

长江经济带湖北省人为源 VOCs 排放清单及变化特征

代伶文^{1,2}, 孟晶^{2,3}, 李倩倩^{2,3}, 史斌^{2,3}, 苏贵金^{2,3*}, 黄利宏^{1*}

(1. 成都理工大学材料与化学化工学院, 成都 610059; 2. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085; 3. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 以人为源挥发性有机物(VOCs)为研究对象,以5类源活动水平数据为基础,采用排放因子法建立了长江经济带湖北省2018年人为源VOCs排放清单,并进一步研究了2009~2018期间工艺过程源VOCs排放特征及变化趋势。结果表明,湖北省2018年人为源VOCs排放总量为 6.52×10^5 t,约占全国总排放量的6.41%;化石燃料固定燃烧源、工艺过程源、溶剂使用源、移动源和废弃物处理源对湖北省的贡献分别为3.26%、76.39%、4.54%、14.72%和1.09%。涉及9个行业45个子类的工艺过程源在VOCs排放中占比突出,其中武汉市和宜昌市的VOCs排放量较高。从经济水平和区域面积分别分析了各市州工艺过程源VOCs排放强度,天门市和神农架林区单位GDP的VOCs排放量较高,而武汉市、鄂州市和天门市单位面积VOCs排放量较高。2009年VOCs排放量从 2.45×10^5 t逐年递增,2015~2017年趋于稳定,最大排放量达 7.01×10^5 t,2018年VOCs排放量降至 4.98×10^5 t,与全国人为源VOCs排放趋势相同。化学原料及化学制品制造业、橡胶和塑料制造业是其变化的主要驱动力,10年间贡献分别为33.85%~51.55%和7.07%~38.13%。其中化学药品原药、化学农药原药生产在10年间对VOCs排放贡献占据重要优势,而泡沫塑料生产排放量变化大,在2015~2017年突增到 2.00×10^4 t以上。湖北省在国家及地方相关政策引导下,重点行业VOCs减排效果显著。

关键词: 长江经济带; 湖北省; 大气挥发性有机物(VOCs); 排放清单; 人为源; 工艺过程源

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)03-1039-14 DOI: 10.13227/j.hjks.202009043

VOCs Emission Inventory and Variation Characteristics of Artificial Sources in Hubei Province in the Yangtze River Economic Belt

DAI Ling-wen^{1,2}, MENG Jing^{2,3}, LI Qian-qian^{2,3}, SHI Bin^{2,3}, SU Gui-jin^{2,3*}, HUANG Li-hong^{1*}

(1. College of Materials and Chemistry & Chemical Engineering, Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China; 2. Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: In this study, a 2018 anthropogenic volatile organic compounds (VOCs) emission inventory in Hubei Province was conducted using the emission factor method based on activity levels of five sources. The emission characteristics and variation trends of process sources from 2009 to 2018 were further analyzed. Total anthropogenic VOCs emissions were 6.52×10^5 tons in Hubei Province, accounting for about 6.41% of the country's total emissions. The contributions of fossil combustion sources, process sources, solvent sources, mobile sources, and waste disposal sources were 3.26%, 76.39%, 4.54%, 14.72%, and 1.09%, respectively. Process sources involving 45 sub-categories of nine industries accounted for a significant proportion of VOCs emissions, with Wuhan and Yichang recording the highest VOCs emission levels. The VOCs emissions intensity of each city and state were analyzed based the level of economic activity and territorial area. Tianmen and Shennongjia had higher VOCs emissions per unit of GDP, while Wuhan, Ezhou, and Tianmen had higher VOCs emissions per unit area. Regarding process source contributions, VOCs emissions increased progressively to 2.45×10^5 tons in 2009 and then stabilized between 2015 and 2017 with maximum emissions of 7.01×10^5 tons. In 2018, VOCs emissions decreased to 4.98×10^5 tons. This trend was similar to national anthropogenic emissions. Two industrial sectors, namely chemical raw materials and rubber and plastics, were the main driving force with contributions of 33.85%–51.55% and 7.07%–38.13%, respectively. Among them, the production of chemicals and active pesticide and pharmaceutical ingredients played an important role in contributing to VOCs emissions, while emissions during foam plastics production varied greatly, increasing sharply to more than 2.00×10^4 tons in 2015–2017. Under the guidance of the relevant national and local policies, emissions from key industries were significantly reduced in Hubei Province.

Key words: Yangtze River Economic Belt; Hubei Province; volatile organic compounds (VOCs); emission inventory; artificial sources; process sources

为贯彻落实《打赢蓝天保卫战三年行动计划》(国发22号)有关要求^[1],确保完成“十三五”环境空气质量改善目标任务,挥发性有机物(volatile organic compounds, VOCs)治理攻坚成为打赢蓝天保卫战收官的重要任务。文献[2]将VOCs纳入第二次全国污染源普查工作。最新的研究表明,VOCs会对

收稿日期: 2020-09-04; 修订日期: 2020-11-05

基金项目: 国家重点研发计划项目(2018YFC1800300); 成都市科技项目(2018-ZM01-00019-SN); 国家自然科学基金项目(21876193); 中国科学院青年创新促进会项目

作者简介: 代伶文(1996~),女,硕士,主要研究方向为大气污染物VOCs的污染现状及治理 E-mail: lwdaiChina@163.com

* 通信作者, E-mail: gjsu@cees.ac.cn; huanglihong06@cdut.edu.cn

人体肺部呼吸功能造成不良影响^[3,4],并且长期接触 VOCs 会致癌和致畸^[5,6]. Li 等^[7]结合经验动力学建模方法(EKMA)研究得出 VOCs 是形成臭氧(O₃)、细颗粒物(PM_{2.5})及二次有机气溶胶(secondary organic aerosols, SOA)污染的重要前体物^[8],对流层下部的 O₃ 和 SOA 对人体健康有害. 由于大量的人为排放,现在 VOCs 已经成为中国空气污染的重点问题. 迄今为止,已经有许多探究全国各地 VOCs 排放特征的研究^[9-13]. Li 等^[10]的研究发现北京市 VOCs 的臭氧生成潜能(ozone formation potential, OFP)中贡献最高的为烯烃和芳烃,且道路移动源为北京市 VOCs 的主要来源^[7]. Huang 等^[13]采用自上而下的方法建立了长江三角洲的人为源 VOCs 排放清单,分析其主要来源为工艺过程源. 排放清单的建立可确定污染物的来源,结合相关区域或行业的减排政策,评估短期污染物对气候和空气质量的影响,并为未来规划提供指导.

文献[14]确立长江经济带发展新格局,以长江黄金水道为依托,发挥上海、武汉和重庆的核心作用. 湖北省是中国传统工业大省,地处长江经济带中游区域,是国家重大战略发展地区,其 2018 年工业产值 45765.33 亿元,位居全国第八^[15]. 依据 2018 年环境质量状况报告^[16],湖北省臭氧日最大 8h(O₃-8h)第 90 百分位浓度值较 2017 年上升 10.8%,按照《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)评价,17 个重点城市除神农架林区外其余城市空气质量均未达到年均二级标准. 当前对湖北省的 VOCs 污染源解析限于单个城市或行业^[12,17],例如 Hui 等^[12]结合经验动力学建模方法(EKMA)研究武汉市 VOCs 的来源分配及其对 O₃ 形成的贡献,缺乏对于省份的全行业人为源 VOCs 污染物排放的系统研究. 因此,本文以长江经济带重要节点省份湖北省为研究区域,以 VOCs 为研究对象,建立较为全面的湖北省 2018 年人为源 VOCs 排放清单;并在此基础上,研究湖北省工艺过程源 VOCs 排放的空间分布,及 2009~2018 年 10 年间湖北省工艺过程源 VOCs 排放特征及变化趋势,以期对湖北省挥发性有机物污染防治措施及对策制定提供科学支撑.

1 材料与方法

1.1 研究对象

本文以湖北省 13 个市州为研究区域,2018 年为基准年份,研究对象为人为源排放 VOCs,其中人为源包括 5 大类:化石燃料固定燃烧源、工艺过程源、溶剂使用源、移动源和废弃物处理源. 同时聚焦工艺过程源,研究 2009~2018 年这 10 年间工艺过

程源 VOCs 排放特征及变化趋势.

1.2 数据来源

本研究中所使用的活动水平数据来源于湖北省 2009~2018 年统计年鉴^[15,18]、各行业统计公报^[19,20]和相关部门调研^[21,22]. 化石燃料固定燃烧源的燃料消耗量、工业源中产品产量、溶剂使用源中溶剂消费量及产品产量、道路移动源的车辆保有量、非道路移动源的农用机械和船舶保有量、废弃物日处理能力和各行业生产总值(GDP)均来自湖北省统计年鉴,移动源的年均行驶里程来自文献^[22],飞机的起降架次来自文献^[19],各市州取得排污许可证的企业数来自文献^[23].

1.3 VOCs 排放清单估算方法

本研究采用排放因子法对湖北省人为源 VOCs 排放清单进行估算,各排放源估算方法和包括的行业类别具体如下,且本研究中的行业分类参考文献^[24].

1.3.1 化石燃料固定燃烧源

化石燃料固定燃烧源是指利用化石燃料燃烧时产生热量,为发电、工业生产和生活提供热能和动力的燃烧设备^[21,22]. 在本研究中将分为电力生产及供应、热力生产及供应、工商业和居民生活这 4 个行业类别,具体的燃料类型如表 1 所示.

化石燃料固定燃烧源 VOCs 排放量排放因子法估算公式如式(1)^[21]:

$$E = \sum EF_{ij} \times Q_{ij} \quad (1)$$

式中 E 为 VOCs 排放量; EF 为 VOCs 排放因子; Q 为燃料消耗量; i 为燃烧行业类别,分别为电力生产及供应、供热、工商业和居民生活; j 为燃料类型,具体如表 1 所示.

1.3.2 工艺过程源

工艺过程源是指工业生产和加工过程中,对工业原料进行物理或化学转化为目标产品的工业活动^[21,22]. 在本研究中将分为黑色金属冶炼及压延加工业、非金属矿物制品业、石油加工、化学原料及化学制品制造业、化学纤维制造业、橡胶及塑料制品业、造纸业、农副食品加工业和纺织业这 9 个行业类别,具体的 45 个子类如表 2 所示.

