its meteorological reasons and forecasting method in Beijing-Tianjin-Hebei region [D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2017 (in Chinese).

[5] 廖文玲, 刘明旭, 黄昕, 等. 2013—2018 年中国县级氨排放清单估算 [J]. *中国科学: 地球科学*, 2022, 52(7): 1345-1356.
LIAO W L, LIU M X, HUANG X, et al. Estimation of ammonia emission inventory at County level in China from 2013 to 2018[J]. *Scientia Sinica (Terrae)*, 2022, 52(7): 1345-1356 (in Chinese).

[6] 董文焯, 邢佳, 王书肖. 1994—2006 年中国人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 (in Chinese).

[7] 朱聪聪. 河北省空气质量及影响因素实证研究 [D]. 沈阳: 辽宁大学, 2020.
ZHU C C. Empirical study on air quality and influencing factors in Hebei Province[D]. Shenyang: Liaoning University, 2020 (in Chinese).

[8] 程龙. 京津冀农业氨排放清单建立及其控制方案研究 [D]. 北京: 北京工业大学, 2018.
CHENG L. Establishment and contral scheme of agricultural ammonia emission inventory in Beijing Tianjin Hebei region[D]. Beijing: Beijing University of Technology, 2018 (in Chinese).

[9] WANG C, YIN S S, BAI L, et al. High-resolution ammonia emission inventories with comprehensive analysis and evaluation in Henan, China, 2006–2016[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, 193: 11-23.

[10] 环保部. 大气氨源排放清单编制技术指南(试行)[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2014.
Ministry of Environmental Protection. Technical Guidelines for the Preparation of Atmospheric Ammonia Emission Inventory (Trial) [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2014 (in Chinese).

[11] 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 emission and concentration in the atmosphere over China[J]. *Scientia Atmospherica Sinica*, 1997, 21(5): 590-598 (in Chinese).

[12] 沈兴玲. 广东省高分辨率人为源氨排放清单建立及控制成效研究 [D]. 广州: 华南理工大学, 2014.
SHEN X L. A highly resolved anthropogenic ammonia emission inventory in Guangdong Province and assessment of control strategies[D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2014 (in Chinese).

[13] 刘波, 童仪, 李安, 等. 长江三角洲地区畜禽养殖业氨排放清单研究 [J]. 生态与农村环境学报, 2018, 34(11): 1042-1049.
LIU B, TONG Y, LI A, et al. Study on ammonia emission inventory of livestock over Yangtze River Delta[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2018, 34(11): 1042-1049 (in Chinese).

[14] 河北省统计局. 河北省统计年鉴 2020[M]. 北京: 中国统计出版社, 2020.
Hebei Bureau of Statistics. Hebei Statistical Yearbook 2020[M]. Beijing: China Statistical Press, 2020 (in Chinese).

[15] 方利江, 宋文婷, 杨一群, 等. 2008—2020 年京津冀及周边地区人为源氨排放清单研究 [J]. 环境科学研究, 2023, 36(3): 500-509.
FANG L J, SONG W T, YANG Y Q, et al. Inventory of anthropogenic ammonia emissions in Beijing-Tianjin-Hebei and its surrounding areas from 2008 to 2020[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2023, 36(3): 500-509 (in Chinese).

[16] 张美双, 栾胜基. NARSES 模型在我国种植业氮肥施用氨排放估算中的应用研究 [J]. 安徽农业科学, 2009, 37(8): 3583-3586.
ZHANG M S, LUAN S J. Application of NARSES in evaluation of ammonia emission from nitrogen fertilizer application in planting system in China[J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2009, 37(8): 3583-3586 (in Chinese).

[17] ZHANG Y S, LUAN S J, CHEN L L, et al. Estimating the volatilization of ammonia from synthetic nitrogenous fertilizers used in China[J]. *Journal of Environmental Management*, 2011, 92(3): 480-493.

[18] 赵睿东, 于兴娜, 侯新红, 等. 浙江省人为源氨排放清单建立及分布特征 [J]. 环境科学, 2020, 41(9): 3976-3984.
ZHAO R D, YU X N, HOU X H, et al. Establishment and spatial distribution of anthropogenic ammonia emission inventory in Zhejiang Province [J]. *Environmental Science*, 2020, 41(9): 3976-3984 (in Chinese).

