

# 面向源清单校验的污染气体 排放通量遥测技术

谢品华、李昂、胡肇焜

---

2018年9月27日

---



**研究背景**



**研究基础**



**研究方法**



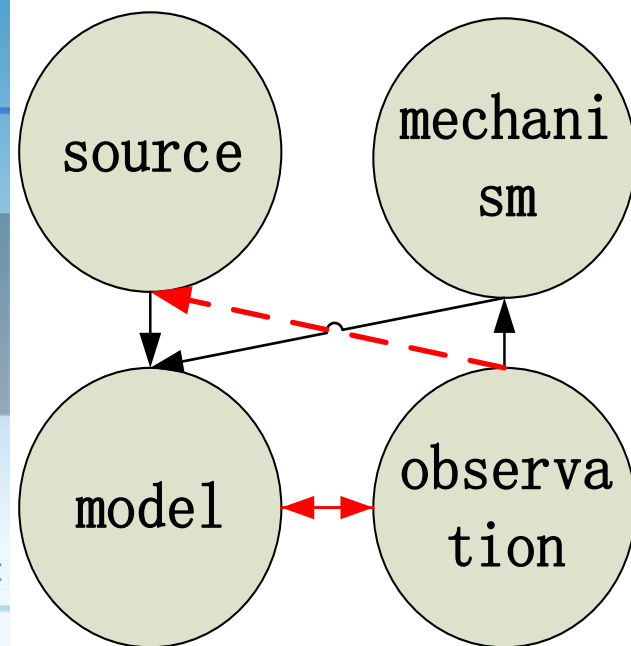
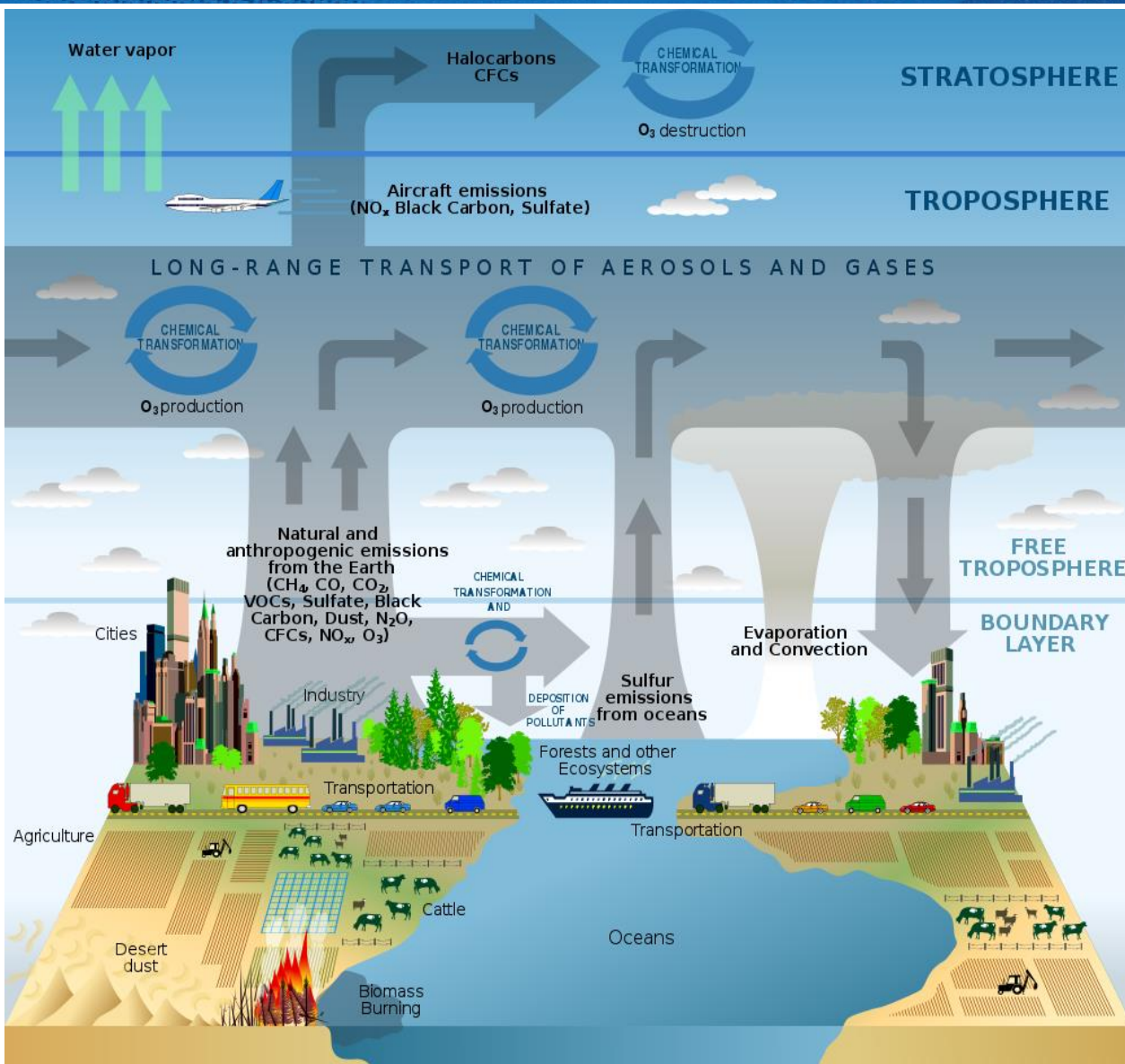
**方法应用**



**总结展望**

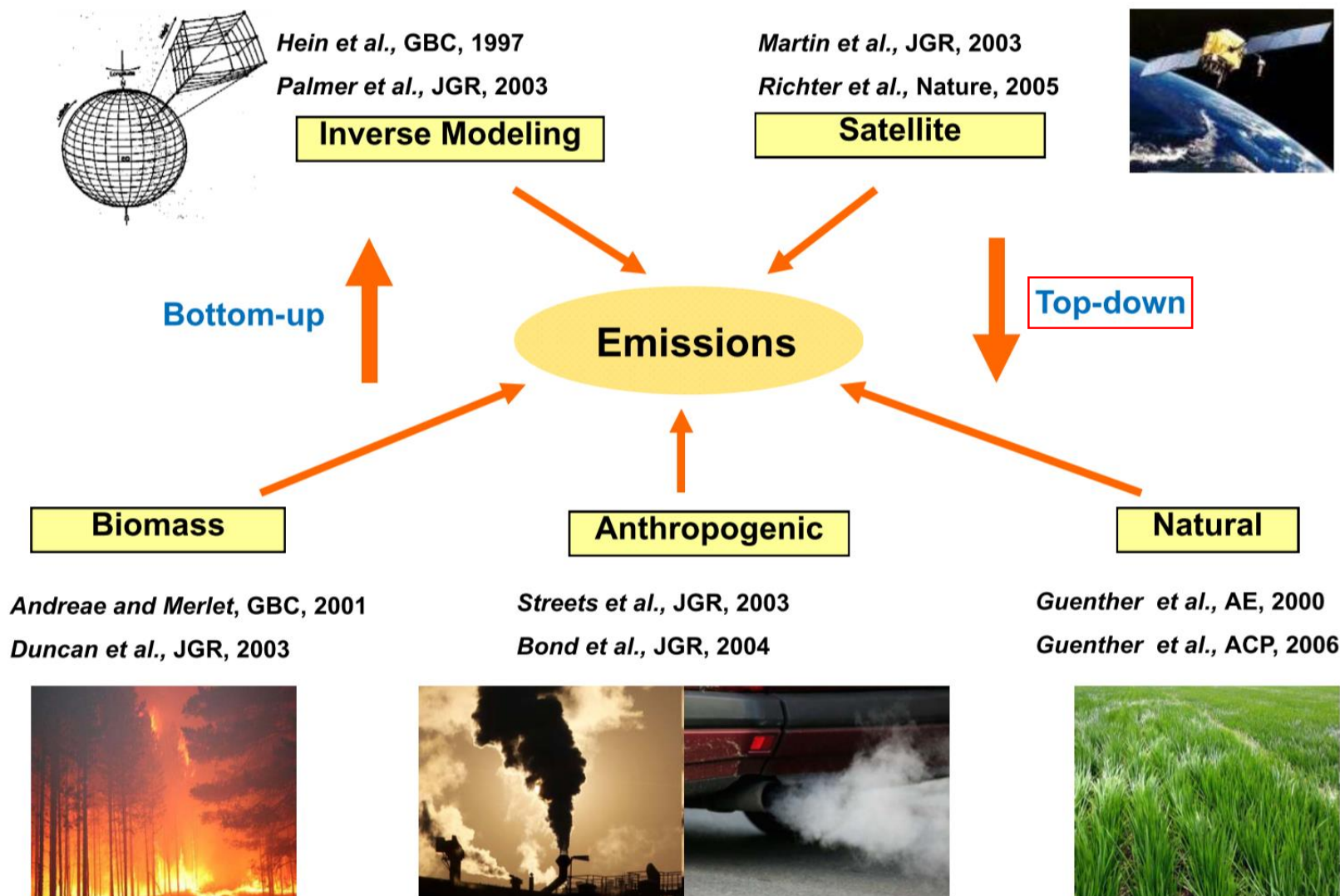
---

# 研究背景



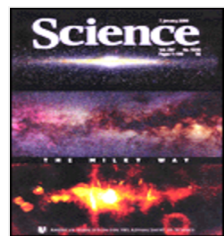
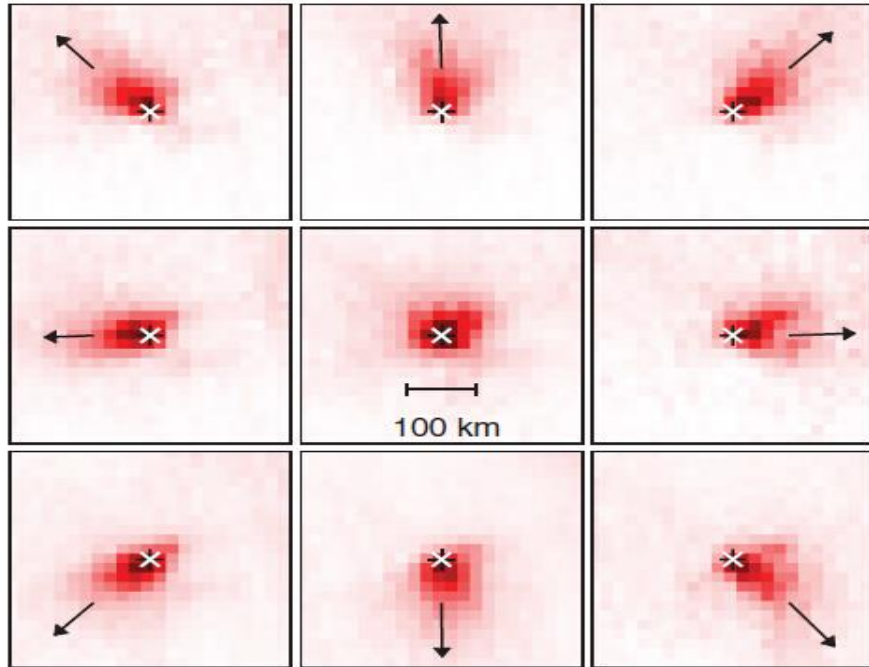
大气化学的研究一般可以概括为以下几个方面：污染源、化学机理、模型、观测。在所有这些方向上有许多交叉研究。然而，直接由观测数据获取排放数据的相关研究较为有限。

# 研究背景





## Top-Down Emissions



### JOURNAL ARTICLE

#### Megacity Emissions and Lifetimes of Nitrogen Oxides Probed from Space

Steffen Beirle, K. Folkert Boersma, Ulrich Platt, Mark G. Lawrence and Thomas Wagner

*Science*

New Series, Vol. 333, No. 6050 (23 September 2011), pp. 1737-1739

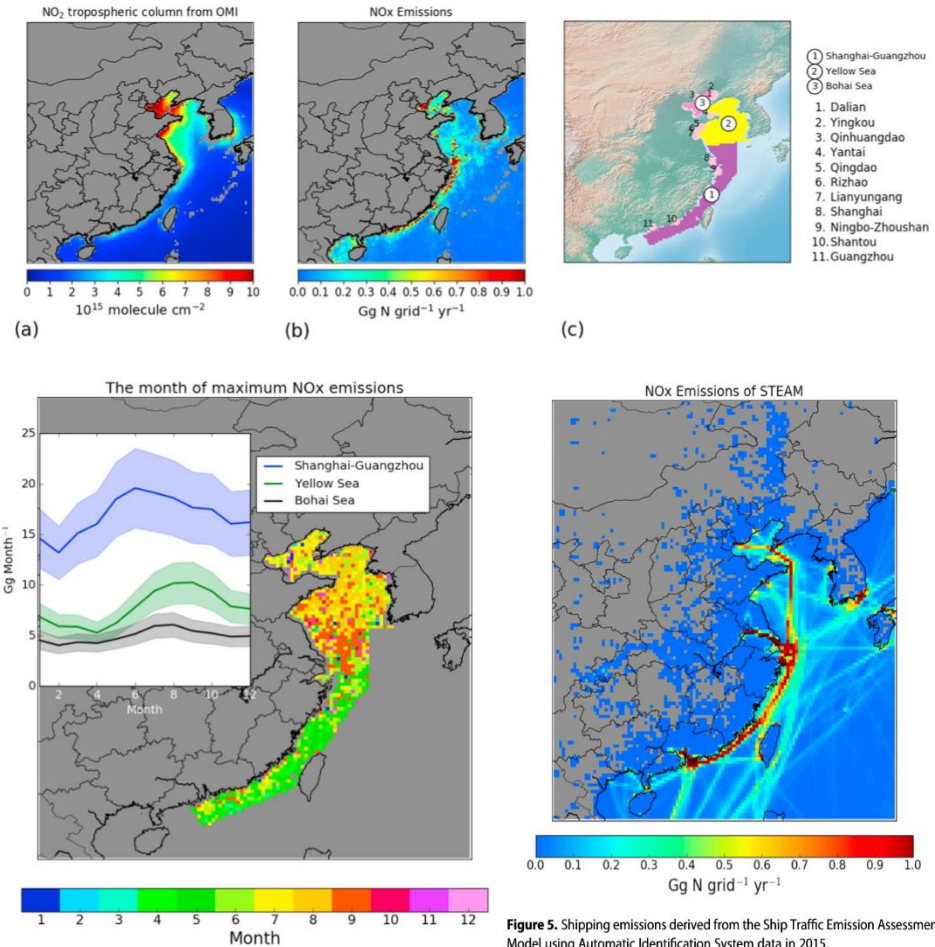


Figure 5. Shipping emissions derived from the Ship Traffic Emission Assessment Model using Automatic Identification System data in 2015.