工艺过程源 VOCs 排放量排放因子法估算公式如式(2)^[21]:

$$E = \sum EF_k \times Q_k \times (1 - \eta) \quad (2)$$

式中 E 为 VOCs 排放量; EF 为 VOCs 排放因子; Q 为燃料消耗量; k 为工艺过程的 VOCs 排放子源; η 为污染控制措施对污染物的去除效率,其中 η 仅在一次油气回收中为 50%,二次油气回收中为 80%,三

表 1 化石燃料燃烧源行业类别、子类、活动水平和排放因子¹⁾

Table 1 Categories, subcategories, activity levels, and emission factors of fossil combustion sources

行业类别	子类	排放因子 /g·kg ⁻¹	活动水平 /万 t	行业类别	子类	排放因子 /g·kg ⁻¹	活动水平 /亿 m ³
电力生产和供应	原煤	0.15	2317	工商业 ⁵⁾	原煤	0.39	30704)
	天然气	0.045 ²⁾	4.96 ³⁾		焦炭	0.04	1 120 ⁴⁾
	燃料油	0.13	0.08		焦炉煤气	0.000 44 ²⁾	2.92
	液化石油气	0.034	5.23		高炉煤气	0.000 44 ²⁾	26.13
	柴油	0.13	43.19		其他煤气	0.000 44 ²⁾	14.44
	焦炭	0.04	11.32		燃料油	0.35	32.92
热力生产和供应	原煤	0.18	2317	液化石油气	0.48	358.70	
	天然气	0.088 ²⁾	10.96 ³⁾	天然气	0.088 ²⁾	23.46	
	燃料油	0.2	0.08	居民生活	液化石油气	0.36 ²⁾	16 848
	液化石油气	0.5	5.23		天然气	0.13 ²⁾	48.29

1) 排放因子均参考文献[21 22],下同; 2) 单位为 g·m⁻³; 3) 单位为亿 m³; 4) 单位为万 t; 5) 本研究中工商业指采矿业和制造业

次油气回收中为 90%^[22] 在本研究中所涉及到的 η 都为 0.

在估算中,平板玻璃 20 重量箱记为 1 t; 人造革/合成革 1 m² 记为 0.6 kg; 酒精密度记为 807 kg·m⁻³; 白酒、啤酒和葡萄酒密度记为 900 kg·m⁻³^[22]. 在农副食品加工业中,参考全国各类食用植物油生产比例来估算 2009 ~ 2018 年湖北省的产量,其中棉花籽油、花生油、大豆油、玉米油和菜籽油的生油比例为 3.66:6.34:61.71:3.9:24.39^[25]. 文献[21 22]中并未提及菜籽油生产中 VOCs 的排放因子,所以在本研究工作中并未体现其 VOCs 的排放贡献.

1.3.3 溶剂使用源

溶剂使用源是指生产和使用有机溶剂的工业生产和生活部门^[21 22]. 在本研究中包括农药使用、表面涂层和印刷印染这 3 种行业类别,具体的子类如表 3 所示.

溶剂使用源 VOCs 排放量排放因子法估算公式如式(3)^[21]:

$$E = \sum EF_k \times Q_k \quad (3)$$

式中 E 为 VOCs 排放量; EF 为 VOCs 排放因子; Q 为燃料消耗量; k 为溶剂使用的 VOCs 排放因子源.

在农药使用行业类别中,参考我国杀虫剂、杀菌剂和除草剂的 5a 平均占比估算湖北省各子类农药使用量^[26]; 其中在 2016 年停止除草剂百草枯在中国的销售和使用,所以在本研究工作中并未体现其使用过程中 VOCs 的排放贡献. 在印刷印染行业中,湖北省统计年鉴中未给出各类印刷品的油墨消耗量^[15 18],在本研究中利用单色印刷品和多色印刷品数量,以典型 787 × 1 092 正度铜版纸为例,一令纸的用墨量为 0.807 kg^[27 28],并根据全国 2018 年传统油墨占比为 80% 左右,估算印刷印染行业中各子类的 VOCs 贡献^[29].

1.3.4 移动源

移动源是指由发动机牵引、能够移动的各种客运、货运交通设施和机械设备^[21 22]. 在本研究中包括道路移动源和非道路移动源两种主要机械类型,具体的机械类型如表 4 所示.

道路交通源 VOCs 排放量排放因子法估算公式如式(4)^[22]:

$$E = \sum P_i EF_i \times VMT \quad (4)$$

式中 E 为 VOCs 排放量; P 为车辆保有量; EF 为 VOCs 排放因子; VMT 为年均行驶里程; i 为车辆类型; 在本研究工作中移动源的 VOCs 排放采用国 5 的排放标准判定方法^[30].

机动车尾气排放因子由基准排放因子结合实际情况修正获得,计算公式如式(5)^[22]:

$$EF = BEF_i \times \varphi \times \lambda \times \theta \quad (5)$$

式中 BEF 为基准排放因子; φ 为环境修正因子; λ 为劣化修正因子; θ 为车辆其他使用条件(如负载系数和油瓶质量等)修正因子; i 为车辆类型.

据文献[20],湖北省 2018 年平均温度为 13 ~ 22℃、湿度小于 50%,所以柴油和汽油车排放因子的温度修正因子和湿度修正因子为 1. 湖北省海拔在 1 500 m 以下,环境修正因子为 1. 2018 年国 5 标准下的微型、小型载客汽油机动车排放因子劣化系数为 1.38,其他汽油机动车排放因子劣化系数为 1.48,出租车的排放因子劣化系数为 1.52. 湖北省不同燃料类型车辆数按照全国机动车保有量分析中的比例来计算^[31].

非道路交通源包括 3 种机械类型,其 VOCs 排放量排放因子法估算公式如式(6) ~ (8)^[22]:

$$E = \sum A_i EF_i \quad (6)$$

式中 E 为 VOCs 排放量; EF 为 VOCs 排放因子; 对于飞机 A 为起飞着陆循环次数; 对于船舶 A 为燃料消费量; i 为机械类型.

表 2 工艺过程源行业类别、子类、活动水平和排放因子

Table 2 Categories, subcategories, activity levels, and emission factors of process sources

行业类别	子类	排放因子 /g·kg ⁻¹	活动水平 /t
石油加工	天然原油	1.417 5	542 516
	天然气	0.34 ¹⁾	50 939 ²⁾
	原油加工	0.32	14 140 172
非金属矿物 制品业	硅酸盐水泥熟料	0.33	61 379 603
	水泥	0.177	109 010 821
	平板玻璃	4.4	4 716 350
	日用玻璃制品	4.4	913 886
	玻璃包装容器	4.4	646 082
	玻璃纤维纱	3.15	6 627
	人造板	0.5 ¹⁾	10 239 870 ²⁾
	石油沥青	0.432	157 879
	石墨及炭素制品	52	339 817
化学原料及 化学制品 制造业	乙烯	0.097	893 114
	丙烯	0.111	463 827
	纯苯	0.1	375 693
	合成氨	4.72	3 350 680
	化学农药原药	430	199 725
	化学药品原药	430	157 444
	尿素	0.01	605 066
	聚丙烯树脂	3	678 134
	聚氯乙烯树脂	0.7448	192 871
	聚苯乙烯树脂	5.4	31 187
化学纤维 制造业	涂料	15	1 694 007
	粘胶短纤维	14.5	84 981
	粘胶纤维长丝	14.5	15 374
	涤纶纤维	0.7	97 877
橡胶及塑料 制品业	丙纶纤维	37.1	56 469
	橡胶轮胎外胎	0.91 ³⁾	9 345 886 ⁴⁾
	合成橡胶	7.17	30141
	泡沫塑料	770	136428
	塑料人造革及合成革	0.182	11 070
农副食品 加工业	棉花籽油	8.75	112 885
	花生油	10.35	195 667
	大豆油	2.45	1 903 987
	玉米油	9.35	120 410
	糖果	8	214 450
	发酵酒精	218.25	3 937
	白酒	25	503 526
	啤酒	0.25	1 507 905
纺织业	葡萄酒	0.5	3 068
	纱	10	2 983 948
造纸业	布	10	1 065 732
	纸浆	3.1	14 019
黑色金属冶炼 及压延加工业	焦炭	2.96	8 739 775
	粗钢	0.06	34 691 955

1) 单位为 g·m⁻³; 2) 单位为 万 m³; 3) 单位为 kg·条⁻¹; 4) 单位为 条

表 3 溶剂使用源行业类别、子类、活动水平和排放因子

Table 3 Categories, subcategories, activity levels, and emission factors of solvent sources

行业类别	子类	排放因子 /g·台 ⁻¹	活动水平 /台	子类	排放因子 /g·台 ⁻¹	活动水平 /台	行业类别	子类	排放因子 /g·kg ⁻¹	活动水平 /t
表面 涂层	汽车	21.2	2 419 017	家用电热水器	0.2	2 384 300	农药 使用	多菌灵	382	551
	电动自行车	0.3	418 389	家用燃气灶具	0.2	1 663 023		稻瘟净	568	
	木质家具	0.4	5 205 685	包装专用设备	0.4	14 536		草甘膦	355.8	551
	金属家具	0.2	461 638	塑料加工专用设备	0.4	1 516		敌敌畏	576	
	家用电冰箱	0.2	4 887 988	饲料生产专用设备	0.4	2 239		氧化乐果	568	897
	家用冷冻箱	0.2	1 834 225	农产品初加工机械	0.4	141 274		氯氰菊酯	562	
	房间空气调节器	0.2	18 428 634	收获后处理机械	0.4	71 778		印刷 印染	100 ¹⁾	90 560 859 ³⁾
	家用吸排油烟机	0.2	4 186	环境污染防治专用设备	0.4	71 653			750 ²⁾	31 838 765 ⁴⁾

1) 新型油墨排放因子; 2) 传统油墨排放因子; 3) 单位为 令; 4) 单位为 对开色令

船舶的燃料消费量通过客货周转量计算获得, 公式如式(7):

$$A = (0.0065 \times Z_{客} + Z_{货}) \times YX \quad (7)$$

其中 $Z_{客}$ 为客运周转量; $Z_{货}$ 为货物周转量; YX 为耗油系数, 本研究中取 50.

农用机械的 VOCs 排放量排放因子法估算公式如式(8)^[22]:

$$E = \sum_n (P_n \times G_n \times LF_n \times hr_n \times EF_n) \quad (8)$$

式中 n 为功率段; P 为农用机械保有量; G 为平均额定净功率; LF 为负载因子; hr 为年使用小时数; EF 为 VOCs 排放因子.

1.3.5 废弃物处理源

废弃物处理源是指由工业、生活产生并进入集中处置内的废水、固体废弃物以及烟气脱硝过程副产物^[21, 22]. 在本研究中包括生活垃圾和城市污水两种类别, 具体的子类如表 5 所示.

