

浙江省大气多环芳烃排放清单构建

王倩茹 夏忠欢*

南京师范大学

DOI:10.12238/eep.v8i6.2717

[摘要] 以中国综合经济水平高的浙江省为研究对象,对16种重点控制的多环芳烃的排放进行研究。2022年浙江省16种多环芳烃总排放量为2018.67吨,其中7种致癌性多环芳烃总排放量为304.13吨,占总排放量的15.07%;浙江省人均排放量和排放密度高于全国平均密度;多环芳烃的主要来源是家庭燃煤和汽油的燃烧,分别占总排放量的36.5%和42.4%;浙江省各市(共11个)多环芳烃含量从杭州的413.05t到舟山的42.51t不等;在16种多环芳烃中,低分子(双环和三环)化合物占多数(70.13%)。2013—2022年浙江省16种多环芳烃的排放量基本呈稳步增长趋势。

[关键词] 多环芳烃; 排放清单; 浙江省; 不确定性分析

中图分类号: X-652 文献标识码: A

Construction of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Emission Inventory in Zhejiang Province

Qianru Wang Zhonghuan Xia*

Nanjing Normal University

[Abstract] Taking Zhejiang Province, which has a high comprehensive economic level in China, as the research object, this study investigates the emissions of 16 key polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). In 2022, the total emissions of 16 PAHs in Zhejiang Province amounted to 2,018.67 tons, with the total emissions of 7 carcinogenic PAHs reaching 304.13 tons, accounting for 15.07% of the total emissions. Zhejiang Province's per capita emissions and emission density are higher than the national average. The primary sources of PAHs are the combustion of household coal and gasoline, accounting for 36.5% and 42.4% of total emissions, respectively. Among the 16 PAHs, low-molecular-weight (dicyclic and tricyclic) compounds constitute the majority (70.13%). The polycyclic aromatic hydrocarbon content in each city in Zhejiang Province (11 cities in total) ranged from 413.05 t in Hangzhou to 42.51 t in Zhoushan. From 2013 to 2022, the emissions of the 16 PAHs in Zhejiang Province showed a steady upward trend.

[Key words] polycyclic aromatic hydrocarbons; emission inventory; Zhejiang Province; uncertainty analysis

引言

多环芳烃(PAHs)是一类具有2至7个融合芳香环的化学物质,是一种融合的芳香环组成的中性、非极性有机化合物,由于其致癌性和致突变性,美国环境保护署(US-EPA)已将16种多环芳烃列入优先控制清单,因其致癌性和在大气中的广泛分布而受到广泛关注,这16种多环芳烃包括7种致癌性多环芳烃BaA(4环)、Chr(4环)、BbF(5环)、BkF(5环)、BaP(5环)、DahA(5环)、IcdP(6环)^[1]。多环芳烃广泛存在于大气、土壤和水体中,其衍生物的来源多种多样,包括室外生物质秸秆的不完全燃烧、机动车排放、煤炭的燃烧^[2]以及燃料的不完全燃烧、垃圾或其他有机物质,如烟草和植物材料的燃烧。同时,森林火灾和火山爆发等也可以产生多环芳烃污染。

研究表明,中国的多环芳烃总排放量为25300吨,是世界上

多环芳烃排放量最高的国家,2004年全球多环芳烃排放量中约22%来自中国。近年来,许多工业化国家和发展中国家环境中的多环芳烃浓度有所增加^[3]。目前,越来越多的人认为,主要的人为多环芳烃排放源是能源和工业生产过程中煤炭的不完全燃烧产生的。此外,饮食摄入多环芳烃是人类接触多环芳烃的主要来源,最新的流行病学研究表明,饮食接触多环芳烃可能会导致某些患癌风险性增加。多环芳烃是普遍存在的环境污染物,在各种环境介质中都有发现,包括土壤、沉积物等。大气过程主要负责多环芳烃的运输和沉积,这些多环芳烃粘附在大气气溶胶和降尘中,空气中颗粒物的沉积导致多环芳烃从空气转移到地球表面^[4]。因此,环境空气已经受到严重的多环芳烃污染。已有研究观察到,多环芳烃在环境中的暴露会增加肺癌风险。由于严重的空气污染,肺癌已分别成为中国男性和女性癌症死亡的第

2013-2022年浙江省多环芳烃排放量(单位:吨)