Ding等2017年利用卫星数据、航运数据结合化学传输模型迭代优化获取了中国海域NO<sub>x</sub>排放。

Beirle等2011采用指数函数卷积高斯函数形式拟合获得孤立城市源利雅得NO<sub>2</sub>寿命以及NO<sub>x</sub>排放通量。

# 研究背景



源清单是各类化学模式最重要的输入

如何获取散乱源、未知源排放？

如何有效评估无组织源？

如何评估管控期间清单？

是否可能实时获取排放清单？

传统的“Bottom-up”源清单面临的几个问题：

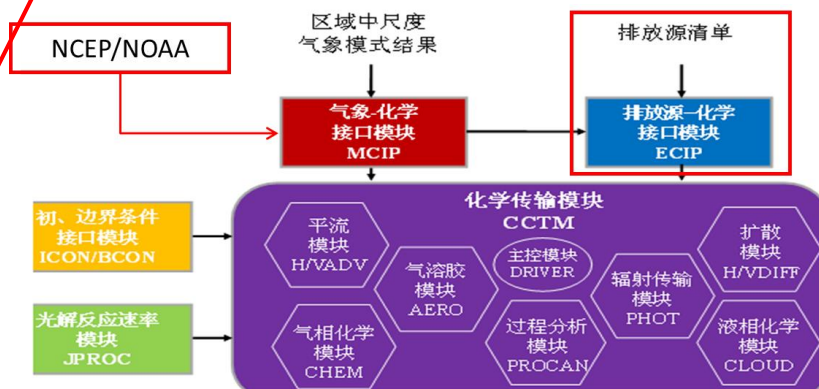
- ◆ 所依赖的统计数据**滞后**
- ◆ 无组织源等排放因子不易确定
- ◆ 需要**海量**人力投入
- ◆ 不可避免**遗漏**污染源

源清单建立几个重要的发展方向：

- ◆ **未知污染源**
- ◆ **实时动态**
- ◆ **高时空分辨**

现有的“Top-down”源清单建立方法存在的问题：

- ◆ 难以获取散乱源未知源信息
- ◆ 卫星方法难以解析重污染情况下的排放信息
- ◆ 模型方法依赖“原始清单”
- ◆ 空间分辨率不高



研究背景

研究基础

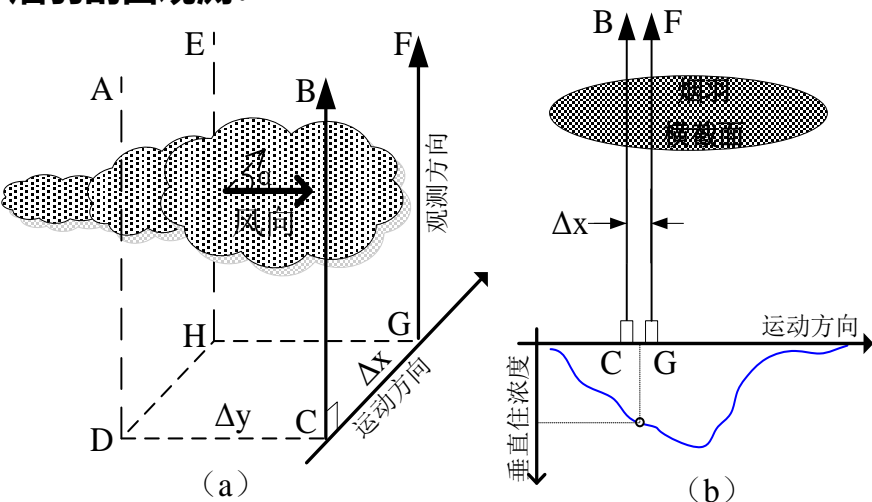
研究方法

方法应用

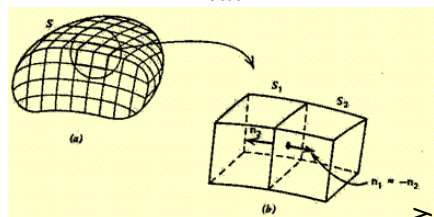
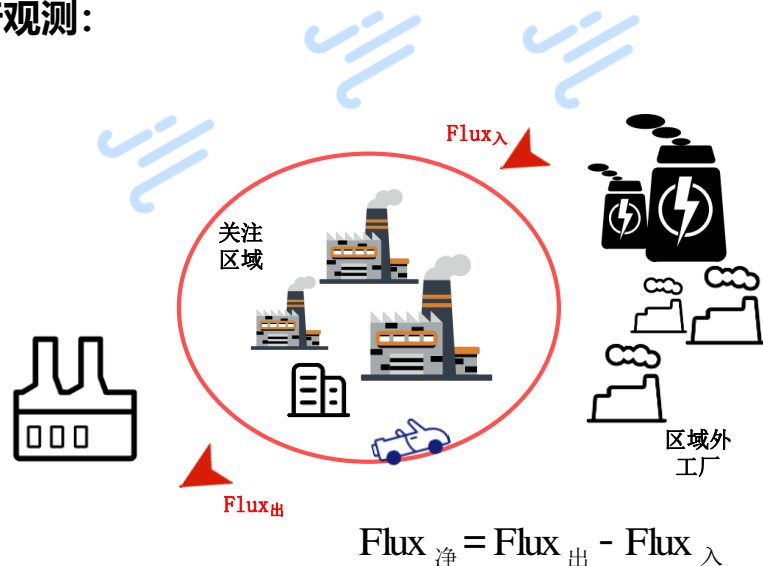
总结展望

自上而下的方法中，除卫星遥感与模型方法外，可以利用**车载遥测数据**获取实时污染源排放数据。

烟羽剖面观测：

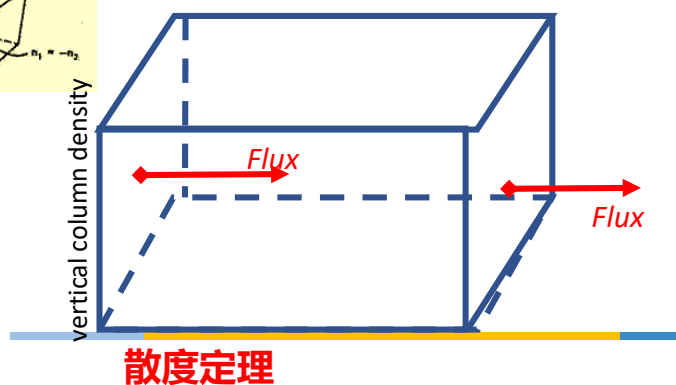


绕行观测：



$$\begin{aligned} \text{div} \mathbf{F}(x, y, z) &= F_x \Delta z \Delta y \Big|_{x-x-\frac{\Delta x}{2}}^{x-x+\frac{\Delta x}{2}} - F_x \Delta z \Delta y \Big|_{x-x-\frac{\Delta x}{2}}^{x-x+\frac{\Delta x}{2}} \\ &+ F_y \Delta z \Delta x \Big|_{y-y-\frac{\Delta y}{2}}^{y-y+\frac{\Delta y}{2}} - F_y \Delta z \Delta x \Big|_{y-y-\frac{\Delta y}{2}}^{y-y+\frac{\Delta y}{2}} \\ &+ F_z \Delta y \Delta x \Big|_{z-z-\frac{\Delta z}{2}}^{z-z+\frac{\Delta z}{2}} - F_z \Delta y \Delta x \Big|_{z-z-\frac{\Delta z}{2}}^{z-z+\frac{\Delta z}{2}} \\ &= \frac{\partial F_x}{\partial x} + \frac{\partial F_y}{\partial y} + \frac{\partial F_z}{\partial z} = \nabla \cdot \mathbf{F} \end{aligned}$$

$$Flux_{i,j} = VCD_{i,j} V_{车,j} V_{风\perp,j} \Delta t$$



	车载DOAS	车载SOF	车载Lidar
测量内容	SO <sub>2</sub> 、NO <sub>2</sub> 、HCHO等柱浓度	VOCs等柱浓度	消光系数
辅助数据	风场	风场	风场, 温湿压
车速要求	30-100km/h	10-40km/h	30-100km/h
存在问题	夜间无法测量	夜间无法测量	100m以下存在盲区

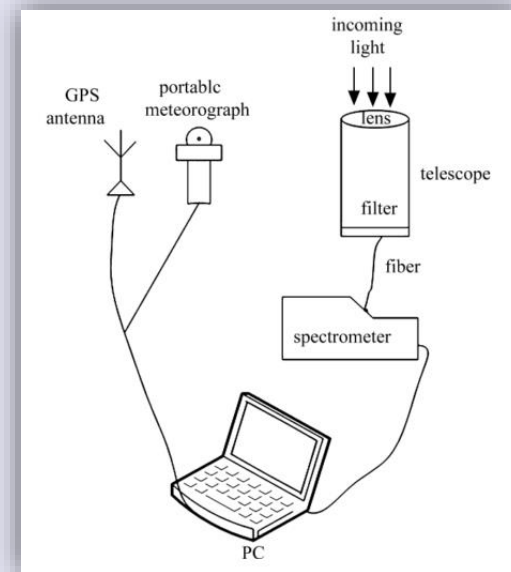


# 研究基础\_车载DOAS系统

## First generation

$\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_2$

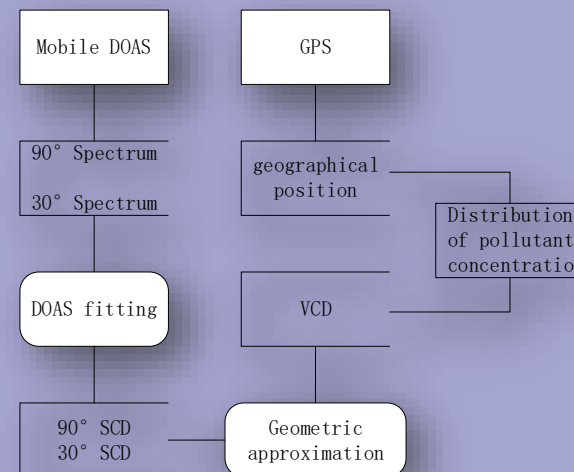
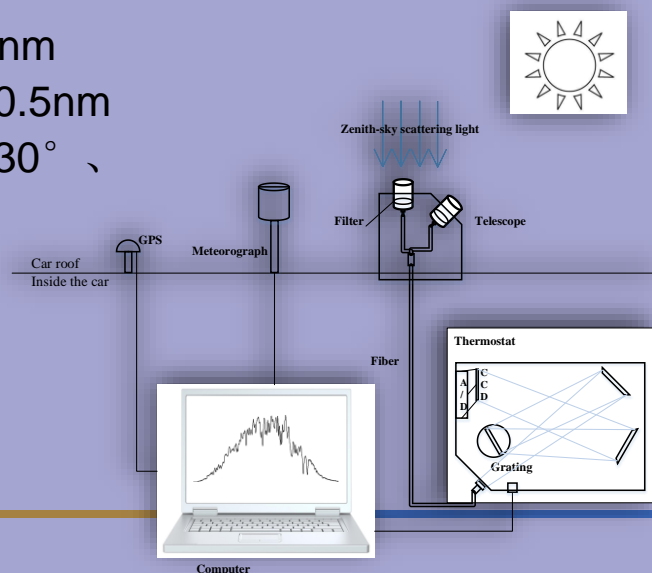
- ◆ wave band: 290-420nm
- ◆ spectral resolution : 0.5nm
- ◆ Observation angle :  $90^\circ$