废弃物处理源 VOCs 排放量排放因子法估算公式如式(9)^[22]:

$$E = \sum A_i EF_i \quad (9)$$

式中 E 为 VOCs 排放量; A 为废弃物年处理量; EF 为 VOCs 排放因子; i 为处理类型.

1.4 排放量空间分布方法

在本研究中利用地理信息系统工具, 结合市州 9 类工艺过程的工业总产值^[18], 对湖北省 2018 年工艺过程源 VOCs 排放量进行分配; 本研究中的 VOCs 排放强度分为单位面积排放强度($t \cdot km^{-2}$) 和单位 GDP 排放强度($t \cdot 亿元^{-1}$).

2 结果与讨论

2.1 湖北省人为源 VOCs 排放贡献

湖北省 2018 年 5 类人为源 VOCs 排放总量为 $6.52 \times 10^5 t$ (图 1), 与黄碧捷等^[32] 估算的 2015 年湖北省人为源(燃烧源、工业源和移动源) VOCs 排放总量 $8.35 \times 10^5 t$ 相比, 2018 年的 VOCs 污染物排放量有所下降. 在 5 类源中, 化石燃料固定燃烧源排放

表 4 移动源行业类别、子类、活动水平和排放因子

Table 4 Categories, subcategories, activity level, and emission factors of mobile source

行业类别	子类	排放类型	排放因子 /g·km ⁻¹	活动水平 /辆	子类	排放类型	排放因子 /g·km ⁻¹	活动水平 /辆	行业类别	子类	排放因子 /g·kg ⁻¹	活动水平 /万台	
道路移动源	运营/非运营载客汽车	大型	运行排放	0.62	54 664	运营/非运营载货汽车	重型	运行排放	0.2	机械	农用大中型拖拉机	5	16.15
			蒸发排放	0.03			中型	运行排放	0.36		农用小型及手扶拖拉机	5	115.87
		运行排放	0.16	22 064	轻型		运行排放	0.21	574 708		非道路 农用水泵	5	108.96
		蒸发排放	0.04	6 689 268	其他运营/非运营汽车		通源 船舶	联合收割机	4.76		10.22		
	运行排放	0.08	三轮汽车		运行排放	0.38		4 871	机动船	6.19	3 172 ¹⁾		
	蒸发排放	0.04	低速货车		运行排放	0.85		28 196	驳船	106 ¹⁾			
	运行排放	0.44	37 072		普通摩托车	运行排放		0.21	2 974 889	飞机	1.95 ²⁾	356 494 ³⁾	
	出租车(运营)		蒸发排放	0		蒸发排放	0.51						
			运行排放	0.88		27 218	蒸发排放			0.51			
			运行排放	0.12		71	其他类型车			运行排放	0.12	71	
			蒸发排放	0.12		71							

1) 单位为艘; 2) 单位为 kg·LTO⁻¹, LTO 为飞机起飞着陆循环次数; 3) 单位为台

表 5 废弃物处理源行业类别、子类、活动水平和排放因子

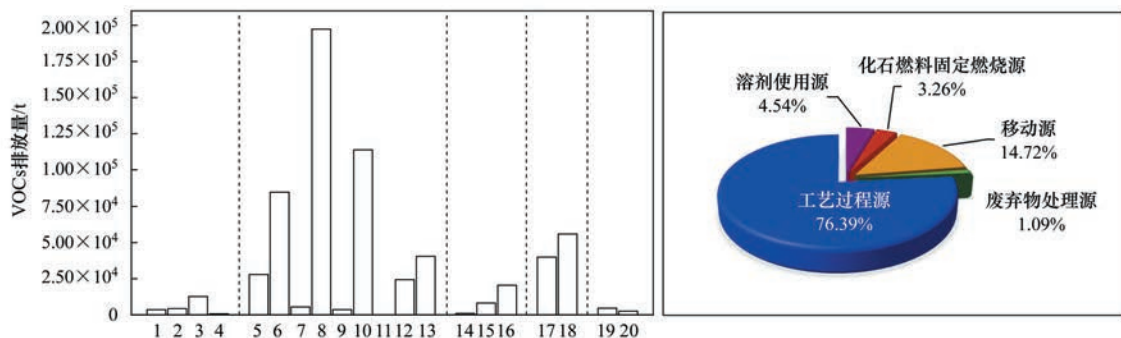
Table 5 Categories, subcategories, activity levels, and emission factors of waste disposal sources

行业类别	子类	排放因子 /g·kg ⁻¹	活动水平 /t·d ⁻¹
生活垃圾	固体废物填埋	0.23	14 847
	固体废物焚烧	0.74	12 350
城市污水	污水处理	0.001 1	6 290 000

量为 2.12×10^4 t, 工艺过程源排放量为 4.98×10^5 t, 溶剂使用源排放量为 2.96×10^4 t, 移动源排放量为 9.59×10^4 t, 废弃物处理源排放量为 7.11×10^3 t, 贡献分别为 3.26%、76.39%、4.54%、14.72% 和 1.09%。按照文献 [33] 中公布全国 VOCs 总排放量为 1 017.45 万 t, 本研究中估算的湖北省 VOCs 排放量约占全国的 6.41%。

如图 2(a) 所示, 化石燃料固定燃烧源中有 4 个子类, 工商业贡献最高 59.79%, 其次为热力生产和

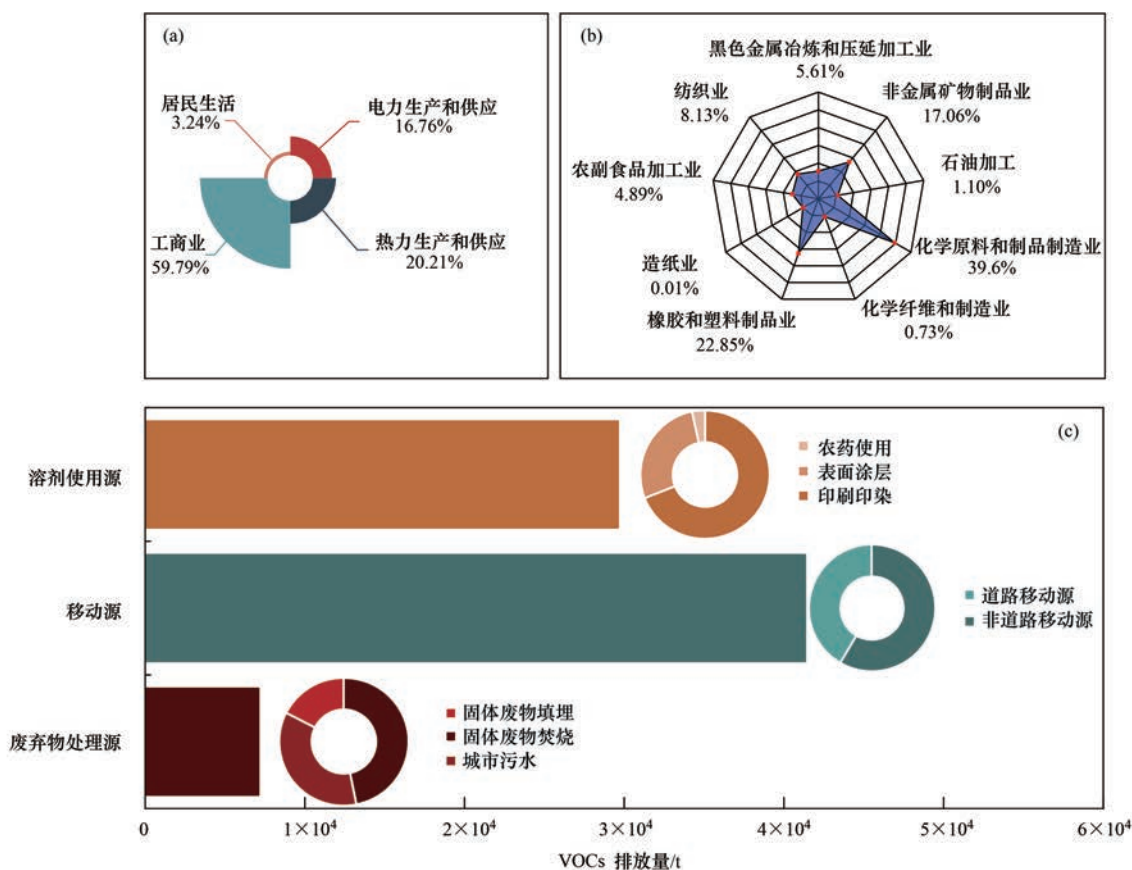
供应 20.21%、电力生产和供应 16.76%, 居民生活源 VOCs 排放贡献最低 3.24%。在本研究原煤、液化石油气、天然气和煤气等燃料燃烧估算中, 原煤在工商业、电力生产和供应、热力生产和供应这 3 个子类中均有消耗, 其燃烧所排放的 VOCs 为 1.96×10^5 t, 在化石燃料固定燃烧源 VOCs 排放中的贡献高达 92.35%。中国为原煤消费大国, 除了制造业外, 发电厂也主要依赖于原煤燃料^[34]。虽然三峡和葛洲坝水电站地处湖北, 但发电量为全国统一分配, 其中 83% 会送往他省, 所以湖北省的自用电源主要还是依赖于火电电力, 其占比超过 70%^[35]。本研究中居民生活包括液化石油气和天然气的使用, VOCs 排放量分别为 60.65 t 和 627.77 t。与山东和河北地区的研究相比^[36-37], 湖北省的居民生活 VOCs 排放量偏低。Zhu 等^[38]研究的关于中国居民能源消费和空气污染物排放的时空趋势表明, 环境温度和生活方式为驱动因素, 华北的居民燃料消耗明显高于其他



化石燃料固定燃烧源: 1. 电力生产和供应 2. 热力生产和供应 3. 工商业 4. 居民生活; 工艺过程源: 5. 黑色金属冶炼及压延加工业 6. 非金属矿物制品业 7. 石油工业 8. 化学原料及化学制品制造业 9. 化学纤维及制造业 10. 橡胶塑料制造业 11. 造纸业 12. 农副食品加工业 13. 纺织业; 溶剂使用源: 14. 农药使用 15. 表面涂层 16. 印刷印染; 移动源: 17. 道路移动源 18. 非道路移动源; 废弃物处理源: 19. 生活垃圾 20. 城市污水

图 1 湖北省 2018 年不同子类 VOCs 排放量及占比

Fig. 1 VOCs emissions and proportions from different subcategories in Hubei Province in 2018



(a) 化石燃料固定燃烧源内占比; (b) 工艺过程源内占比; (c) 移动源和废弃物处理源内占比

图2 湖北省2018年5类源VOCs排放贡献

Fig. 2 VOCs emissions contribution of five sources in Hubei Province in 2018

地区. 2018年湖北省城市天然气普及率达到97.13%,因此居民生活VOCs排放量较低^[39].