Year	Biomass burning			coal			Oil			Natural gas	Total
	Rice	Wheat	Corn	Domestic	Industrial	Coking	Transport		Industrial		
							Petrol	Diesel			
2022	8.66	0.41	0.06	737.56	104.65	128.48	854.91	113.52	46.47	23.95	2018.67
2021	11.21	0.46	0.09	827.00	107.38	147.61	801.05	116.36	43.90	23.95	2079.01
2020	13.54	0.45	0.11	880.02	109.20	150.64	699.70	104.41	38.44	17.96	2014.47
2019	15.85	0.44	0.16	924.13	111.93	150.59	675.77	99.90	37.09	14.79	2030.66
2018	18.86	0.57	0.12	685.75	114.66	138.84	606.31	92.56	33.38	17.96	1709.02
2017	19.89	0.75	0.15	702.08	117.39	142.15	558.47	83.24	30.68	13.97	1668.75
2016	29.63	0.51	0.22	680.06	119.21	197.61	506.07	77.64	27.88	11.71	1650.52
2015	31.85	0.77	0.24	695.63	121.94	202.13	463.93	63.15	25.27	10.38	1615.30
2014	35.58	0.75	0.26	708.12	124.67	225.22	427.62	67.86	23.64	10.64	1624.36
2013	38.00	0.73	0.25	698.91	127.40	220.59	393.91	69.73	22.03	7.49	1579.03

四大和第五大原因。人类患肺癌的原因一直与吸入的多环芳烃有关,暴露于这些多环芳烃中会增加患皮肤癌和肺癌等疾病的风险^[5]。鉴于多环芳烃普遍存在于环境中以及与其接触导致的健康风险,本文的目的是研究大气中多环芳烃对人体的健康风险。迄今为止,关于多环芳烃排放及其对不同人群健康风险的研究有限。因此,研究多环芳烃的排放和健康风险评价对有效的环境管理至关重要。

浙江省地处中国东南沿海,长江三角洲南翼。浙江省人均地区生产总值达到中上等发达国家和地区水平,是唯一一个所有设区市居民收入都超过全国平均水平的省份。

因此,掌握浙江省多环芳烃排放现状及分布特征,分析其历史变化非常必要。

1 排放清单的建立

根据16种重点多环芳烃的排放因子、能源消费结构和组成,得出了当地16种重点多环芳烃的排放清单。

中国相应的排放因子(每单位质量燃料燃烧排放的多环芳烃质量)已在以往的研究中提出^[3],并在本研究中采用。

浙江省多环芳烃的主要排放源分为四大类:生物质秸秆燃烧、煤炭燃烧、油的燃烧和天然气。多环芳烃排放量计算如下:

$$E_{i,j,k} = EF_{i,j,k} \times EA_{i,j,k} \quad E_{i,j} = \sum_k E_{i,j,k}$$

$$E_i = \sum_j E_{i,j} \quad E_t = \sum_i E_{i,j} \quad A_k = P_k * N_k * R * S$$

其中,E为PAHs排放量,如家庭用煤量、工业用煤量,单位:吨;EF为排放因子(单位:mg/kg);EA为排放活动量;E_t为排放总量,i为地区(市),i=11;j为能源类型,j=1,2...10;k为PAHs类型,k=1,2...16。A是使用多环芳烃排放源的数量,(单位:吨);P为主要作物产量,(单位:吨);N为作物粒草比(无单位);R为燃

烧比(无单位);S为燃烧速率(无单位)。

浙江省主要农作物产量可从国家统计局-浙江省统计年鉴中获取。据文献可知,水稻、小麦、玉米的谷草比分别为:0.98、1.25和0.73,燃烧效率分别为0.89、0.86和0.92^[6]。根据浙江省人民政府数据:2012年、2018年和2022年,浙江省秸秆综合利用率分别为78.09%,87.69%和94.17%,将年份与秸秆综合利用率进行线性拟合,发现二者具有较好的相关性(R²=0.9981),因此可以推导出2013-2022年间浙江省不同年份秸秆综合利用率,从而得到秸秆燃烧比例。使用回归模型,估算交通用油和工业用油的消耗量,发现其与第二和第三产业GDP总量(GDP₂₃)存在一定的线性关系。

2 能源消耗数据

2013-2022年浙江省各类能源消费数据中,生物质燃烧消耗量无太大变化;工业用煤量和炼焦煤量减少,可能是由于产业结构调整与政府的环保政策;汽油、柴油、工业用油量使用量激增,可见Pahs排放活跃度和区域发展与政策有关。PAHs能源消耗数值整体越来越大,即环境中PAHs污染越发严重。

其中,天然气从2013年的56.3亿立方米增加到2022年的180亿立方米,增长219.72%,增长最快;其次为汽油消耗量,从1461.6×10⁴增长到3172.2×10⁴,增幅为117.04%。2013-2022年,其他排放源(小麦、生活用煤、柴油和工业用油)的增长量分别为98.92%、32.21%、62.80%、110.95%。

浙江省多环芳烃排放量,从2013年的1579.03t排放量至2022年的2018.67t排放量,总排放量增加了27.84%,主要是由于经济的发展,机动车消费量的快速增长,汽油消耗量显著上升。在这十年中,多环芳烃排放量增幅最大的是2018-2019年,增幅为18.82%;最小的是2016-2017年,增幅仅有1.09%。