## Second generation

$\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{HCHO}$

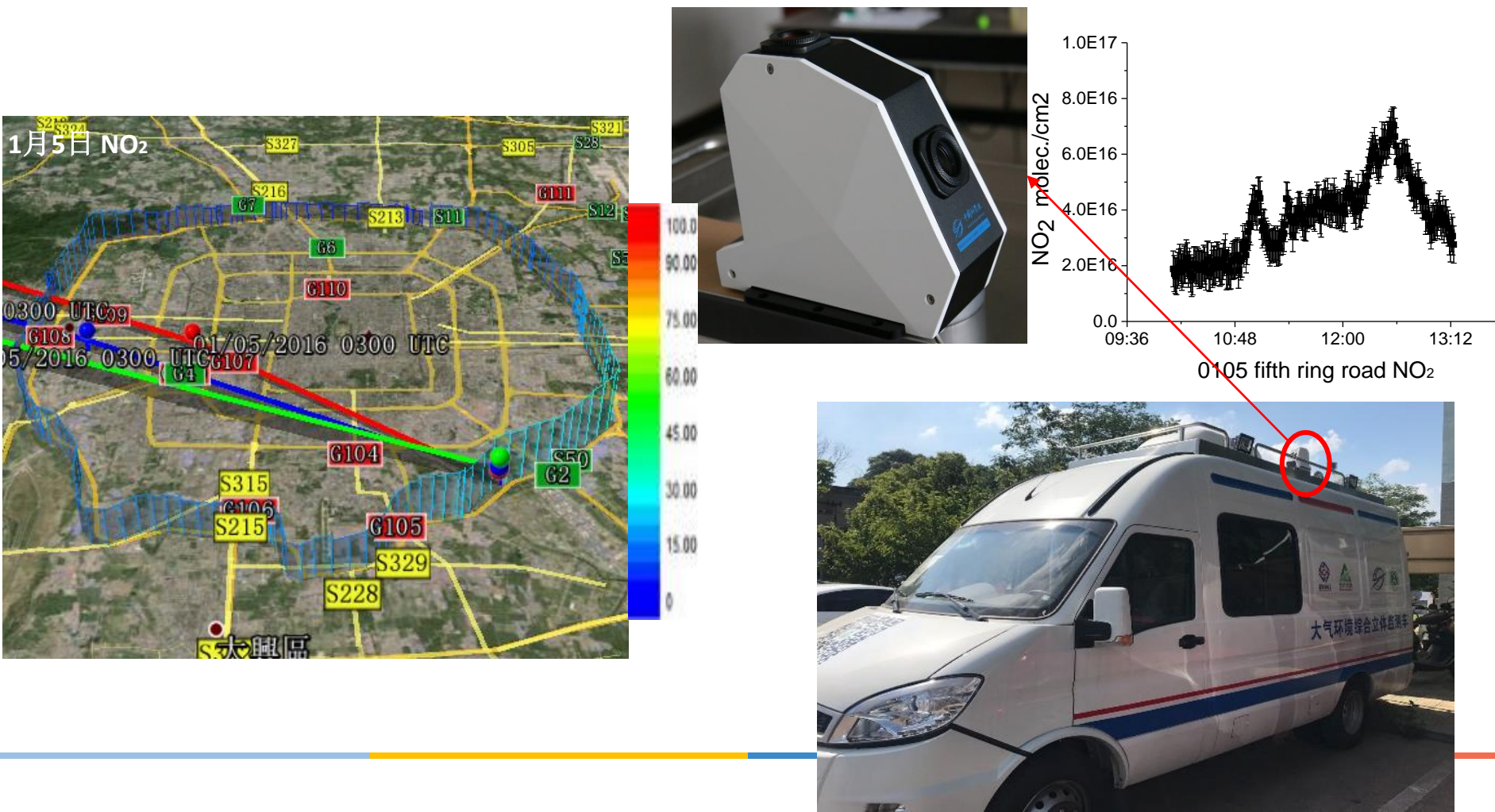
- ◆ wave band: 290-420nm
- ◆ spectral resolution : 0.5nm
- ◆ Observation angle :  $30^\circ$  、 $90^\circ$



# 研究基础\_车载多光路DOAS系统集成

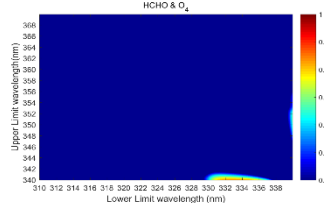
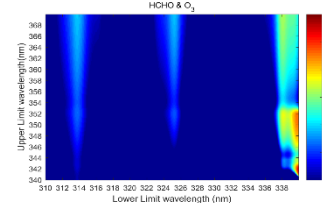
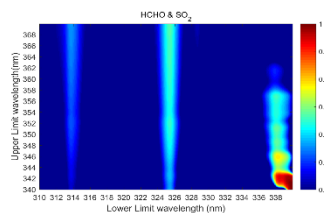
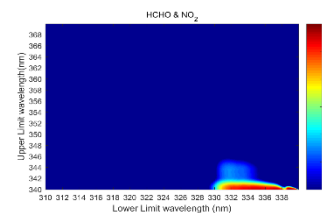
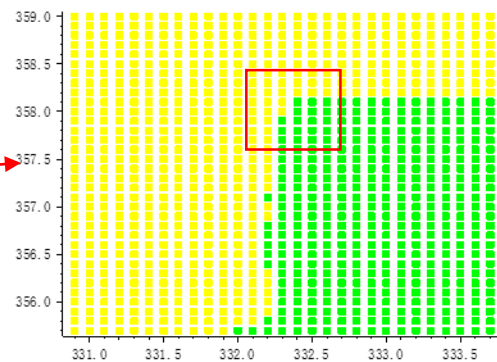
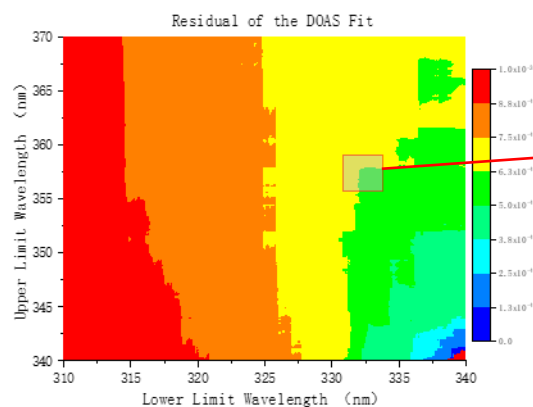
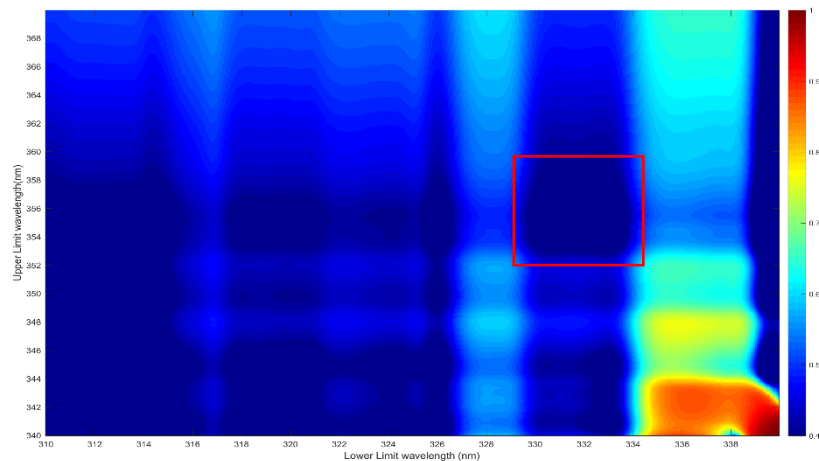
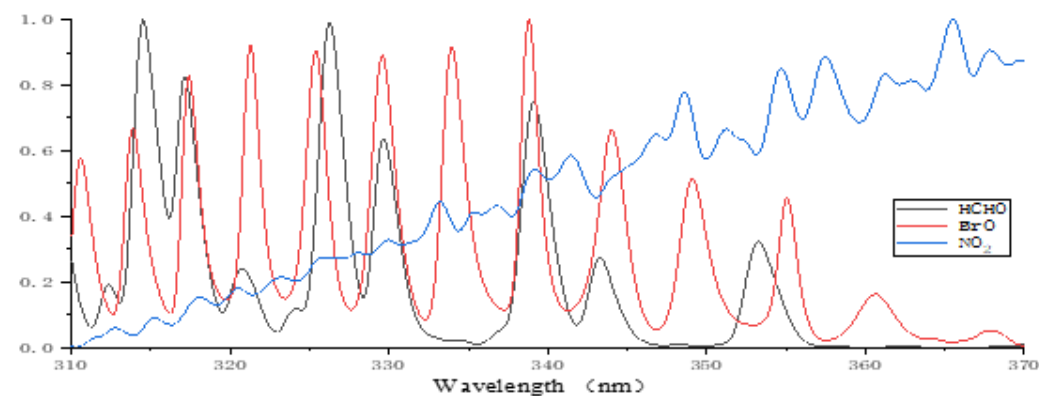


采用固态光路快速切换及多芯光纤耦合导入技术，克服依赖转动装置的多轴DOAS系统响应慢、易受干扰问题，实现了车载平台垂直柱浓度以及廓线信息的快速获取。



# 研究基础\_光谱精细化解析

采用建立吸收截面的**二维相关性矩阵**及**光谱步进迭代反演**，获取目标气体的最佳反演波段，实现遥测系统光谱的精细化解析。以HCHO反演为例，剩余结构可以降至 $5 \times 10^{-4}$ 以下。



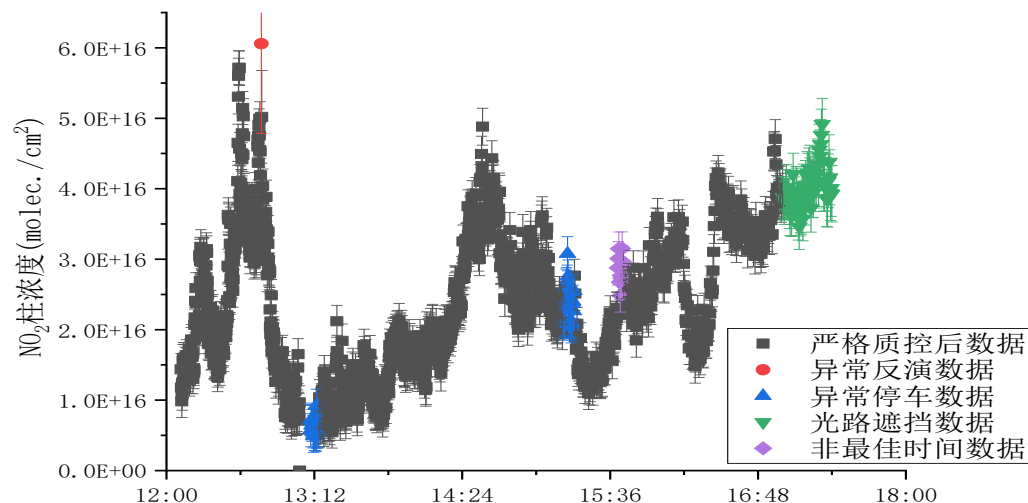
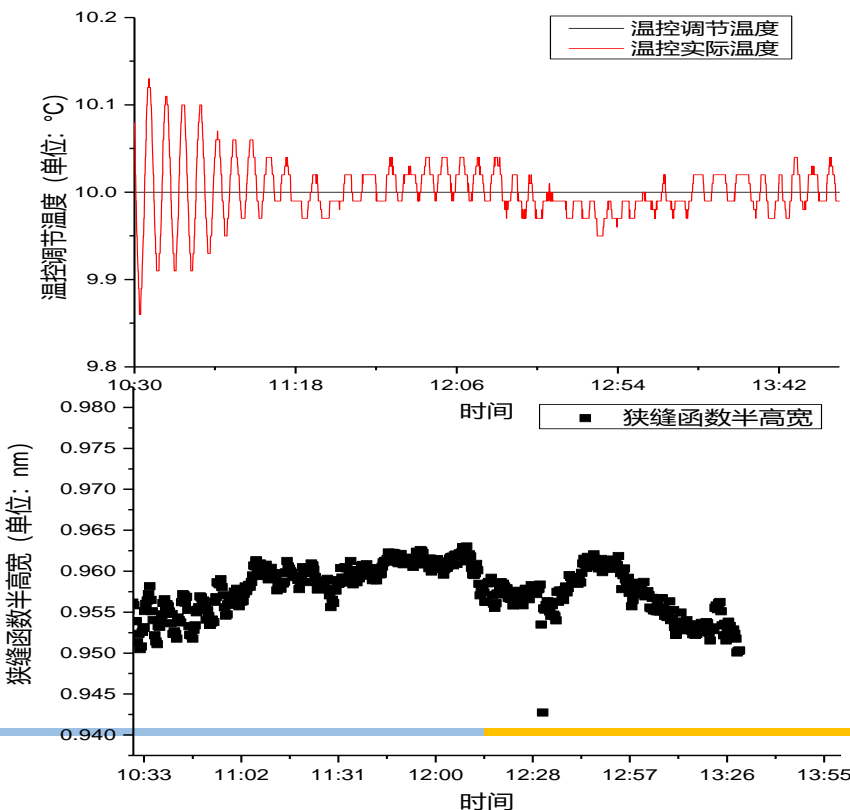


# 研究基础\_光谱仪温控及数据质控



采用基于PID算法的温控系统，稳定后光谱仪所处环境可控制在**设定温度 $\pm 0.1^{\circ}\text{C}$ 以内**。保证了光谱仪采集的光谱质量；

通过光谱反演误差、软件日志文件对数据进行了严格质控，删除了异常反演数据、异常停车数据，光谱遮挡数据，非理想观测时间数据等，保证的光谱反演数据的质量；

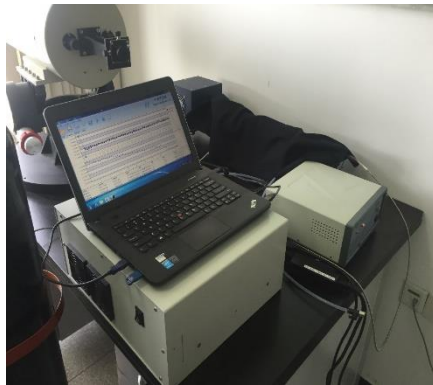




## 研究基础\_系统检测



在实验室条件下对系统进行了第三方检测，结果显示： $\text{NO}_2$ 和 $\text{SO}_2$ 的检出限分别为 $0.4\text{ppm}\cdot\text{m}$ 、 $0.3\text{ppm}\cdot\text{m}$ ，示值误差分别为**3.9%**、**3.8%**。检测结果完全满足研究需求。



### 测试证书

Testing Certificate

证书编号: YH2018-3-510009

Certificate No.