如图1所示,工艺过程源的VOCs排放贡献尤为突出,高达76.39%.工艺过程源涉及的行业类型广泛,其中不同行业的排放量为:化学原料及化学制品制造业 1.97×10^5 t;橡胶及塑料制品业 1.14×10^5 t;非金属矿物制造业 8.49×10^4 t;纺织业 4.05×10^4 t;黑色金属冶炼及压延加工业 2.79×10^4 t;农副食品加工业 2.43×10^4 t;石油加工 5.47×10^3 t;化学纤维制造业 3.62×10^3 t;造纸业43.50 t.在文献[33]中工艺过程源VOCs排放总量为481.66万t,基于本研究估算,湖北省贡献为10.34%.公报同时公布了VOCs排放量位居前3位的行业,涉及化学原料及化学制品制造业,石油、煤炭及其他燃料加工业,橡胶及塑料制品业,与本研究中估算的湖北省工艺过程源中行业VOCs排放贡献相似.化学原料及化学制品制造业所涉及到的产品种类繁多,其中化学农药原药、化学药品原药生产在化学原料及化学制品制造业中VOCs贡献最高,分别为43.52%和34.31%.这两类贡献较高的原因是原药生产中需要有机溶剂对其进行分离提纯,有机溶剂的无组织挥发和有组织排放产生大量

VOCs^[40],且装置运行时间较长,设备动静密封点会发生泄漏逸散,造成物料损失和VOCs的产生.橡胶及塑料制品业中泡沫塑料的VOCs排放因子非常高,导致其VOCs的贡献高达92.33%.非金属矿物制造业在工艺过程源中占有较大贡献17.06%,其中玻璃行业 and 水泥行业排放最高.玻璃行业VOCs总排放量为 2.76×10^4 t,在工艺过程中其所需温度较高,VOCs无组织排放较多.水泥熟料和水泥生产消耗大量的原材料和能源,已造成严重的空气污染^[41].

与化学原料及化学制品制造业、橡胶及塑料制品业和非金属矿物制造业相比,其他行业VOCs排放贡献相对较小,纺织业8.13%、黑色金属冶炼及压延加工业5.61%、农副食品加工业4.89%、石油加工1.10%、化学纤维制造业0.73%和造纸业0.01%.纺织工业使用不同种类的染料,包括最常用的偶氮染料,它们是苯、甲苯、萘、苯酚和苯胺的芳香烃衍生物^[42].黑色金属冶炼及压延加工业中包括焦炭和粗钢的生产,VOCs排放量分别为 2.59×10^5 t和 2.09×10^3 t.焦炭厂最丰富的VOCs排放物为苯、甲苯和丙酮,最大的排放源是焦炉煤气的有组织排放,其次是焦炭副产物和焦炉炉门泄漏煤气的无组织排

放^[43, 44], 如表 6 所示. 农副食品加工业中主要包括酒类、食用植物油和糖的加工, 其 VOCs 排放量为 1.38×10^4 、 8.80×10^3 和 1.71×10^3 t. 石油加工中 VOCs 排放包括天然原油生产 769.02t、原油加工 4.52×10^3 t、天然气加工 173.19t. 本研究仅聚焦到石油加工工艺过程中的排放, 与其他还涉及储油、运输环节的 VOCs 排放研究相比占比较低^[45, 46].

如图 2(c) 所示, 溶剂使用源中包括印刷印染、表面涂层和农药使用这 3 个子类源, 贡献分别为 2.05×10^4 、 8.19×10^3 和 968.31 t. 印刷印染中包括传统油墨和新型油墨, 传统油墨的 VOCs 排放因子

是新型油墨的 7.5 倍. 但在现有水平中, 湖北省的传统油墨覆盖率在 80% 左右, 这也是导致印刷印染排放高达 2.96×10^4 t 的原因^[29]. 表面涂层贡献为 8.19×10^3 t, 贡献较高的为房间空气调节器 3.69×10^3 t 和木质家具 2.08×10^3 t. 这些产品喷涂中 VOCs 排放因子相近, 排放量的差异主要是源于活动水平的不同. Zhong 等^[47] 的研究表明芳香族化合物是木质家具、金属设备表面涂层、汽车涂层等中 VOCs 的最大类别. 农药使用贡献最低, 这与农药使用量较低有关, 农药中 VOCs 的最大类别为氯代烃^[48], 如表 6 所示.

表 6 各行业 VOCs 排放量、源内占比和主要 VOCs 种类及排放环节

Table 6 VOCs emissions, proportion, main VOCs types, and main emission links in various industries

排放源	行业类别	排放量/t	源内占比/%	类别	主要排放环节	主要 VOCs 种类
化石燃料 固定燃烧源	电力生产及供应	3.56×10^3	16.76	燃料	燃烧过程	原煤燃烧: 芳香化合物、卤代化合物、烷烃、烯烃和含氧 VOCs ^[59] 焦炭燃烧: 芳香烃、酮类、醇类和酸类 (甲苯、三甲苯和正己烷) ^[60, 61]
	热力生产及供应	4.29×10^3	20.21			
	工商业	1.27×10^4	59.79			
	居民生活	6.88×10^2	3.24			
工艺过程源	黑色金属冶炼及压延加工业	2.80×10^4	5.61	炼焦行业	焦炉煤气排放、焦炉门煤气泄漏和副产品生产 ^[43]	芳烃、烯烃和烷烃(苯、甲苯、丙酮、乙烯和乙烷等) ^[43]
	非金属矿物制品业	8.49×10^4	17.06	沥青行业	整个工艺过程中高温下无组织挥发 ^[62-64]	含烷烃和烯烃的脂肪烃、醛和酮的脂肪烃 ^[62-64]
	石油加工	5.47×10^3	1.10	石油加工	储罐损失、泄漏损失和炼油废水 ^[45, 46]	烯烃、烷烃、卤代烃和芳香烃 (C2~C6、乙烯、乙烷、苯和甲苯等) ^[45, 46]
	化学原料及制品制造业	1.97×10^5	39.63	制药行业	有机溶剂有组织排放和无组织挥发 ^[65]	烷烃、芳香化合物、卤代化合物和羰基化合物(二氯甲烷和丙酮等) ^[65]
	化学纤维制造业	3.62×10^3	0.73	橡胶行业	橡胶屑干燥过程 ^[66, 67]	苯衍生物、酮类、醛类和酯类 ^[66, 67]
	橡胶及塑料制品业	1.14×10^5	22.85			
	造纸业	43.5	0.01			
	农副食品加工业	2.43×10^4	4.89	酒类生产	酒精挥发	乙醇
	纺织业	4.05×10^4	8.13	纺织行业	染料、增白剂、抗皱剂和废水 ^[68]	含氮和含氧化合物、脂肪烃、芳香烃和卤代烃 ^[68]
	溶剂使用源	农药使用	968.31	3.27	农药行业	工业废水排放和使用过程 ^[48]
表面涂层		8.19×10^3	27.64	家具行业	喷涂过程 ^[69, 70]	乙酸乙酯、醋酸正丁酯、甲苯和二甲苯等 ^[69, 70]
印刷印染		2.05×10^4	69.09	汽车行业	喷涂过程 ^[71, 72]	苯系物、醇类和脂类(苯、甲苯、异丙醇和乙酸乙酯等) ^[71]
移动源	道路移动源	4.00×10^4	41.64	汽油汽车	运行尾气和蒸发排放 ^[49, 50, 53]	烷烃、芳烃、烯烃和含氧 VOCs (乙烯和羰基为主的含氧化合物) ^[49, 50]
	非道路移动源	5.60×10^4	58.36	柴油汽车	运行尾气排放 ^[49, 50]	烷烃、芳烃和 OVOCs (丙烷、丁烷和羰基为主的含氧化合物) ^[49, 50]
				飞机、机械	尾气和储油罐 ^[55, 73]	芳香烃和烯烃(甲苯、对-二甲苯和苯乙烯等) ^[55, 73]
废弃物处理源	生活垃圾	4.58×10^3	64.47	垃圾填埋	厌氧和好氧生物降解过程 ^[56, 74]	芳香化合物、氯代化合物和羰基化合物 ^[56, 74]
	城市污水	2.53×10^3	35.53	垃圾焚烧	燃烧过程 ^[75]	芳香化合物、烯烃和含氧化合物(苯和乙烯等) ^[75]

在本研究中, 移动源包括道路移动源和非道路移动源, 主要对象为汽车、飞机、农用机械和船舶, VOCs 的排放量分别为 3.99×10^4 、 1.39×10^3 、 4.78×10^4 和 6.79×10^3 t, 在湖北省人为源 VOCs 排放中占比在 14.72%. 汽车的保有量较多, 且行驶里程较

长, 所以对道路移动源的贡献高达 41.64%. 许多研究提出道路移动源中 VOCs 种类与车辆类型和燃料类型有关^[49-52], 其中重型柴油车所使用的柴油以 C9~C11 直链烷烃为主, 轻型汽油车所使用的汽油以异戊烷和 C6~C8 支链烷烃为主, 汽油车尾气比

柴油车尾气排放更多烯烃,并且羰基化合物是重型柴油车尾气中 VOCs 的重要组成成分.在有关道路移动源蒸发排放的研究中检测出烷烃、芳烃及烯烃是主要排放类型^[53-54].相较于道路移动源 VOCs 排放,非道路移动源的排放机械类型更多,其中农用机械的保有量较大,这与湖北省的农业发展有关,并且农用机械的排放因子也高于其他机械类型,导致农用机械的 VOCs 的占比高达 49.83%.船舶和飞机的 VOCs 排放占比分别为 7.08% 和 1.45%.在 Lai 等^[55]的研究中检测出机场的 22 种 VOCs 中,芳香烃占比最大.

废弃物处理源中包括 3 种废弃物处理方式,其 VOCs 排放量分别为固体废弃物填埋 1.25×10^3 t、固体废弃物焚烧 3.33×10^3 t 和城市污水 2.53×10^3 t.固体废弃物焚烧是一种热处理方法,使可燃废弃物更易转化为挥发性有机物,所以其贡献较高.垃圾填埋场的厌氧和好氧生物降解产生沼气^[56],包括 CO_2 、 CH_4 和其他 VOCs.废水处理厂的 VOCs 排放主要通过 3 种途径发生^[57-58]: ①在空气和接触水相之间的浓度梯度驱动下,通过扩散从废水中释放; ②空气和水相之间的温度差异,使 VOCs 从沸水中蒸发到周围的大气; ③通过对流气流对废水提供足够的氧气,以维持需氧微生物的活性,加速污水处理厂的 VOCs 排放.