[19] 国家发展改革委, 农业部, 财政部. 关于编制“十三五”秸秆综合利用实施方案的指导意见 [EB/OL].
National Development and Reform Commission, Ministry of Agriculture, Ministry of Finance. Guidance on the preparation of “13th Five-Year” straw comprehensive utilization implementation plan[EB/OL].

[20] 方利江, 杨一群, 叶观琼. 浙江省 2008—2018 年人为源氨排放清单及分布特征 [J]. 环境科学, 2022, 43(10): 4380-4391.

- FANG L J, YANG Y Q, YE G Q. Inventory and distribution characteristics of anthropogenic ammonia emissions in Zhejiang Province from 2008 to 2018[J]. *Environmental Science*, 2022, 43(10): 4380-4391 (in Chinese).
- [21] 高榕. 山东省农业源氨排放清单及其减排潜力研究 [D]. 济南: 济南大学, 2018.
GAO R. Inventories of the ammonia emission from agriculture and the potential mitigation for future emission [D]. Jinan: University of Jinan, 2018 (in Chinese).
- [22] 孙剑峰. 中国农作物秸秆露天燃烧排放大气污染物的实验室模拟 [D]. 济南: 山东大学, 2016.
SUN J F. A laboratory study on emission characteristics of gaseous and particulate pollutants emitted from agricultural crop residue open burning in China [D]. Jinan: Shandong University, 2016 (in Chinese).
- [23] 杨俊. 广州市机动车尾气中氨气的排放因子研究 [D]. 广州: 暨南大学, 2011.
YANG J. Study on ammonia emission factors of vehicles exhaust in Guangzhou city [D]. Guangzhou: Jinan University, 2011 (in Chinese).
- [24] 车汶蔚, 郑君瑜, 钟流举. 珠江三角洲机动车污染物排放特征及分担率 [J]. *环境科学研究*, 2009, 22(4): 456-461.
CHE W W, ZHENG J Y, ZHONG L J. Vehicle exhaust emission characteristics and contributions in the Pearl River Delta region [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2009, 22(4): 456-461 (in Chinese).
- [25] 冯小琼, 王幸锐, 何敏, 等. 四川省 2012 年人为源氨排放清单及分布特征 [J]. *环境科学学报*, 2015, 35(2): 394-401.
FENG X Q, WANG X R, HE M, et al. A 2012-based anthropogenic ammonia emission inventory and its spatial distribution in Sichuan Province [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, 35(2): 394-401 (in Chinese).
- [26] 高超. 河北省畜牧业发展的空间差异研究 [J]. *黑龙江畜牧兽医*, 2019(8): 28-31, 168.
GAO C. Study on spatial difference of animal husbandry development in Hebei Province [J]. *Heilongjiang Animal Science and Veterinary Medicine*, 2019(8): 28-31, 168 (in Chinese).
- [27] 侯新红, 于兴娜, 沈丽, 等. 2013—2017 年江苏省人为源氨排清单的建立及特征 [J]. *环境科学*, 2019, 40(11): 4862-4869.
HOU X H, YU X N, SHEN L, et al. Establishment and characteristics of an artificial ammonia emissions inventory in Jiangsu Province from 2013 to 2017 [J]. *Environmental Science*, 2019, 40(11): 4862-4869 (in Chinese).
- [28] 王康宏, 沈丽, 赵睿东. 2006—2017 年安徽省人为源氨排放清单及特征 [J]. *大气科学学报*, 2020, 43(03): 547-556.
WANG K H, SHEN L, ZHAO R D. Anthropogenic ammonia emission inventory and its spatial distribution in Anhui Province from 2006 to 2017 [J]. *Transactions of Atmospheric Sciences*, 2020, 43(03): 547-556 (in Chinese).
- [29] 王琛, 尹沙沙, 于世杰, 等. 河南省 2013 年大气氨排放清单建立及分布特征 [J]. *环境科学*, 2018, 39(3): 1023-1030.
WANG C, YIN S S, YU S J, et al. A 2013-based atmospheric ammonia emission inventory and its characteristic of spatial distribution in Henan Province [J]. *Environmental Science*, 2018, 39(3): 1023-1030 (in Chinese).
- [30] 赵国梁, 常景云, 成杰民, 等. 2008—2018 年山东省人为源氨排放清单研究 [J]. *环境污染与防治*, 2021, 43(2): 259-265.
ZHAO G L, CHANG J Y, CHENG J M, et al. Anthropogenic ammonia emission inventory in Shandong Province from 2008 to 2018 [J]. *Environmental Pollution & Control*, 2021, 43(2): 259-265 (in Chinese).