委托方 中国科学院合肥物质科学研究院  
Customer

器具名称 车载双光路差分吸收光谱污染气体排放及分布监测系统  
Name of instrument

证书编号: YH2018-3-510009

Certificate No.

### 测试结果/说明:

Results of testing and additional /Explanation

#### 1、检出限

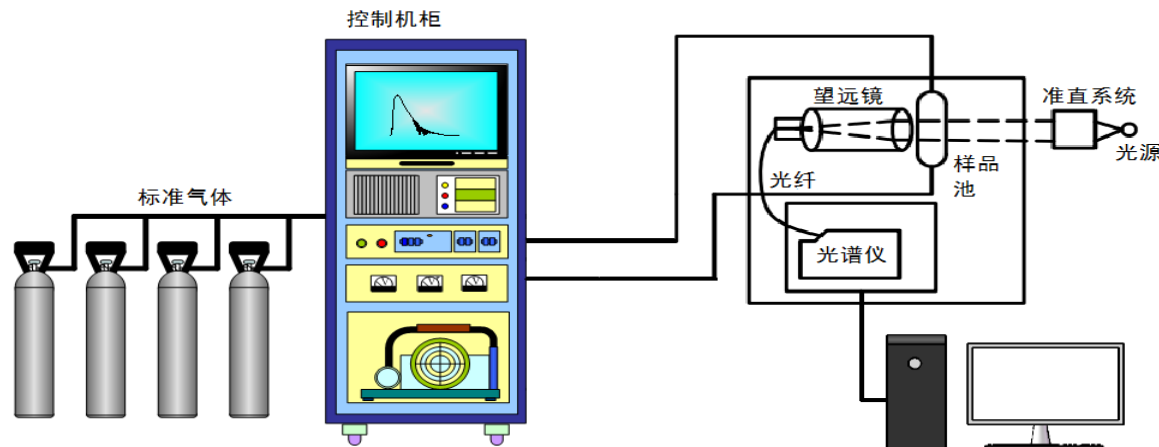
$\text{NO}_2$ :  $0.4\text{ppm}\cdot\text{m}$

$\text{SO}_2$ :  $0.3\text{ppm}\cdot\text{m}$

#### 2、示值误差

$\text{NO}_2$ : 3.9%

$\text{SO}_2$ : 3.8%

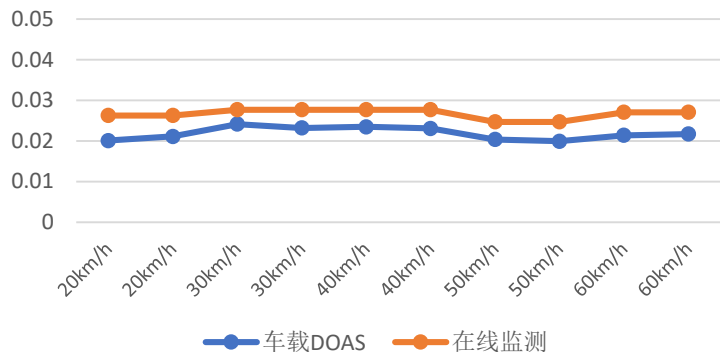


# 研究基础\_污染源排放通量获取及校验

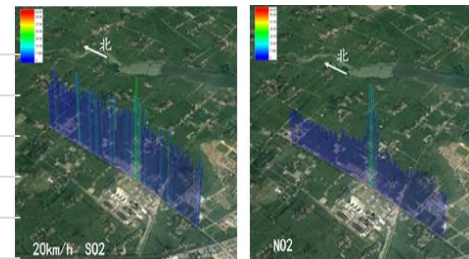
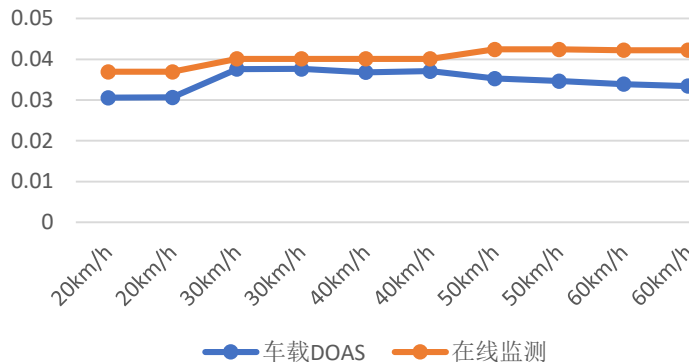


选取安徽省淮南市某电厂开展点源验证实验，利用车载DOAS获取了SO<sub>2</sub>与NO<sub>2</sub>的排放通量并同电厂的在线数据进行了对比，通量误差在15%左右。

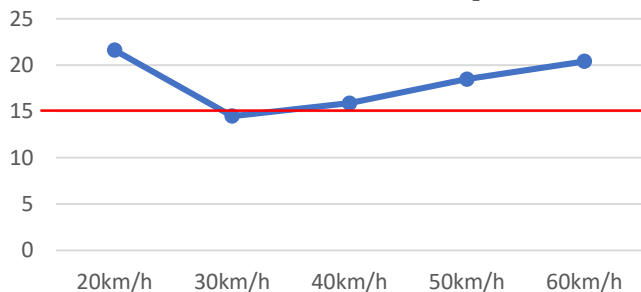
车载DOAS遥测排放通量与在线监测对比 (SO<sub>2</sub>, kg/s)



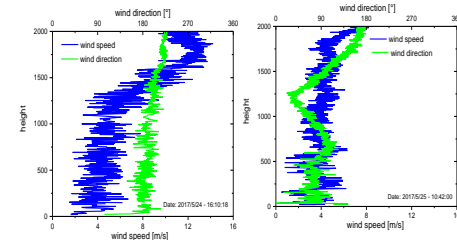
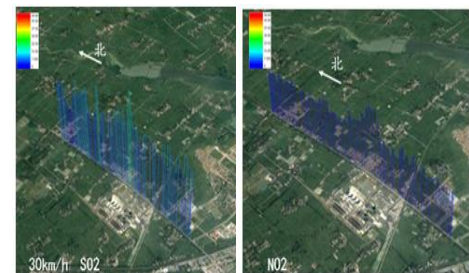
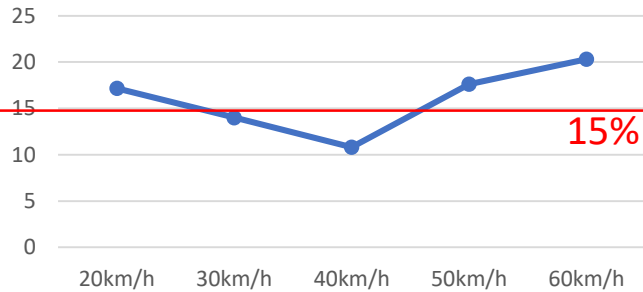
车载DOAS遥测排放通量与在线监测对比 (NO<sub>x</sub>, kg/s)



车载DOAS遥测排放通量误差 (SO<sub>2</sub>, %)



车载DOAS遥测排放通量误差 (NO<sub>x</sub>, %)

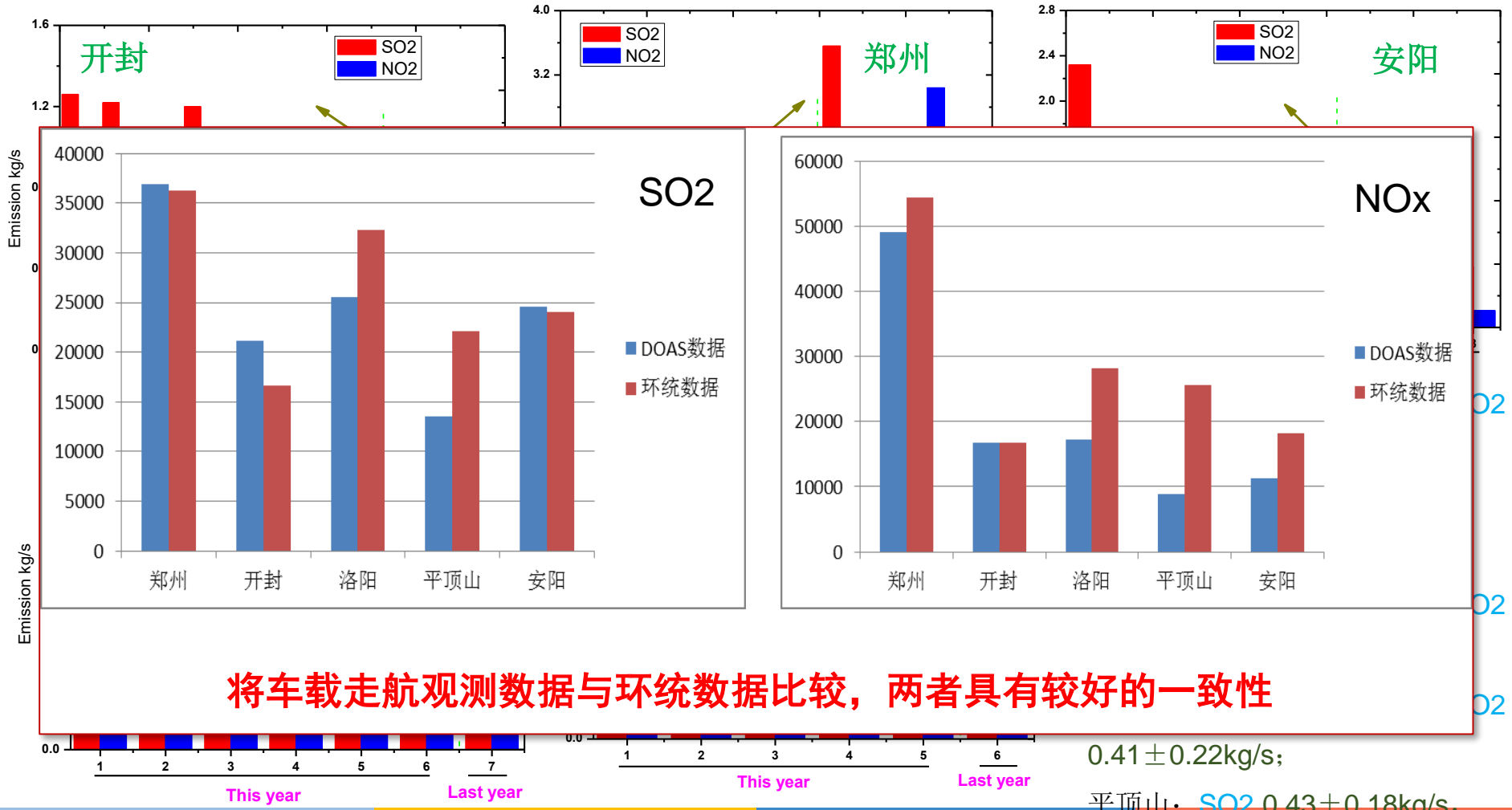


- SO<sub>2</sub>误差在30km/h时最低，为14.49%；NO<sub>x</sub>排放通量误差在40km/h时下降至最低，为10.82%；

# 研究基础\_污染源排放通量获取及校验



在“河南省大气灰霾专项研究”项目中，利用车载DOAS的走航观测，同河南省代表性城市的环境数据进行了对比。



与环统数据

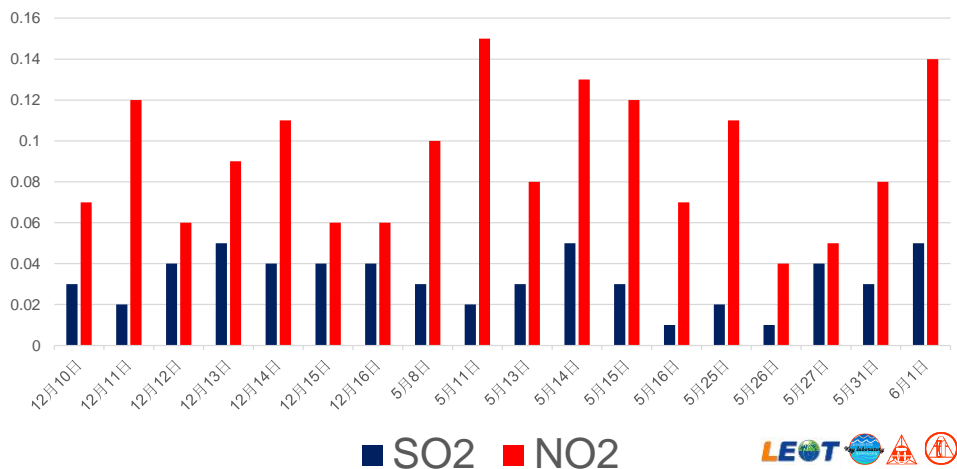
0.41±0.22kg/s;  
平顶山: SO2 0.43±0.18kg/s,  
NO2 0.21±0.14kg/s;