2.2 湖北省人为源 VOCs 排放特征

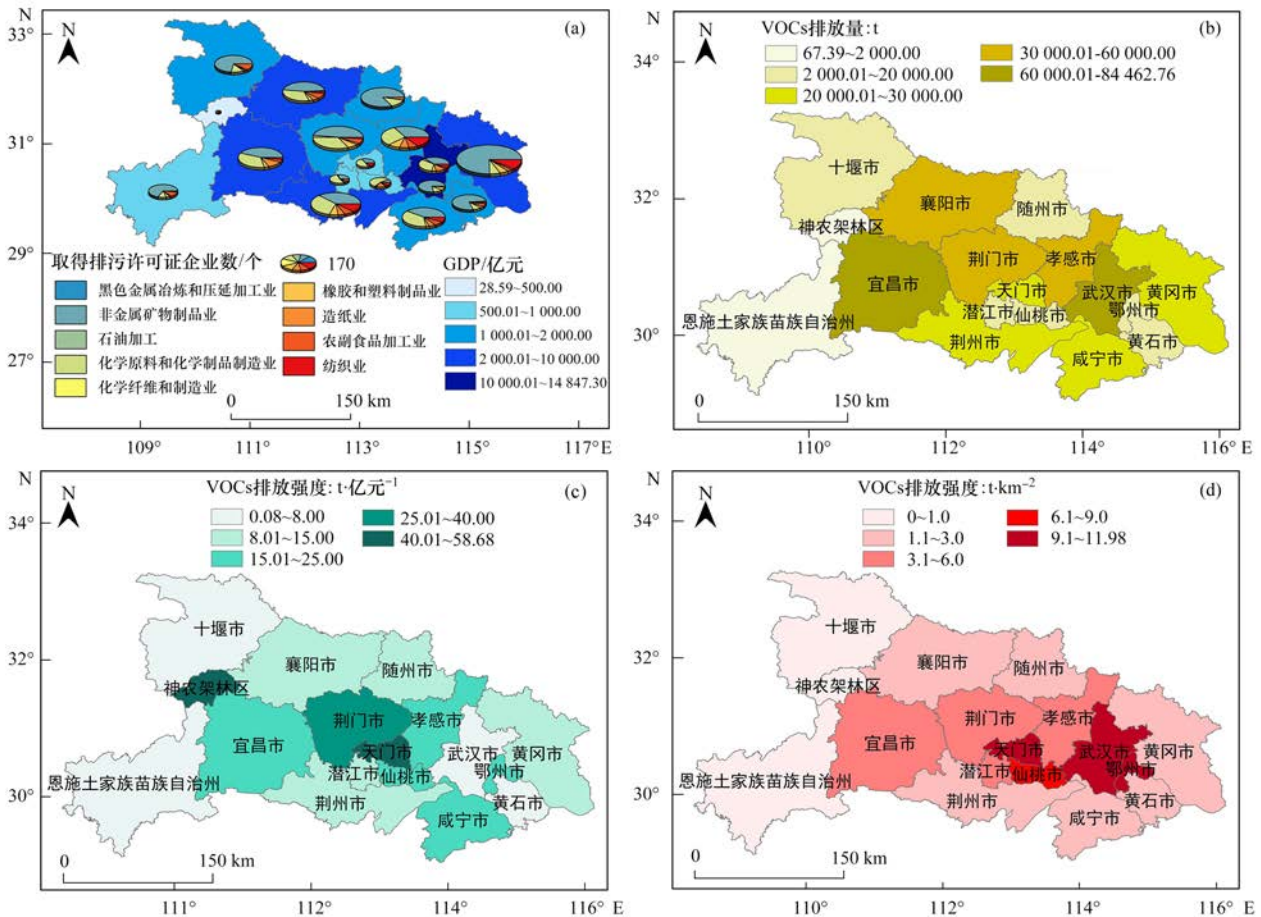
湖北省 2018 年人为源 VOCs 排放总量为 6.52×10^5 t,在中国 2018 年工艺过程源 VOCs 排放总量研究中,湖北省的排放量位居全国前八^[76],本研究中估算湖北省 2018 年工艺过程源 VOCs 排放量占全国工艺过程源 VOCs 排放量的 6.41%.相比于黄碧捷等^[32]关于湖北省 2015 年人为源 VOCs 排放研究中,2018 年湖北省的源排放占比情况有所变化,工艺过程源为主要排放源,化石燃料固定燃烧源占比有所下降.根据行业特征,化学原料及化学制品制造业、橡胶及塑料制品业为 VOCs 易产生的行业,其贡献在总的人为源 VOCs 排放量中分别为 30.27% 和 17.45%,其高占比显现出它们的不可忽视性.一方面是由于行业特征,在化学原料和制品制造业、橡胶及塑料制品业中会使用较多的有机溶剂,另一方面是由于工艺过程中的回收和污染防治系统不完善导致有较多 VOCs 产生.化石燃料固定燃烧源的贡献仅为 3.26%,一方面是湖北省的电力、热力的生产和供应为统一规划,极大程度上减少化石燃料消耗;天然气使用居民数较多,液化石油气的使用率降低,从而降低 VOCs 的贡献.2012 年生态环境部颁布《火电厂大气污染物排放标准》(GB 13223-

2011)^[77]进一步控制化石燃料烟气的污染排放.溶剂使用源的贡献较低,仅为 4.54%.近几年提倡的绿色有机生活及国务院在文献[78]中规范农药生产与农药使用,一定程度上减少了农药的使用.但在印刷印染中,传统油墨的使用率很高,传统油墨中有 50%~60% 的挥发性成分,再加上调整油墨所需的稀释剂的生产和干燥过程会排放大量的 VOCs,所以应引导印刷印染行业的健康有序发展,加快环保的新型油墨的取代进程^[29].移动源为湖北省 2018 年第二大排放源,于 2017 年 1 月 1 日起在全国实施第五阶段国家机动车排放标准(国 5),在一定程度上降低了机动车的 VOCs 排放量^[30],现阶段移动源主要是由于机动车和农用机械的保有量大,导致 VOCs 贡献高.湖北省的移动源 VOCs 排放贡献较高,但并不是其主要 VOCs 排放源,而在北京和成都等城市 VOCs 的主要来源为移动源^[7-79].在现有研究中,较少有关于各地区的废弃物处理源 VOCs 排放量的计算,虽然其在总 VOCs 中的贡献较小,但是对垃圾处理厂和污水处理厂周围地下水、空气质量的影响非常大^[57-74].

本研究进一步解析了湖北省各市州工艺过程源 VOCs 的排放特征.从相关行业企业数量及分布调查中发现^[23],湖北省获得总排污许可证共计 2 808 个,其中非金属矿物制造业的数量最多 1 544 个,其次为化学原料及化学制品制造业 669 个.各市州取得排污许可证的企业数量如图 3(a)所示,数量最多的为黄冈市 469 个,其次为荆门市 281 个和孝感市 275 个,其中占比最多的均为非金属矿物制造业,其次为化学原料及化学制品制造业.湖北省 2018 年工艺过程源 VOCs 排放的空间分布如图 3(b)所示,各市州的 VOCs 排放量分别为:武汉市 8.45×10^4 t、宜昌市 6.80×10^4 t、荆门市 5.76×10^4 t、襄阳市 5.37×10^4 t、孝感市 4.46×10^4 t、荆州市 2.98×10^4 t、咸宁市 2.60×10^4 t、天门市 2.82×10^4 t、黄冈市 2.27×10^4 t、鄂州市 1.90×10^4 t、仙桃市 1.71×10^4 t、十堰市 7.70×10^3 t、恩施州 1.68×10^3 t、随州市 1.54×10^4 t、黄石市 1.14×10^4 t、潜江市 1.05×10^4 t 和神农架林区 67.4 t. VOCs 排放主要集中在湖北省中部市州,神农架林区的区域独特性,其主要工业为酒类生产与水泥生产,导致其 VOCs 排放量很低.基于湖北省各市州经济水平和面积计算 VOCs 排放强度,如图 3(c)和 3(d)中所示.基于经济水平计算的排放强度,其高排放强度地区为天门市和神农架林区,主要由于这两个地区的工业产值较低.武汉市的排放强度较低,是由于其工业产值过高.湖北省各市州基于经济水

平计算的 VOCs 排放强度主要集中在 10.0 ~ 20.0 t·亿元⁻¹之间. 湖北省各市州基于面积计算的排放强度结果有所不同,强度主要集中在 2.0 ~ 3.0 t·km⁻²之间,其中武汉市、鄂州市和天门市为高强度排放区域. Zhou 等^[80]的研究中表明青岛市各区县 2016 年人为源 VOCs 排放强度主要集中在 4.7 ~ 20.0 t·km⁻²之间,高于湖北省的整体水平. 湖北

省工艺过程源 VOCs 排放主要集中在中部市州,亦是其工业企业数量较多的地区,其空间分布情况与 GDP 相似,但其取得排污许可证的企业数量相对较少,一方面可能是由于企业规模较大,排放强度高;另一方面是由于相关管理办法推行进程不一^[23],相关地区可加强其管理制度的实施,加快对于工业企业排污的规范管理的速度.