3 2022年排放总量和源概况

2022年,浙江省16种多环芳烃年大气排放总量为2018.67吨,相当于每年人均排放39.5g,每平方米19.83kg。

据估计,2013年中国多环芳烃总排放量为83378t,虽然浙江

省面积小,但其多环芳烃排放量占全国总排放量的2.42%,与全国平均排放数据相比,浙江省的排放密度是全国平均排放密度的1.3倍(8.7kg/m²)。从不同的多环芳烃排放量分析,Phe排放量最高(344.51吨,占总排放量的17.07%),其次是Nap(336.31吨,占总排放量的16.66%)。多环芳烃排放量最低的是DahA(22.51吨),仅占总排放量的1.12%。

据浙江省各种源对总排放量的相对贡献,浙江省汽油排放量为854.91吨,排放比例居首位,无疑是主要的多环芳烃排放源,占总排放量的42.35%。家庭用煤虽少,但其排放系数高,造成排放量仅次于汽油(737.56吨,占总排放量的36.54%)。

结合多环芳烃的排放源数量,可以得出结论,天然气作为日常生活中的主要能源,在大量使用时并不比其他来源产生更多的多环芳烃。2022年,天然气排放的多环芳烃仅为23.95吨,仅占年排放总量的1.19%。2022年7种致癌性多环芳烃(BaA、Chr、BbF、BkF、BaP、DahA、IcdP)总排放量为304.13吨,占总排放量的15.07%。2022年,天然气排放的致癌性多环芳烃仅占致癌性多环芳烃排放总量的0.1%,是中国目前使用的能源中污染物排放量最低的能源。因此,天然气可以用来取代额外的传统能源(如煤、石油),以减少空气污染物的产生。

浙江省不同城市的多环芳烃排放量因支撑经济的产业而异。排放量最高的是杭州市,其2022年的PAHs排放量为413.05吨,占浙江省总排放量的20.46%。宁波的年排放量为327.93吨,占总排放量的16.24%,其次是温州(268.48吨,占13.30%)。排放量最低的城市为舟山(42.51吨,占2.11%)。作为浙江省省会,杭州市由于经济等各方面因素,排放量排名全省第一。

不同市区由于其主要支撑经济的不同,PAHs排放源贡献比例也呈现一定的差异性。为更具针对性地提出环境保护措施及建议,本研究分析了不同城市PAHs排放源贡献量。11个城市中,作为旅游业较发达地区,交通用油-汽油燃烧产生的PAHs占该省份总PAHs排放量的较大比例,部分城市排放汽油所产生的PAHs排放量占总排放量的50%以上,如杭州(50.5%)、宁波(52.9%)。丽水市(51.1%)家庭燃煤在各市区中占比最大。

将多环芳烃排放量与经济和人口分别进行关联,发现排放量与GDP₂₃(R²_(GDP23)=0.92521)及人口(R²_(population)=0.84585)相关性高。因此,我们可以控制人口或改善经济结构减少多环芳烃排放;此外,我们还可以结合经济、能源等综合措施减少多环芳烃的排放。

4 结论

浙江省大气中多环芳烃的排放密度接近全国平均水平。对多环芳烃排放总量贡献最大的是汽油,最小的是天然气。在浙江省的城市中,杭州的多环芳烃排放量最大,而舟山最少。PAHs排放以低分子量化合物为主,其中Phe排放量最大。因此,需要优化能源结构,推动清洁能源替代家庭燃煤,加强机动车尾气治理,从源头减少PAHs排放;深化监测与研究,建立PAHs动态排放清单,加强致癌性PAHs的毒理与健康风险评估,完善环境质量标准;最后,完善PAHs排放法规,提升公众环保意识,倡导绿色生活方式。未来研究可结合碳中和目标,探索PAHs减排与碳减排的协同路径,为浙江省乃至全国持久性有机污染物治理提供科学依据。

[参考文献]

[1]Liu W, Xia Z, Yang HJGJ. Emission inventory and distribution characteristics of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in a coking industry city in Northern China. 2017;51(6):485-494.

[2]Feng T-t, Yang Y-s, Yang Y-h, et al. Application status and problem investigation of distributed generation in China: The case of natural gas, solar and wind resources. 2017;9(6):1022.

[3]Yan D, Wu S, Zhou S, et al. Characteristics, sources and health risk assessment of airborne particulate PAHs in Chinese cities: A review. 2019;248:804-814.

[4]Zhang Y, Tao S, Cao J, et al. Emission of polycyclic aromatic hydrocarbons in China by county. 2007;41(3):683-687.

[5]Streets D, Yarber K, Woo JH, et al. Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. 2003;17(4).

[6]张彦旭.中国多环芳烃的排放、大气迁移及肺癌风险[D].北京大学,2010.

作者简介:

王倩茹(2000--),女,汉族,江苏人,在读硕士研究生,南京师范大学,研究方向:多环芳烃污染及其健康危害。

*通讯作者:

夏忠欢(1978--),男,汉族,江西人,博士后,副教授,南京师范大学,研究方向:环境污染与人体健康。