# 研究基础\_污染源排放通量获取及校验



在环保公益性行业科研专项《首都机场区域大气污染物排放特征及其对周边空气质量的影响研究》中，利用车载DOAS获取了首都机场NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>排放通量，并与模型进行了对比，取得了较好的效果，为模型提供验证提供一种快速有效的光学遥测方法。

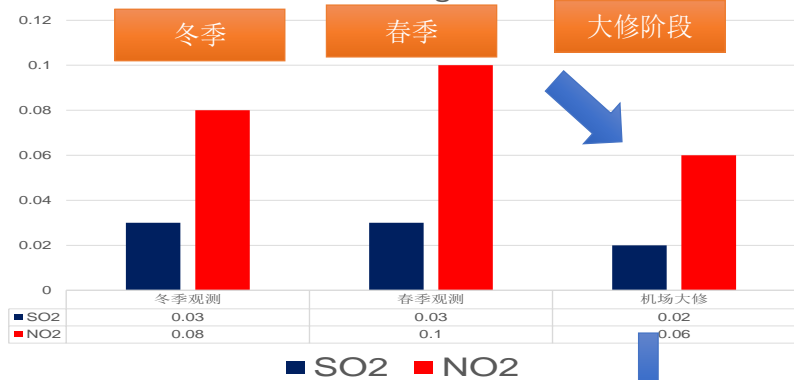
北京首都机场SO<sub>2</sub>及NO<sub>2</sub>排放通量（单位:kg/s）



机场清单与通量观测对比结果（单位：kg/s）

	SO <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub>
机场清单	0.02	0.12
通量观测	0.01-0.05	0.04-0.15

北京首都机场SO<sub>2</sub>及NO<sub>2</sub>排放通量阶段均值（单位：kg/s）



首都机场中跑道大修6天 四大航取消航班 共计856班

www.hyzc.net 2015-05-25 10:10 【大 中 小】

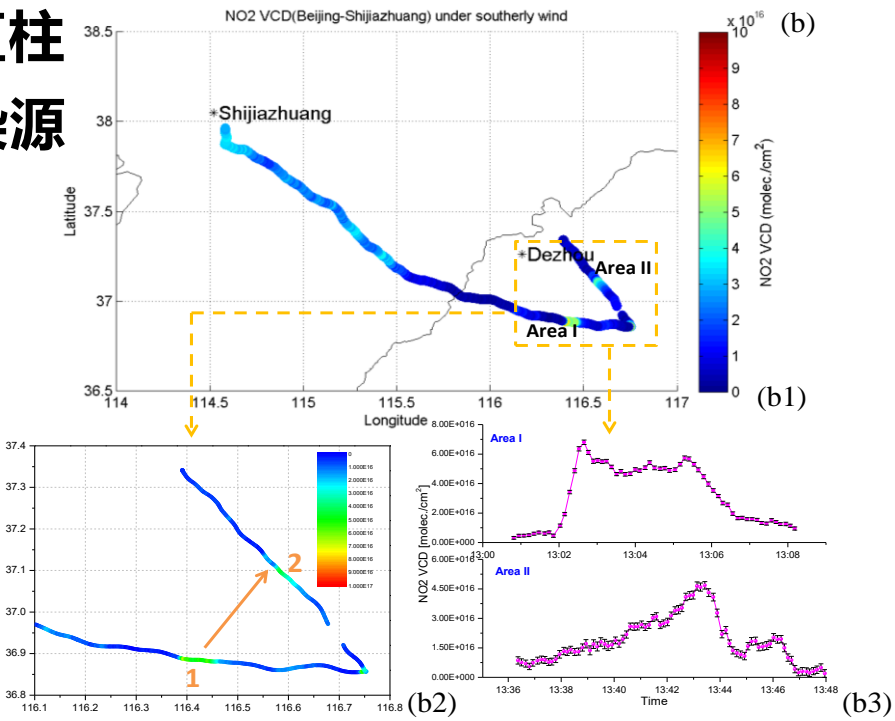
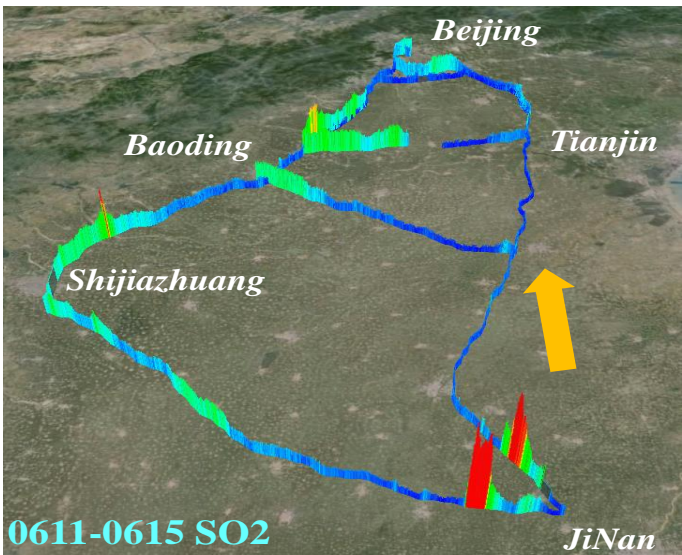




# 研究基础\_未知污染源定位



通过污染源下风向不同剖面的垂直柱浓度分布及后向轨迹，实现了未知污染源的粗略定位。

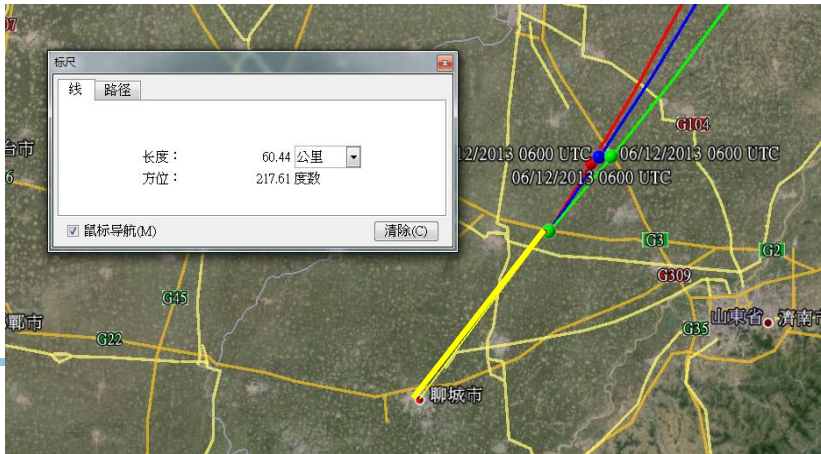


6.12 NO2

L1(1处的气团宽度)=11.83km  
L2 (2处的气团宽度) =16.76km

1-2之间的距离28km

1处离污染源大约63km (不考虑转化)



研究背景

研究基础

研究方法

方法应用

总结展望

## 面向源清单校验的污染气体排放通量遥测技术

课题组自2003年以来，结合自主研发的多光路系统，研究了车载污染气体分布、污染源排放获取新方法，实现了高分辨污染源排放信息的近实时获取及校验，该方法可推广至多遥测平台（如机载、卫星等）。

精细网格 <b>大气动态污染源清单</b> 技术研发及应用示范	重点研发计划
<b>固定源大气污染物排放</b> 现场执法监管的技术方法体系 研究	重点研发计划
面向 <b>源清单校验</b> 的污染气体排放通量紫外可见光谱遥测技术研究	面上基金
首都机场 <b>污染物排放特征</b> 及对空气质量影响研究	环保公益
车载多光路DOAS <b>污染物排放</b> 及分布遥测系统	中科院仪器创新项目
<b>区域动态高时空分辨大气污染源排放清单</b>	总理基金
奥运、世博、亚运、青奥、APEC、VDP、G20、金砖前/后空气质量流动监测	重大赛事活动空气质量保障

### 车载被动差分吸收光谱技术

被动DOAS原理

光谱精细化解析

系统构建集成

### 区域污染物柱浓度分布重构技术研究

污染气体分布插值重构

污染气体蒙特卡罗模拟重构

### 基于被动DOAS系统的排放清单获取及校验研究

基于车载平台的网格化排放清单获取

基于卫星数据的网格化排放清单校验

### 基于被动DOAS系统的排放清单应用研究

为排放源清单校验提供技术支撑

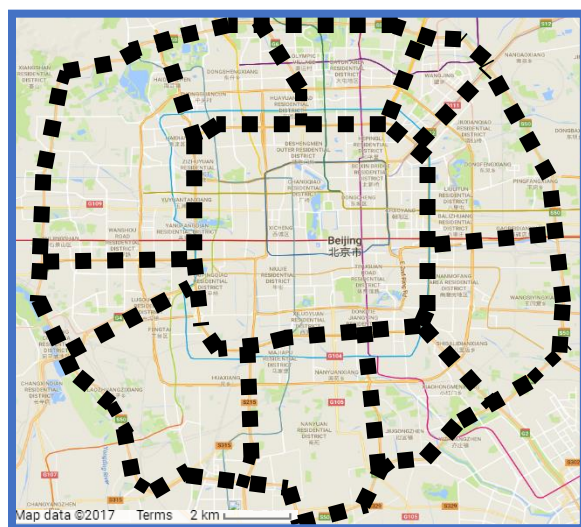
为散源乱源快速捕捉提供技术手段

为国家重大赛事保障提供技术保障

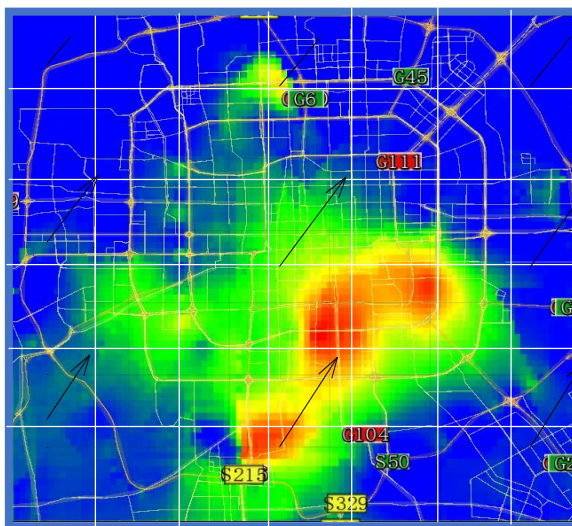


# 研究方法\_网格化排放通量获取

采用风场约束的蒙特卡洛条件模拟重构污染物柱浓度分布，耦合高分辨三维风场数据，建立了网格化排放通量 (200m\*200m)获取方法，实现了观测期间污染源特别是面源、区域源排放数据的高分辨、实时动态获取。



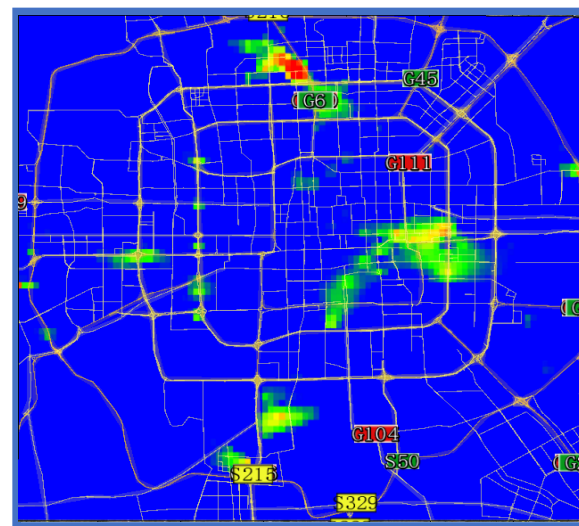
Observed path VCD



Area VCD

+

Wind field



Emission flux

$$\text{Flux} = \Delta \text{VCD}_{\parallel \text{V}} \cdot \text{V} \cdot L_{\perp \text{V}}$$