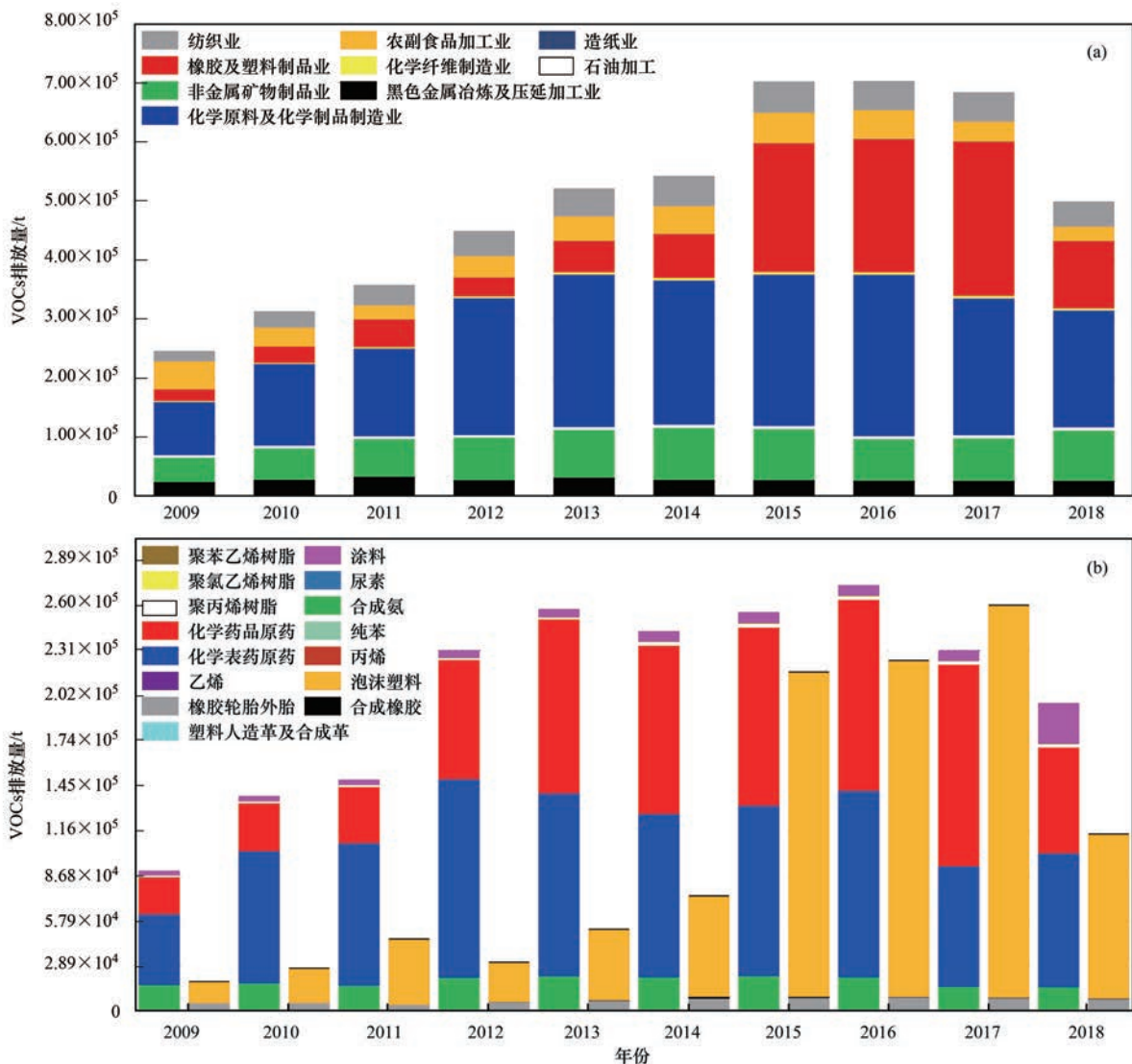
(a) 湖北省各市州取得排污许可证企业数及 GDP; (b) 湖北省各市州 VOCs 排放量;
(c) 湖北省各市州基于经济水平的 VOCs 排放强度; (d) 湖北省各市州基于面积的 VOCs 排放强度

图 3 湖北省 2018 年工艺过程源 VOCs 排放的空间分布
Fig. 3 Spatial allocation of VOCs emissions in Hubei Province

2.3 湖北省工艺过程源排放趋势及影响因素

在湖北省 2018 年人为源排放清单中可以发现,工艺过程源的贡献高达 76.39%,所以本研究中进一步探究湖北省 2009 ~ 2018 年 10 年间工艺过程源的排放特征及变化趋势. 图 4(a) 为湖北省 2009 ~ 2018 年工艺过程源 VOCs 排放趋势,2009 ~ 2018 年的工艺过程源 VOCs 排放量分别为 2.45×10^5 、 3.13×10^5 、 3.57×10^5 、 4.48×10^5 、 5.20×10^5 、 5.41×10^5 、 7.01×10^5 、 7.01×10^5 、 6.83×10^5 和 4.98×10^5 t,其变化趋势为先逐年升高,在 2015 ~ 2017 年排放达到高峰,2018 年显著下降. 自 2010 年开始,为应对金融危机的影响,政府出台相关政策并实施大量的工业建设投资项目,短期内极大地刺激了经

济的发展,并且推动了工业发展^[81]. 在 1990 ~ 2017 年间中国人为 VOCs 排放增长的主要驱动力研究中表明^[82] 2000 年之前中国的 VOCs 排放量的增长主要是移动源驱动,2000 年之后工艺过程源和溶剂使用导致 VOCs 排放量上升. 本研究中湖北省 2009 ~ 2015 年的 VOCs 排放量逐年上升,与全国的排放趋势相同. 在“十三五”规划(2016 ~ 2020 年)中强调创新区域环境污染防治与管理,并且根据“十三五”规划,文献[2]中首次将 VOCs 纳入全国污染源普查工作,加大对 VOCs 排放的监管力度. 为贯彻落实文献[1]有关要求,确保完成“十三五”环境空气质量改善目标任务,把 VOCs 治理攻坚作为打赢蓝天保卫战收官的重要任务. 湖北省 2018 年工艺过程源



(a) 2009 ~ 2018 年湖北省工艺过程源 VOCs 排放量; (b) 化学原料及化学制品制造业和橡胶及塑料制造业 VOCs 排放量

图 4 湖北省 2009 ~ 2018 年工艺过程源 VOCs 排放量

Fig. 4 VOCs emissions of process source in Hubei Province from 2009 to 2018

VOCs 排放量比 2017 年下降 27.07%, 表明相关政策引导下, 重点区域治理和重点行业减排成效显著.

如图 4(a) 所示, 在工艺过程源中包括 9 个子类, 其中化学原料及化学制品制造业和橡胶及塑料制品业为湖北省 2009 ~ 2018 年工艺过程源 VOCs 排放变化的主要驱动力, 10 年间贡献分别为 33.85% ~ 51.55% 和 7.07% ~ 38.13%. 两个行业的 VOCs 排放量如图 4(b) 所示, 化学原料及化学制品制造业在 2009 ~ 2013 年间排放量逐年递增, 2013 年后趋于平稳, 在 2016 年达到最大排放量 2.73×10^5 t, 之后排放量有所下降. 在化学原料及化学制品制造业中化学农药原药和化学药品原药的贡献较大且变化较为明显, 化学药品原药在 2009 ~ 2017 年间的 VOCs 排放量在逐年增加, 在 2017 年达到最大排放量 1.29×10^5 t, 2018 年排放量有所下降. 化学农药原药和化学药品原药有相同趋势, 在 2012 年达到

最大排放量 1.27×10^5 t, 在 2012 ~ 2016 年维持较稳定. 2017 ~ 2018 年排放贡献下降到 30% 左右, 这与文献 [78] 中规范农药生产与农药使用有必然联系. 合成氨 (折算 100%) 作为重要的无机化工产品, 在 10 年中的生产活动水平稳定. 涂料的生产和使用都是容易产生 VOCs 的过程, 在 10 年的 VOCs 排放量中逐年上升, 维持在 6.00×10^3 t 左右, 在 2018 年骤然上升到 2.54×10^4 t. 橡胶及塑料制品业在 10 年间的排放量变化非常明显, 其主要驱动力为塑料泡沫. 塑料泡沫在 2009 ~ 2014 年间的 VOCs 排放量较少, 在 2015、2016 和 2017 年的排放量稳定在 2.00×10^4 t 以上, 甚至超过了化学原料及化学制品制造业整个行业的排放总量. 2018 年有所下降; 塑料泡沫的高驱动力在于其工艺过程中的排放因子较大. 橡胶轮胎外胎在工艺过程源中 VOCs 排放也有较大的贡献, 10 年间排放量逐年增加, 2014 年之后稳定在

1.00×10^4 t 左右。

除化学原料及化学制品制造业和橡胶及塑料制品业外,其他 7 个行业贡献相对较小,在 0.05% ~ 14.36% 之间。黑色金属冶炼及压延加工业包括炼焦和炼钢 2 个子行业。炼焦分为机械炼焦和土法炼焦,土法炼焦对空气的污染远高于机械炼焦。在 2013 年后湖北省的土法炼焦实现完全取代,在 2009 ~ 2013 年炼焦行业的 VOCs 排放量在 3.00×10^4 t 以上,2014 ~ 2018 年排放量在 2.6×10^4 t 左右,排放量有明显降低。石油加工中包括天然原油开采、天然气开采、原油加工 3 个子行业。原油开采的 VOCs 排放因子较大,但是其 VOCs 排放量却远低于原油加工的 VOCs 排放量,其原因是在湖北省探明的石油储量较少,这也是石油加工在全国人为源 VOCs 排放中贡献较高,但在湖北省人为源 VOCs 排放贡献并不突出的原因之一。湖北省 10 年间石油加工的 VOCs 排放量维持在 5.00×10^3 t 左右。文献 [83] 中提出全面开展石化行业 VOCs 防控,严格控制工艺废气排放、生产设备密封点泄漏、储罐和装卸过程挥发损失、废水废液废渣系统逸散等环节及非正常工况排污,显现了对石化行业 VOCs 排放控制的高度重视。化学纤维制造业在全国工业 VOCs 排放中的贡献并不明显^[84],其在湖北省的贡献亦不高,在 2015 年排放量呈现上升趋势,在 2016 年开始下降。造纸业 VOCs 排放量持续上涨,与日常纸制品使用量增加有关。农副食品加工业的主要子行业为植物油加工和酒类生产,VOCs 排放量在 2015 年前持续增加,在 2015 年后开始下降。纺织业在 10 年中 VOCs 排放量逐年递增,到 2015 年最大排放量 5.07×10^4 t,之后开始下降。非金属矿物制品业的 VOCs 贡献是不可忽略的,如图 4(a) 所示,在 2009 ~ 2014 年逐年上升,在 2014 年达到最大值 8.81×10^4 t 后开始下降,其中贡献较高的子行业包括硅酸盐水泥熟料、水泥、平板玻璃的生产。

本研究中湖北省 2009 ~ 2018 年 10 年间工艺过程源 VOCs 排放量与其涉及的 9 个行业变化趋势基本相同,2009 ~ 2015 年逐年递增,2015 ~ 2017 年基本稳定,在 2018 年有所下降,这与其他研究中全国的人为源 VOCs 排放变化相同^[82]。各行业的排放量变化和国家以及地方政策都有直接关系,其中颁布的火电厂^[77]、石化行业^[83]、水泥行业^[85]和平板玻璃排污标准^[86]、农药管理条例^[78]、各行业排污许可证^[87,88],一定程度上有效减少了大气污染物的排放。并且依据文献 [1,2],以改善环境空气质量为核心,以重点地区为主要着力点,以重点化工、石化等行业和重点污染物为主要控制对象,按照排放标准、

排污许可等要求对 VOCs 污染治理设施。文献 [89] 中提出,建立 VOCs 污染防治长效机制,促进环境空气质量持续改善和产业绿色发展,结合行业排放量贡献情况,重点推荐石化、化工、工业涂装、包装印刷、医药、橡胶塑料制品和印染等工业行业以及交通源、生活源的 VOCs 污染防治。从 10 年间的长期过程来看,湖北省工艺过程源 VOCs 治理工作有一定成效,2018 年 VOCs 排放量相对于 2017 年下降 1.85×10^5 t,在化学农药原药、化学药品原药、橡胶和塑料等工艺过程中的 VOCs 排放下降明显。

3 结论

(1) 本研究基于排放因子估算法,结合长江经济带湖北省 2018 年各类源的活动水平数据,建立了湖北省 2018 年人为源 VOCs 排放清单。湖北省 2018 年人为源 VOCs 排放总量为 6.52×10^5 t,按照《第二次全国污染源普查公报》中公布全国 VOCs 总排放量,本研究中估算的湖北省 VOCs 排放量约占全国的 6.41%。其中化石燃料固定燃烧源 VOCs 排放量为 2.12×10^4 t,占比为 3.26%,主要是来源于原煤的燃烧过程。溶剂使用源 VOCs 排放量为 2.96×10^4 t,占比为 4.54%,主要贡献来源于印刷印染行业。移动源 VOCs 排放量为 9.59×10^4 t,占比为 14.72%,汽车和农用机械 VOCs 排放占主导,主要原因为保有量大。废弃物处理源 VOCs 排放量为 7.11×10^3 t,占比为 1.09%。工艺过程源 VOCs 排放量为 4.98×10^5 t,贡献高达 76.39%。

(2) 深入探究工艺过程源在湖北省的空间分布,其中武汉市和宜昌市 VOCs 排放量较高。基于经济水平分析的高排放强度市州为天门市和神农架林区,基于区域面积分析的高排放强度市州为武汉市、鄂州市和天门市。

(3) 本研究进一步分析了 2009 ~ 2018 年 10 年间工艺过程源 VOCs 排放特征及变化趋势。2009 年到 2015 年工艺过程源 VOCs 排放量从 2.45×10^5 t 持续增长到 7.01×10^5 t,之后 2 年趋于稳定,在 2018 年骤然下降到 4.98×10^5 t,与全国的 VOCs 排放情况基本相同。化学原料及化学制品制造业、橡胶和塑料制品业为湖北省 2009 ~ 2018 年工艺过程源 VOCs 排放变化的主要驱动力。10 年间各行业的 VOCs 排放量变化和国家以及地方政策都有直接关系,国家颁布的石化、水泥等行业的排污标准,在一定程度上减少了工艺过程中的 VOCs 排放。

参考文献:

- [1] 国务院. 打赢蓝天保卫战三年行动计划 [EB/OL]. http://www.gov.cn/zhengce/content/2018-07/03/content_5303158.htm, 2018-06-27.

- [2] 环境保护部,发展改革委,财政部,等. 关于印发《“十三五”挥发性有机物污染防治工作方案》的通知[EB/OL]. http://www.mee.gov.cn/gkml/hbb/bwj/201709/t20170919_421835.htm, 2017-09-14.
- [3] Sukul P, Schubert J K, Oertel P, *et al.* FEV manoeuvre induced changes in breath VOC compositions: an unconventional view on lung function tests [J]. *Scientific Reports*, 2016, **6**, doi: 10.1038/srep28029.
- [4] Zhao Q, Wang Q, Li Y J, *et al.* Influence of volatile organic compounds (VOCs) on pulmonary surfactant monolayers at air-water interface: Implication for the pulmonary health [J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 2019, **562**: 402-408.
- [5] Jiménez-Garza O, Guo L Q, Byun H M, *et al.* Aberrant promoter methylation in genes related to hematopoietic malignancy in workers exposed to a VOC mixture [J]. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 2018, **339**: 65-72.
- [6] Heck J E, Park A S, Qiu J H, *et al.* Risk of leukemia in relation to exposure to ambient air toxics in pregnancy and early childhood [J]. *International Journal of Hygiene and Environmental Health*, 2014, **217**(6): 662-668.
- [7] Li Q Q, Su G J, Li C Q, *et al.* An investigation into the role of VOCs in SOA and ozone production in Beijing, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **720**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.137536.
- [8] Liang Q, Bao X, Sun Q, *et al.* Imaging VOC distribution in cities and tracing VOC emission sources with a novel mobile proton transfer reaction mass spectrometer [J]. *Environmental Pollution*, 2020, **265**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.114628.
- [9] Zhu H L, Wang H L, Jing S G, *et al.* Characteristics and sources of atmospheric volatile organic compounds (VOCs) along the mid-lower Yangtze River in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **190**: 232-240.
- [10] Li L Y, Xie S D, Zeng L M, *et al.* Characteristics of volatile organic compounds and their role in ground-level ozone formation in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **113**: 247-254.
- [11] Wang X, Liu G J, Hu R Y, *et al.* Distribution, sources, and health risk assessment of volatile organic compounds in Hefei city [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2020, **78**(3): 392-400.
- [12] Hui L R, Liu X G, Tan Q W, *et al.* Characteristics, source apportionment and contribution of VOCs to ozone formation in Wuhan, Central China [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **192**: 55-71.
- [13] Huang C, Chen C H, Li L, *et al.* Emission inventory of anthropogenic air pollutants and VOC species in the Yangtze River Delta region, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(9): 4105-4120.
- [14] 中华人民共和国中央人民政府. 长江经济带发展规划纲要[EB/OL]. http://www.gov.cn/xinwen/2016-09/12/content_5107501.htm, 2016-09-12.
- [15] 国家统计局. 2019年中国统计年鉴[M]. 北京: 中国统计出版社, 2019.
- [16] 湖北省生态环境厅. 2018年湖北省环境质量状况[EB/OL]. http://sthjt.hubei.gov.cn/fbjd/zc/zcwj/sthjt/qt/201912/t20191213_1760570.shtml, 2019-04-24.
- [17] 付昱萌, 杨红刚, 卢民瑜, 等. 鄂州市大气VOCs污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2020, **41**(3): 1085-1092. Fu Y M, Yang H G, Lu M Y, *et al.* Analysis of pollution characteristics and sources of atmospheric VOCs in Ezhou City [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(3): 1085-1092.
- [18] 湖北省统计局. 2010-2019年统计年鉴[EB/OL]. <http://tj.hubei.gov.cn/tjsj/sjksx/tjnj/qstjnj/>, 2020-03-23.
- [19] 中国民用航空局. 2018年民航行业发展统计公报[EB/OL]. http://www.caac.gov.cn/XXGK/XXGK/TJSJ/201905/t20190508_196033.html, 2019-05-08.
- [20] 湖北省气象局. 2018年湖北省气候变化监测公报[EB/OL]. http://hb.cma.gov.cn/xxgk_29519/tjsj_29533/201907/t20190705_770665.html, 2019-07-05.
- [21] 中华人民共和国生态环境部. 大气细颗粒物一次源排放清单编制技术指南(试行)[EB/OL]. http://www.mee.gov.cn/gkml/hbb/bgg/201408/t20140828_288364.htm, 2014-08-20.
- [22] 贺克斌, 王书肖, 张强. 城市大气污染物排放清单编制技术手册[EB/OL]. <https://www.doc88.com/p-3337324265982.html>, 2015-04-01.
- [23] 中华人民共和国生态环境部. 全国排污许可证管理信息平台[EB/OL]. <http://permit.mee.gov.cn/permitExt/defaults/default-index!getInformation.action>, 2018-01-10.
- [24] GB/T 4754-2017, 国民经济行业分类[S].
- [25] 王瑞元. 2018年我国粮油加工业的基本情况[J]. *粮食与食品工业*, 2020, **27**(3): 1-5, 9.
- [26] 束放, 熊延坤. 我国农药生产现状和农药减量使用的重要意义[J]. *山东农药信息*, 2016, (2): 18-20.
- [27] Cheng H C, Chen Y W, Chen W H, *et al.* Assessing ink transfer performance of gravure-offset fine-line circuitry printing [J]. *Journal of Electronic Materials*, 2018, **47**(3): 1832-1846.
- [28] Sopena P, González-Torres S, Fernández-Pradas J M, *et al.* Spraying dynamics in continuous wave laser printing of conductive inks [J]. *Scientific Reports*, 2018, **8**, doi: 10.1038/s41598-018-26304-9.
- [29] 前瞻经济学人. 预见2019《2019年中国油墨产业全景图谱》(附产业现状、竞争格局、发展前景)[EB/OL]. <https://www.qianzhan.com/analyst/detail/220/190618-27096aef.html>, 2019-06-19.
- [30] GB 18352.5-2013, 轻型汽车污染物排放限值及测量方法(中国第五阶段)[S].
- [31] 中华人民共和国生态环境部. 生态环境部发布《中国移动源环境管理年报(2019)》[EB/OL]. http://www.mee.gov.cn/xxgk2018/xxgk/xxgk15/201909/t20190904_732374.html, 2019-09-04.
- [32] 黄碧捷, 陶元, 岳琳, 等. 湖北省优先控制人为源VOCs排放清单研究[J]. *环境科学与技术*, 2018, **41**(10): 213-218. Huang B J, Tao Y, Yue L, *et al.* Emission inventory of priority control anthropogenic VOCs in Hubei province [J]. *Environmental Science and Technology*, 2018, **41**(10): 213-218.
- [33] 中华人民共和国生态环境部, 国家统计局, 中华人民共和国农业农村部. 第二次全国污染源普查公报[EB/OL]. http://www.mee.gov.cn/home/ztbd/rdzl/wrypc/zlxz/202006/t20200616_784745.html, 2020-06-08.
- [34] Li M, Liu H, Geng G N, *et al.* Anthropogenic emission inventories in China: a review [J]. *National Science Review*, 2017, **4**(6): 834-866.
- [35] 聂江洪. 中国省级电力市场设计的研究——以湖北省为例[D]. 武汉: 武汉大学, 2009.
- [36] Zhu M Y, Liu L, Yin S S, *et al.* County-level emission inventory for rural residential combustion and emission reduction potential by technology optimization: a case study of Henan, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **228**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117436.