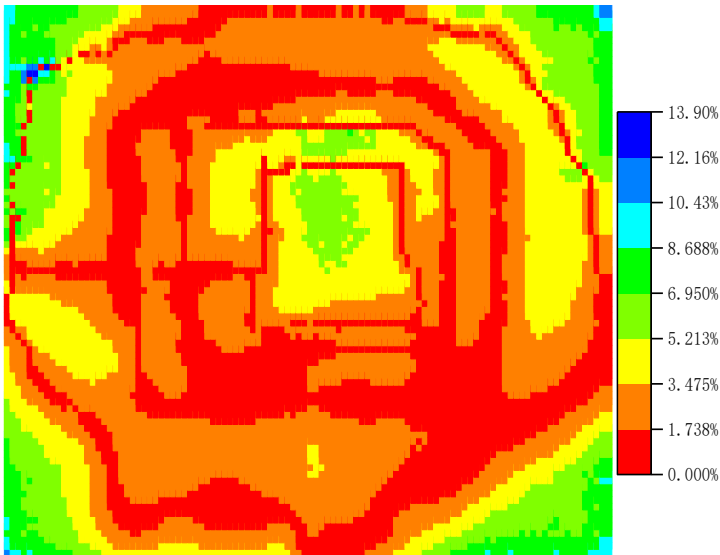
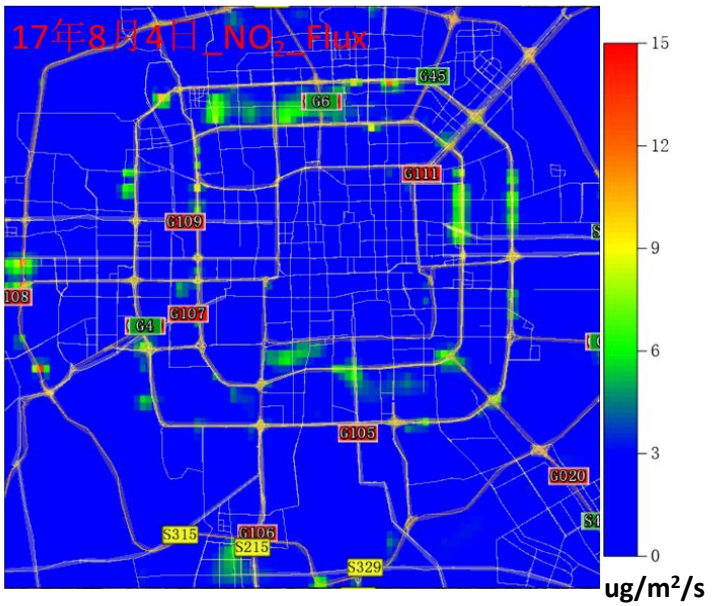
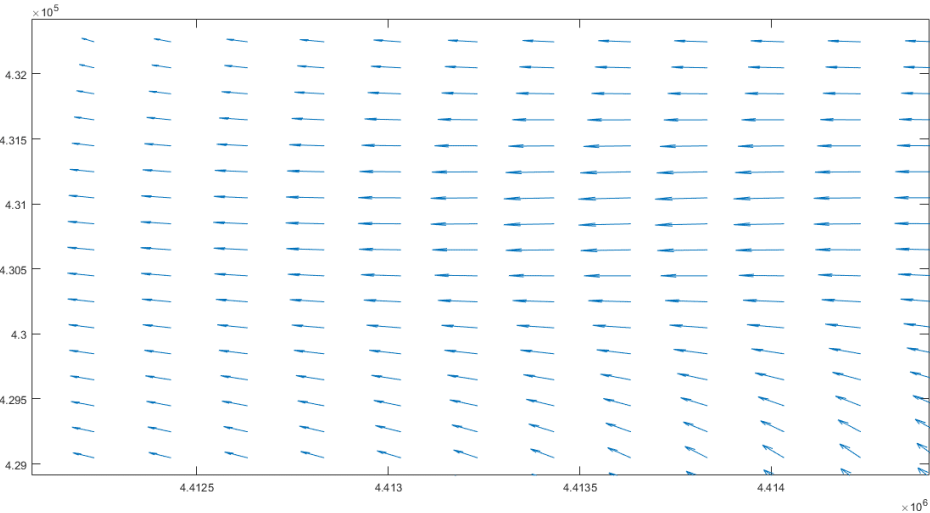
# 研究方法\_误差评估

基于车载平台的网格化排放清单不确定性获取：

$$\frac{\Delta Flux}{Flux} = \sqrt{\left(\frac{\Delta VCD}{VCD}\right)^2 + \left(\frac{\Delta SGS}{SGS}\right)^2 + \left(\frac{\Delta V}{V}\right)^2 + \left(\frac{\Delta GPS}{GPS}\right)^2}$$

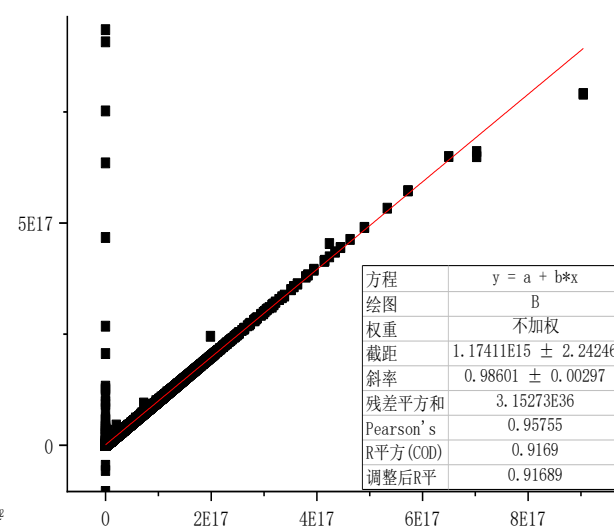
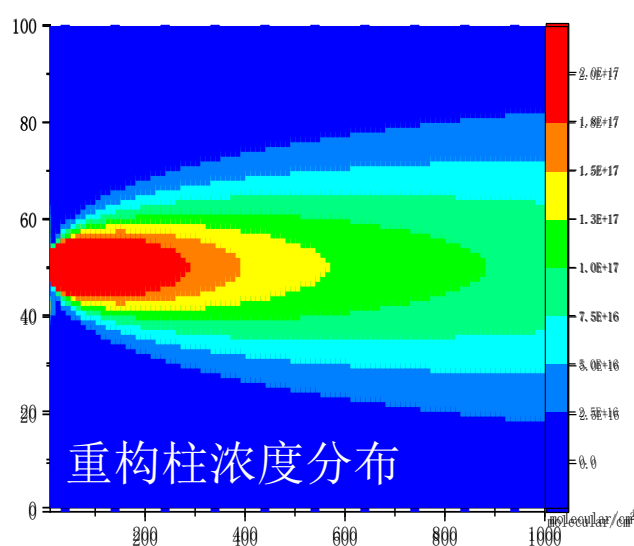
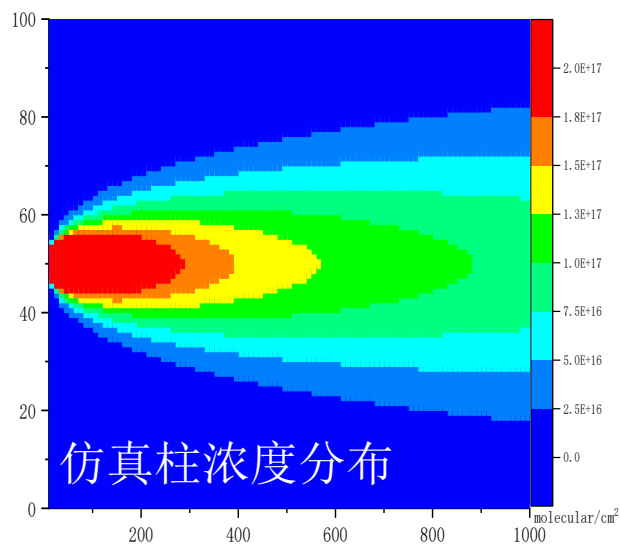
柱浓度反演误差 2-8%	重构误差 1-10%	风速误差 5-10%	GPS误差 1%
-----------------	---------------	---------------	-------------

200m空间分辨下5.6%-16.3%



以SO<sub>2</sub>排放为例构建高斯烟羽扩散模型。由模型虚拟出观测路径后利用蒙特卡洛条件模拟重构污染物浓度分布，相关性系数0.96。

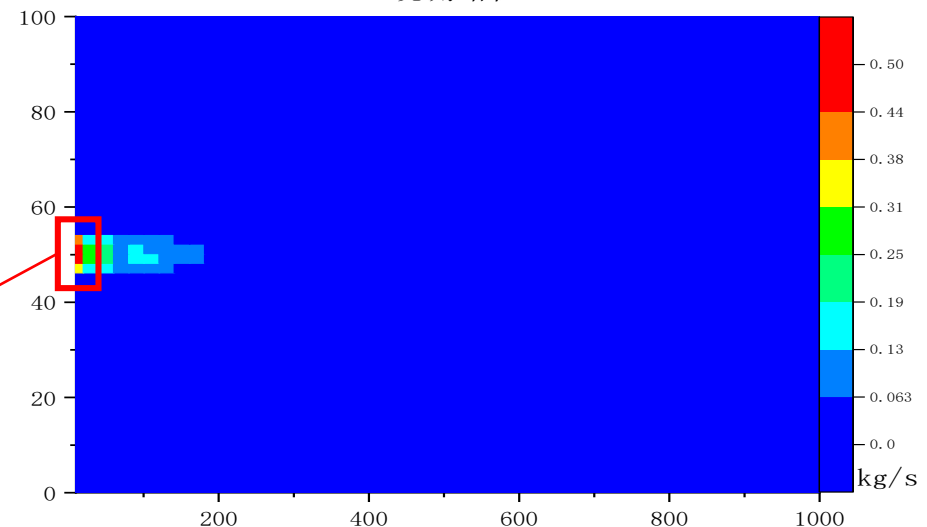
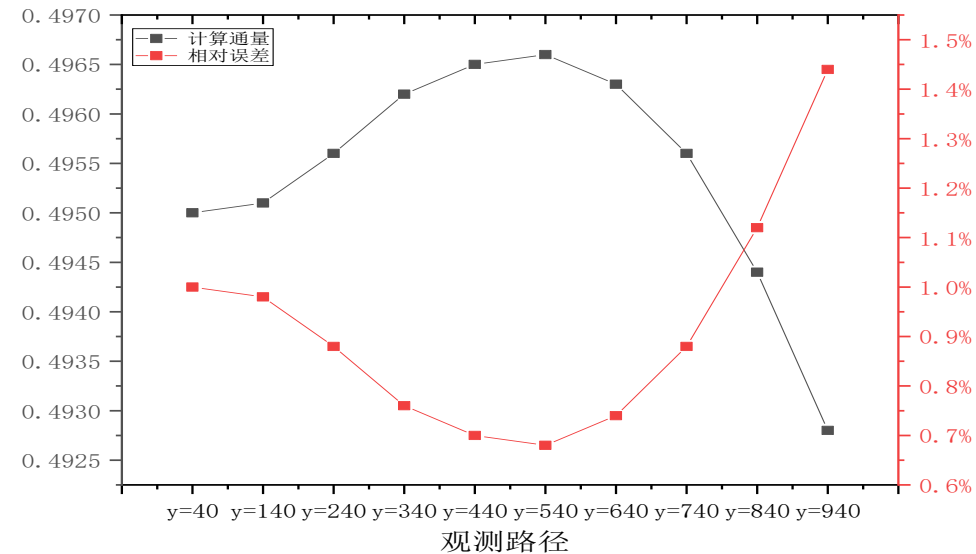
点源位置	0,50m,50m	气体衰减率	0
排放量	0.5kg/s持续排放	风速	1m/s



$R^2=0.96$

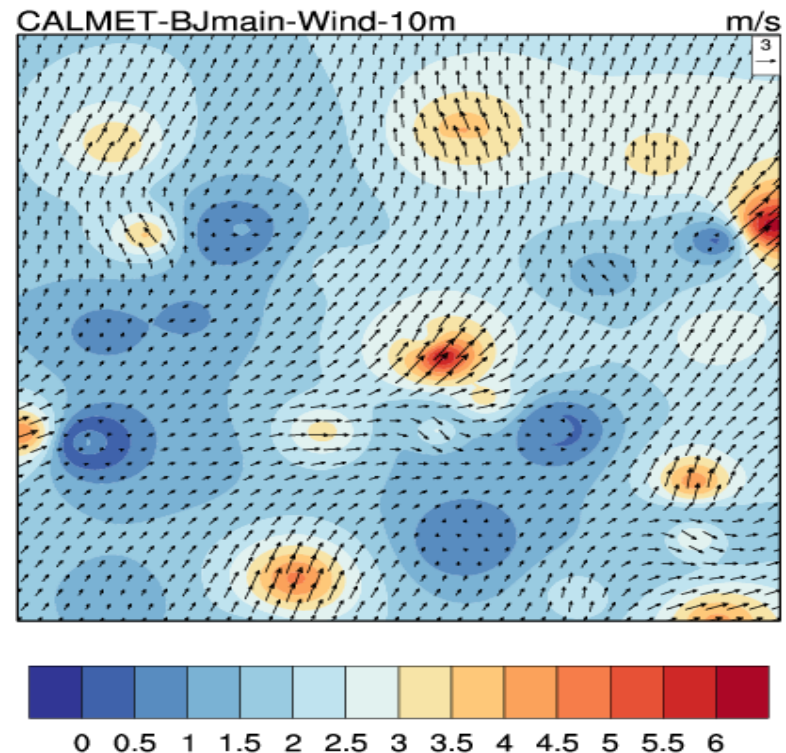
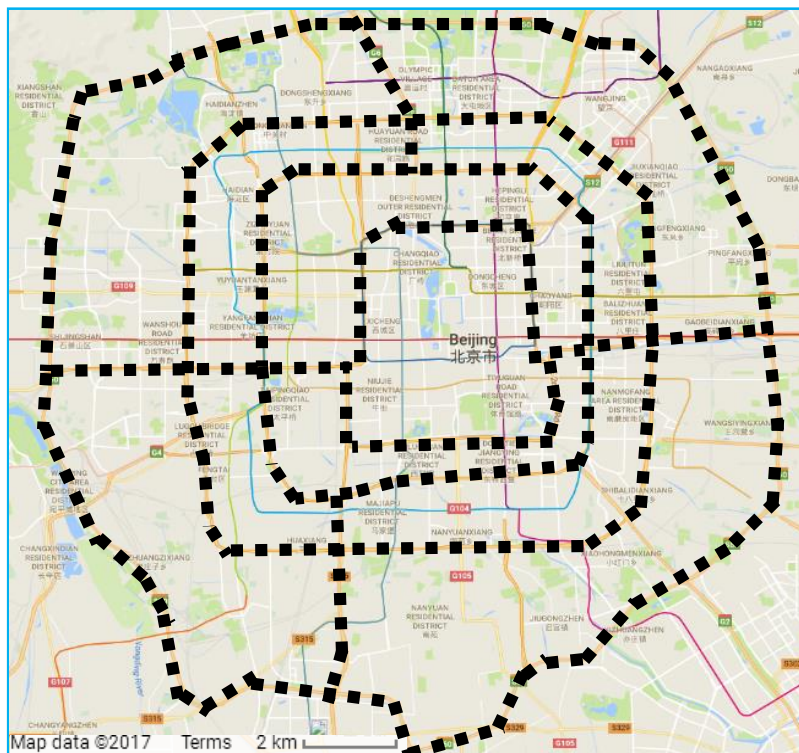
## 排放量仿真验证

- 在 $y=40$ 、140、240等位置上模拟了10条观测路径，对虚拟的10条观测路径分别计算排放量相对误差在1.5%以下。
- 利用网格化排放清单的获取方法，实现了污染源位置定位及排放源强计算。污染源定位至 $(0, 50)$ 坐标处，同初始的高架点源位置一致，该位置排放量计算为 $0.509\text{kg/s}$ ，较数值仿真源强的相对误差为1.8%。



实现了污染源的  
定位及源强估算

选取北京五环作为面源对比的实验地点，将NO<sub>2</sub>排放通量同业务化清单、基于车流量数据的高空间分辨清单、Moves模型清单进行了对比。

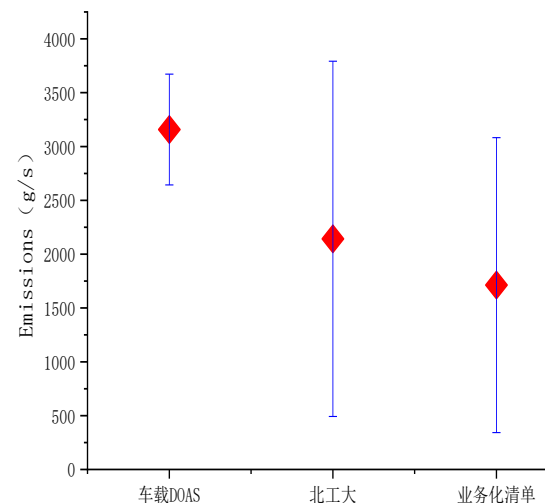




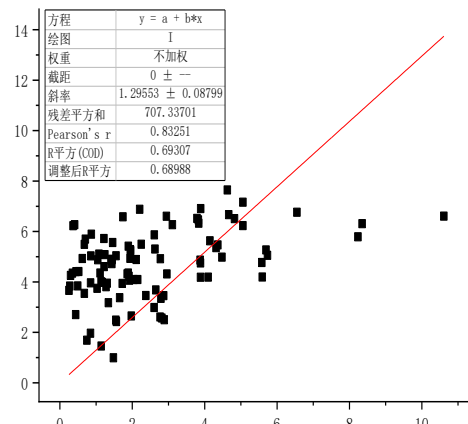
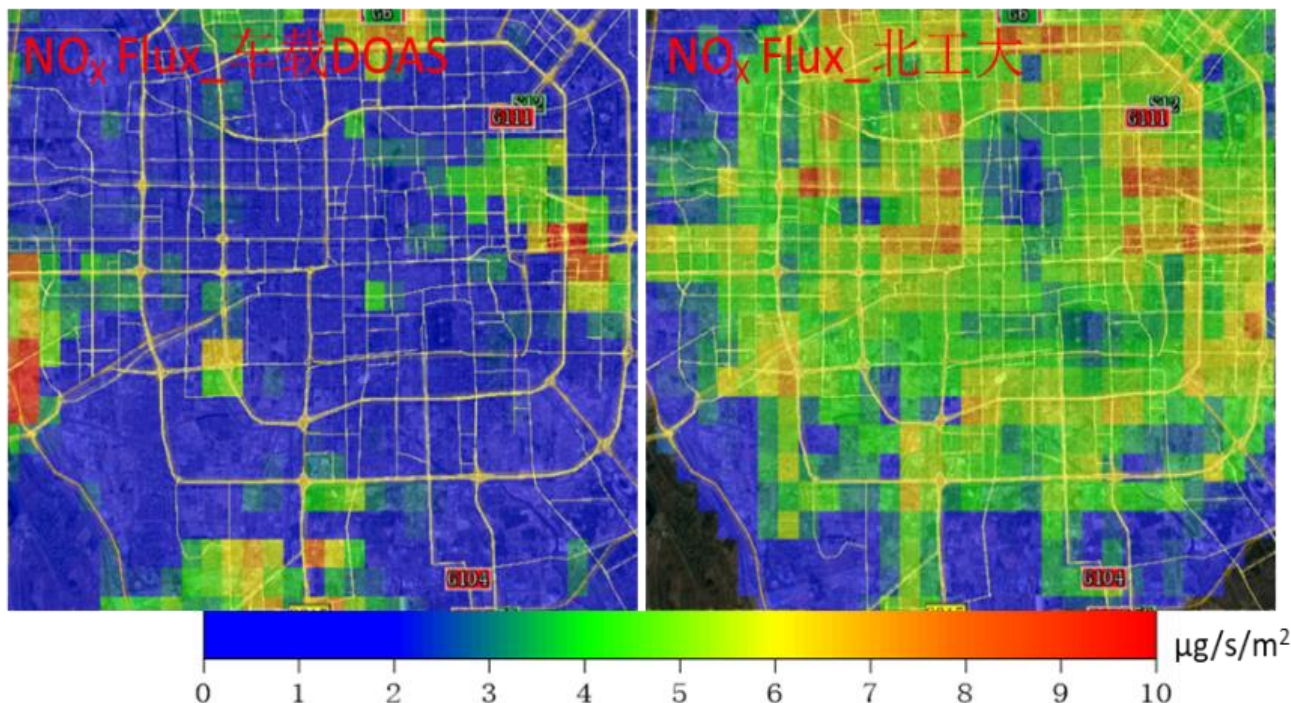
## 研究方法\_对比验证



基于15年数据，从五环的总排放量测算，NO<sub>x</sub>排放量处在**同一量级**，且车载DOAS的排放量落在了北工大清单的误差范围内。具体看来，车载DOAS获取的NO<sub>x</sub>排放量较北工大清单中NO<sub>x</sub>排放量**高47.4%**，较业务化清单中NO<sub>x</sub>排放量**高84.4%**。



五环内NO<sub>x</sub>总排放量

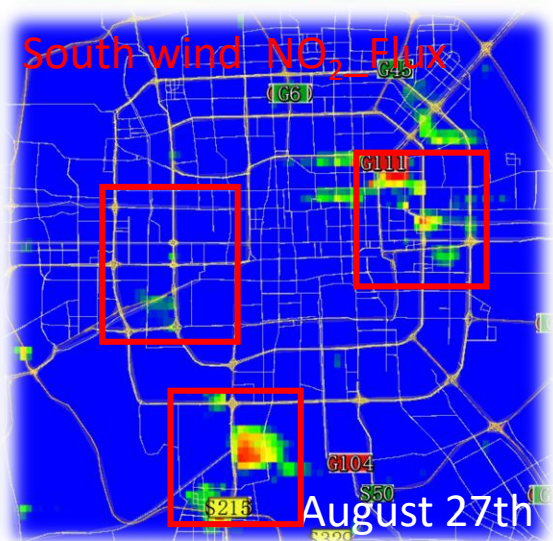
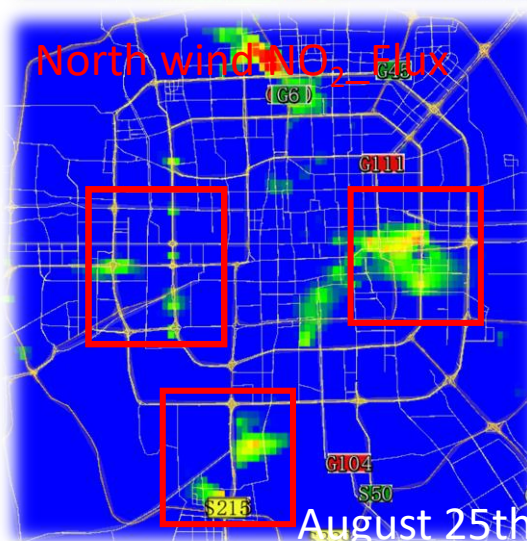
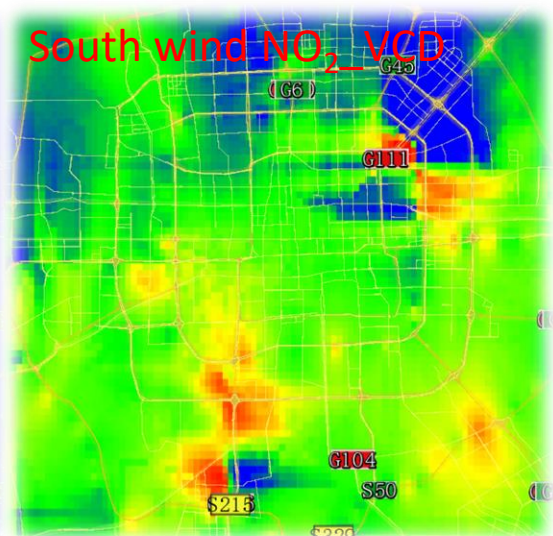
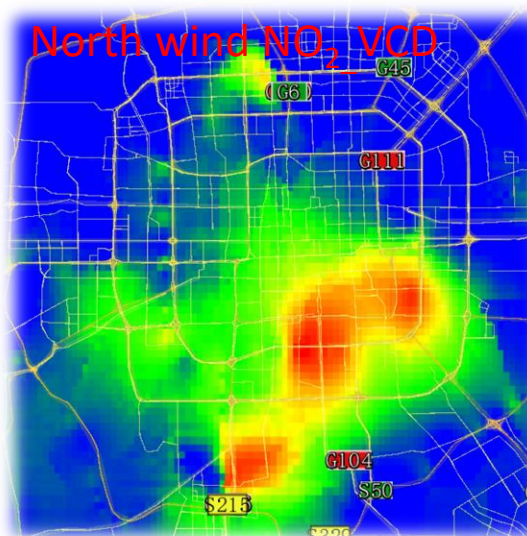


[116.37-116.49; 39.89-39.94]范围内,  $R^2=0.69$



## 研究方法\_对比验证

将排放数据同北京交通发展研究院Moves模型（基于北京市4万辆机动车上的传感器及GPS数据）对比，排放高值位置及强度具有高度一致性。

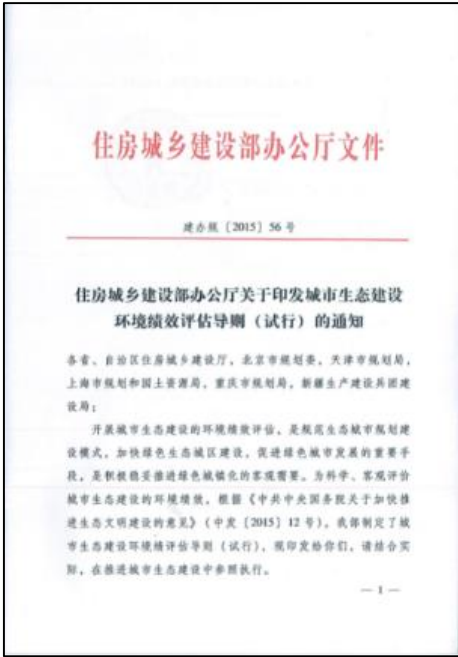


# 研究方法\_监测导则



建立了车载DOAS指标体系、作业指导手册、技术规范。  
2015年住建部发布的《城市生态建设环境绩效评估导则》将车载DOAS作为评价污染源（面源）排放的一种推荐测算方法。

同时，在北京市科委项目“基于车载光学遥测技术的北京及京津冀大气面污染源排放特征研究”支持下，对方法的操作规范、适用范围等做了限定，导则的完善工作仍在进行中。



	适宜范围
风速	1-4m/s
风向	观测时段内，观测区域的风向稳定； (需考虑上下午风向的转变)
天气现象	晴；多云；阴 (能见度>5km；避免雨雪、大风、重霾天气)

区域空气污染输送通量观测应用方法和技术规范	区域空气污染输送通量应用方法和技术	风场数据在大气环境中的应用方法和技术	车载光学遥测系统监测技术导则 车载光学遥测系统（DOAS）监测区域污染源技术导则
作业指导手册	设备指标体系	单位名称：安徽光机所 时间：2012.9.1	
中国科学院安徽光学精密机械研究所	中国科学院安徽光学精密机械研究所		