- [37] Jiang P Y, Chen X L, Li Q Y, *et al.* High-resolution emission inventory of gaseous and particulate pollutants in Shandong province, eastern China [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, **259**, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.120806.
- [38] Zhu D, Tao S, Wang R, *et al.* Temporal and spatial trends of residential energy consumption and air pollutant emissions in China [J]. *Applied Energy*, 2013, **106**: 17–24.
- [39] 湖北省统计局. 湖北省 2018 年国民经济和社会发展统计公报 [EB/OL]. http://tjj.hubei.gov.cn/tjsj/tjgb/ndtjgb/qstjgb/201910/t20191025_21391.shtml, 2019-07-08.
- [40] Simayi M, Hao Y F, Li J, *et al.* Establishment of county-level emission inventory for industrial NMVOCs in China and spatial-temporal characteristics for 2010–2016 [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **211**: 194–203.
- [41] Zhang X H, Shen J M, Wang Y Q, *et al.* An environmental sustainability assessment of China's cement industry based on emergy [J]. *Ecological Indicators*, 2017, **72**: 452–458.
- [42] Singh Z, Chadha P. Textile industry and occupational cancer [J]. *Journal of Occupational Medicine and Toxicology*, 2016, **11**, doi: 10.1186/s12995-016-0128-3.
- [43] Li J, Zhou Y, Simayi M, *et al.* Spatial-temporal variations and reduction potentials of volatile organic compound emissions from the coking industry in China [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, **214**: 224–235.
- [44] 王雨燕, 王秀艳, 杜森, 等. 淄博市重点工业行业 VOCs 排放特征 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(3): 1078–1084.
Wang Y Y, Wang X Y, Du M, *et al.* Emission characteristics of volatile organic compounds from typical industries in Zibo [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(3): 1078–1084.
- [45] Liu Y Y, Han F, Liu W, *et al.* Process-based volatile organic compound emission inventory establishment method for the petroleum refining industry [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, **263**, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.121609.
- [46] Han D M, Gao S, Fu Q Y, *et al.* Do volatile organic compounds (VOCs) emitted from petrochemical industries affect regional PM_{2.5}? [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **209**: 123–130.
- [47] Zhong Z M, Sha Q E, Zheng J Y, *et al.* Sector-based VOCs emission factors and source profiles for the surface coating industry in the Pearl River Delta region of China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **583**: 19–28.
- [48] Yang K X, Wang C, Xue S, *et al.* The identification, health risks and olfactory effects assessment of VOCs released from the wastewater storage tank in a pesticide plant [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, **184**, doi: 10.1016/j.ecoenv.2019.109665.
- [49] Wang H L, Jing S A, Lou S R, *et al.* Volatile organic compounds (VOCs) source profiles of on-road vehicle emissions in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **607–608**: 253–261.
- [50] Song C B, Liu Y, Sun L N, *et al.* Emissions of volatile organic compounds (VOCs) from gasoline- and liquified natural gas (LNG)-fueled vehicles in tunnel studies [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **234**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117626.
- [51] Cui L, Wang X L, Ho K F, *et al.* Decrease of VOC emissions from vehicular emissions in Hong Kong from 2003 to 2015: results from a tunnel study [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **177**: 64–74.
- [52] 孙露娜, 刘妍, 赵静波, 等. 天津隧道机动车 VOCs 污染特征与排放因子 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(1): 104–113.
Sun L N, Liu Y, Zhao J B, *et al.* Pollution characteristics and emission factors of VOCs from vehicle emissions in the Tianjin tunnel [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(1): 104–113.
- [53] Yue T T, Yue X, Chai F H, *et al.* Characteristics of volatile organic compounds (VOCs) from the evaporative emissions of modern passenger cars [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **151**: 62–69.
- [54] Hata H, Inoue K, Kokuryo K, *et al.* Detailed inventory of the evaporative emissions from parked gasoline vehicles and an evaluation of their atmospheric impact in Japan [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, **54**(10): 5947–5953.
- [55] Lai C H, Chuang K Y, Chang J W. Source apportionment of volatile organic compounds at an international airport [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2013, **13**(2): 689–698.
- [56] Scheutz C, Mosbæk H, Kjeldsen P. Attenuation of methane and volatile organic compounds in landfill soil covers [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2004, **33**(1): 61–71.
- [57] Yang W B, Chen W H, Yuan C S, *et al.* Comparative assessments of VOC emission rates and associated health risks from wastewater treatment processes [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2012, **14**(9): 2464–2474.
- [58] Chen W H, Yang W B, Yuan C S, *et al.* Influences of aeration and biological treatment on the fates of aromatic VOCs in wastewater treatment processes [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2013, **13**(1): 225–236.
- [59] Liu J, Wang J W, Cheng J, *et al.* Distribution and emission of speciated volatile organic compounds from a coal-fired power plant with ultra-low emission technologies [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, **264**, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.121686.
- [60] Shi J W, Deng H, Bai Z P, *et al.* Emission and profile characteristic of volatile organic compounds emitted from coke production, iron smelt, heating station and power plant in Liaoning province, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **515–516**: 101–108.
- [61] Inceoğlu D N, Özbay I, Karademir A. VOC and PAH characterization of petroleum coke at maximum thermal decomposition temperature [J]. *Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization, and Environmental Effects*, 2019, **41**(11): 1305–1314.
- [62] Cui P, Schito G, Cui Q B. VOC emissions from asphalt pavement and health risks to construction workers [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, **244**, doi: 10.1016/j.jclepro.2019.118757.
- [63] Li N, Jiang Q, Wang F S, *et al.* Emission behavior, environmental impact and priority-controlled pollutants assessment of volatile organic compounds (VOCs) during asphalt pavement construction based on laboratory experiment [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, **398**, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.122904.
- [64] Xiu M, Wang X Y, Morawska L, *et al.* Emissions of particulate matters, volatile organic compounds and polycyclic aromatic hydrocarbons from warm and hot asphalt mixes [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, **275**, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.123094.
- [65] Pan Y, Liu Q, Liu F F, *et al.* Regional assessment of ambient volatile organic compounds from biopharmaceutical R&D complex [J]. *Science of the Total Environment*, 2011, **409**(20): 4289–4296.
- [66] Boniol M, Koechlin A, Boyle P. Meta-analysis of occupational exposures in the rubber manufacturing industry and risk of cancer [J]. *International Journal of Epidemiology*, 2017, **46**(6):

- 1940-1947.
- [67] Kamarulzaman N H, Le-Minh N, Fisher R M, *et al.* Quantification of VOCs and the development of odour wheels for rubber processing[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **657**: 154-168.
- [68] Liang Z S, Wang J J, Zhang Y N, *et al.* Removal of volatile organic compounds (VOCs) emitted from a textile dyeing wastewater treatment plant and the attenuation of respiratory health risks using a pilot-scale biofilter[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, **253**, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.120019.
- [69] Qi Y Q, Shen L M, Zhang J L, *et al.* Species and release characteristics of VOCs in furniture coating process [J]. *Environmental Pollution*, 2019, **245**: 810-819.
- [70] 李霞, 苏伟健, 黎碧霞, 等. 佛山市典型铝型材行业表面涂装 VOCs 排放组成 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(12): 5334-5343.
Li X, Su W J, Li B X, *et al.* Source profiles and chemical reactivity of volatile organic compounds from surface coating of aluminum products in Foshan, China [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(12): 5334-5343.
- [71] Tong R P, Ma X F, Zhang Y W, *et al.* Source analysis and health risk-assessment of ambient volatile organic compounds in automobile manufacturing processes [J]. *Human and Ecological Risk Assessment: An International Journal*, 2020, **26**(2): 359-383.
- [72] 王迪, 聂磊, 赵文娟, 等. 基于工艺过程的金属包装业 VOCs 污染特征 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(3): 1099-1106.
Wang D, Nie L, Zhao W J, *et al.* Pollution characteristics of volatile organic compounds emission from the metal packaging industry based on analysis of process [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(3): 1099-1106.
- [73] Yang X W, Cheng S Y, Wang G, *et al.* Characterization of volatile organic compounds and the impacts on the regional ozone at an international airport [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **238**: 491-499.
- [74] Nair A T, Senthilnathan J, Nagendra S M S. Emerging perspectives on VOC emissions from landfill sites: impact on tropospheric chemistry and local air quality [J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2019, **121**: 143-154.
- [75] Wiedinmyer C, Yokelson R J, Gullett B K. Global emissions of trace gases, particulate matter, and hazardous air pollutants from open burning of domestic waste [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(16): 9523-9530.
- [76] Liang X M, Sun X B, Xu J T, *et al.* Improved emissions inventory and VOCs speciation for industrial OFP estimation in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **745**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140838.
- [77] GB 13223-2011, 火电厂大气污染物排放标准 [S].
- [78] 国务院. 农药管理条例 [EB/OL]. http://www.gov.cn/gongbao/content/2017/content_5186961.htm, 2017-02-08.
- [79] Simayi M, Shi Y Q, Xi Z Y, *et al.* Understanding the sources and spatiotemporal characteristics of VOCs in the Chengdu Plain, China, through measurement and emission inventory [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **714**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.136692.
- [80] Zhou M M, Jiang W, Gao W D, *et al.* A high spatiotemporal resolution anthropogenic VOC emission inventory for Qingdao City in 2016 and its ozone formation potential analysis [J]. *Process Safety and Environmental Protection*, 2020, **139**: 147-160.
- [81] Hu W Q, Jin T, Liu Y. Effects of environmental regulation on the upgrading of Chinese manufacturing industry [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, **26**(26): 27087-27099.
- [82] Li M, Zhang Q, Zheng B, *et al.* Persistent growth of anthropogenic non-methane volatile organic compound (NMVOC) emissions in China during 1990-2017: drivers, speciation and ozone formation potential [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(13): 8897-8913.
- [83] GB 31570-2015, 石油炼制工业污染物排放标准 [S].
- [84] Zheng C H, Shen J L, Zhang Y X, *et al.* Quantitative assessment of industrial VOC emissions in China: historical trend, spatial distribution, uncertainties, and projection [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **150**: 116-125.
- [85] GB 4915-2013, 水泥工业大气污染物排放标准 [S].
- [86] GB 26453-2011, 平板玻璃工业大气污染物排放标准 [S].
- [87] 环境保护部. 排污许可证申请与核发技术规范 玻璃工业—平板玻璃 [EB/OL]. http://www.mee.gov.cn/ywgz/fgbz/bz/bzwb/pwxk/201709/t20170918_421773.shtml, 2017-09-12.
- [88] 国务院办公厅. 国务院办公厅关于印发控制污染物排放许可制实施方案的通知 [EB/OL]. http://www.mee.gov.cn/ywgz/pwxkgl/ygzc/201811/t20181128_675285.shtml, 2016-11-10.
- [89] 湖北省环境保护厅, 湖北省发展和改革委员会, 湖北省财政厅, 等. 湖北省挥发性有机物污染防治三年行动方案 [EB/OL]. http://hbj.hg.gov.cn/art/2018/6/14/art_12312_287720.html, 2018-05-28.