观测条件：晴朗少云、**排放源强稳定**、气象场稳定



研究背景

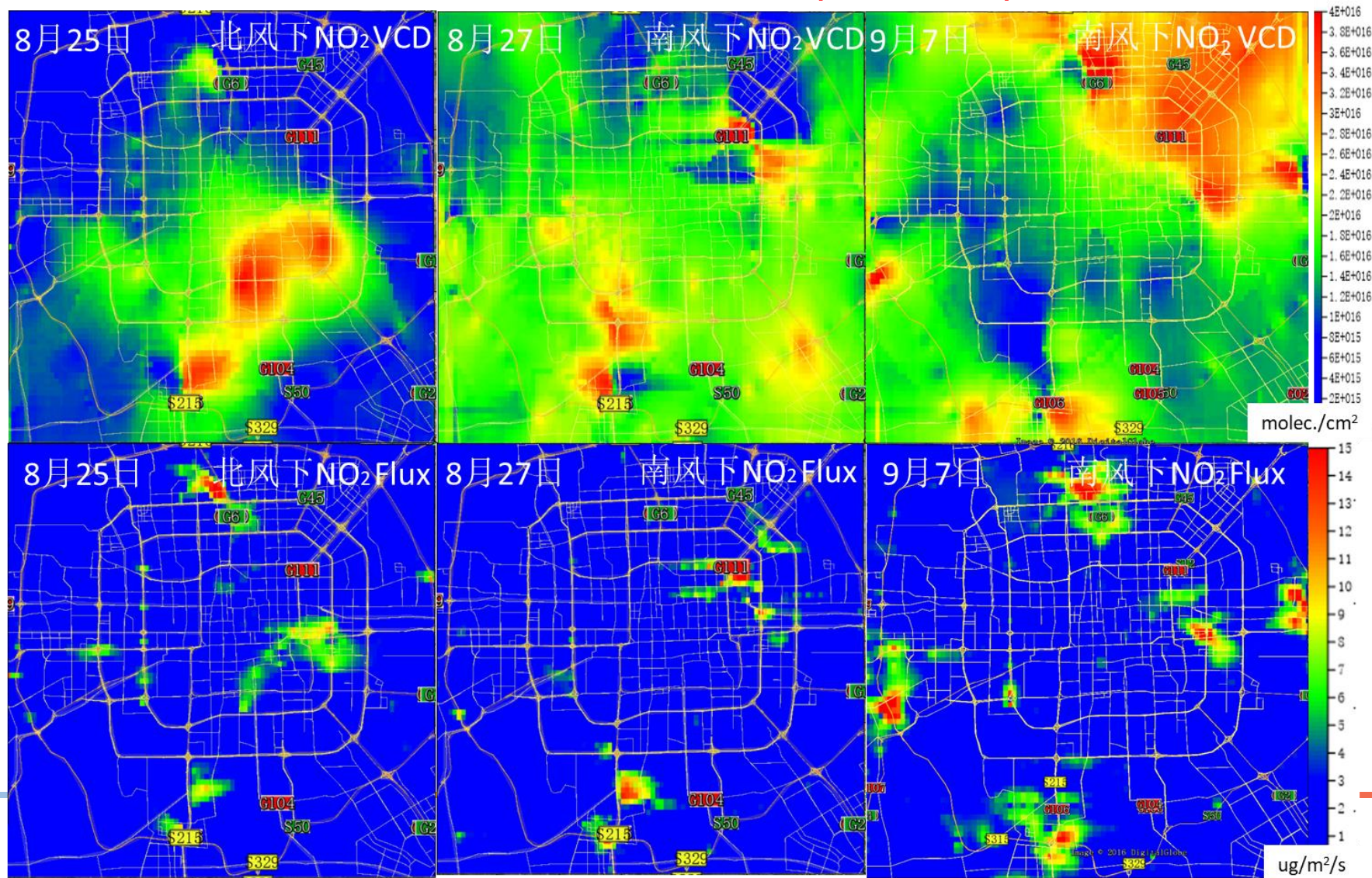
研究基础

研究方法

**方法应用**

总结展望

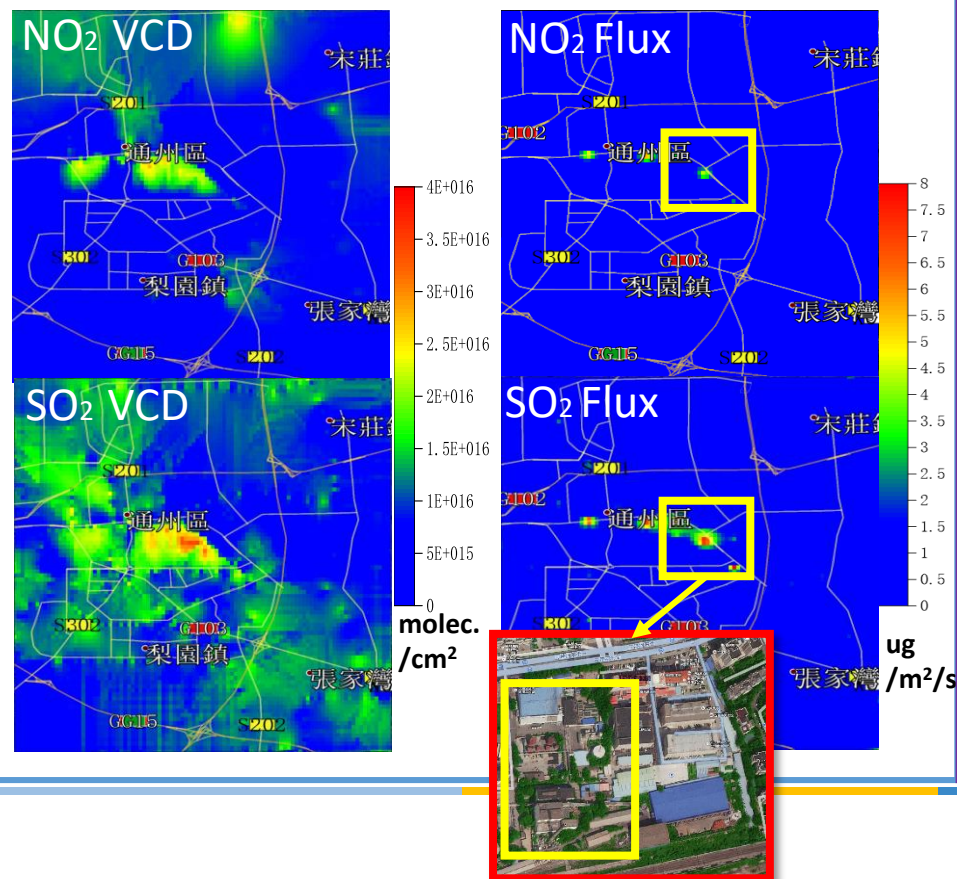
利用车载遥测系统对城市区域开展观测，实现了污染源排放数据的近实时获取；为高效评估管控措施提供了可能。 **(实时动态)**



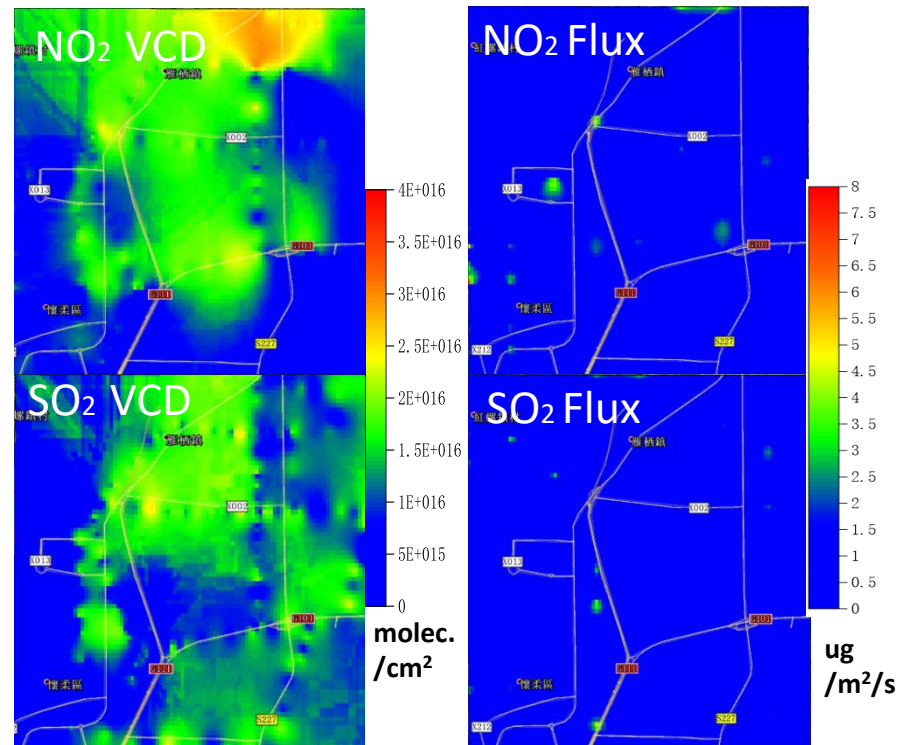


利用车载遥测系统对重点关注的核心城区开展观测，实现了观测区域内散乱源、未知源的快速定位及源强估算。（未知源定位）

## 通州副中心

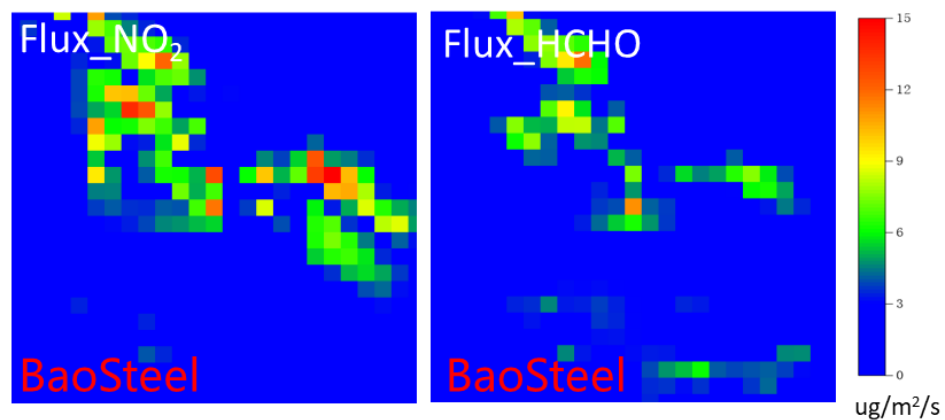
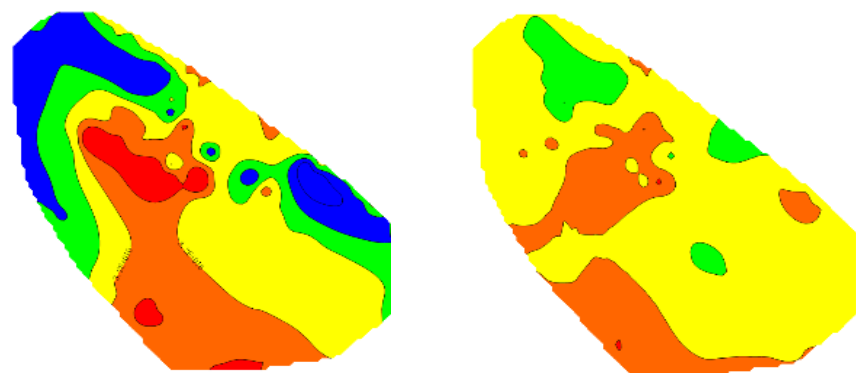
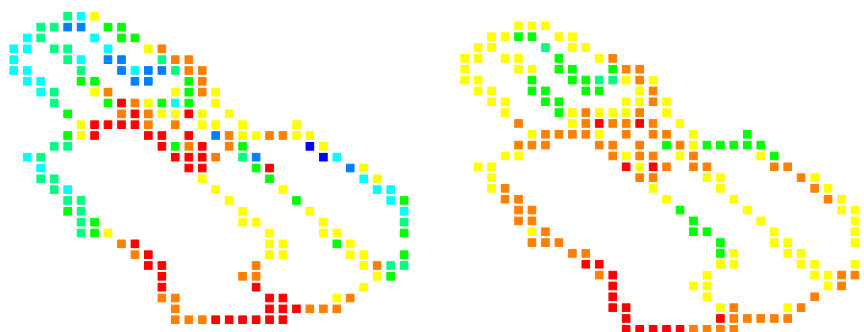


## 怀柔区





利用车载遥测系统，实现了工业区无组织源排放的估算，获取小尺度精细化网格排放数据，为更高空间分辨的化学模式模拟提供了可能。（高空空间分辨）



研究背景

研究基础

研究方法

方法应用

总结展望

## 总结及展望

- ◆ 基于光学遥测技术，可以为污染源清单校验提供有效的技术手段；
- ◆ 通过多台光学遥测设备组网观测，可以实现重点城市区域污染排放数据的实时监管及更新；
- ◆ 随着遥测技术的不断提升，自上而下的源清单技术在时间及空间分辨上也将不断提高，在源清单建立领域或将发挥更为重要的作用。



# 谢谢聆听， 请批评指正

Thank You

A horizontal bar composed of four colored segments: light blue, yellow, dark blue, and red.