

DOI: 10.5846/stxb201711242101

李静, 曾伟斌, 周翼飞, 陈心宇. 我国农业氨排放估算方法研究进展. 生态学报, 2018, 38(22): - .

Li J, Zeng W B, Zhou Y F, Chen X Y. A synthetic review of the methods used to estimate agricultural ammonia emissions in China. Acta Ecologica Sinica, 2018, 38(22): - .

我国农业氨排放估算方法研究进展

李 静^{1,3,*}, 曾伟斌², 周翼飞², 陈心宇²

1 中国科学院地理科学与资源研究所中国科学院生态系统网络观测与模拟重点实验室, 北京 100101

2 南昌大学资源环境与化工学院, 南昌 330031

3 新疆干旱区湖泊环境与资源重点实验室, 乌鲁木齐 830054

摘要: 农业大量施用氮肥以及持续扩大的禽畜养殖业是我国氨污染的最大来源。近年来大气环境问题备受关注, 氨排放研究的重要性日益凸显, 如何客观、科学定量的评估我国区域氨排放的问题尤为重要。通过检索已报道的国内外氨排放估算的研究进展, 对我国的氨排放研究进行梳理, 比对了氨排放主要估算方法的特点, 对其所使用数据类型、获取途径、参数的定量取值方法及不确定性产生等方面进行了分析。针对国内氨排放估算存在计算方法单一, 排放因子本地化不足等问题, 提出了进一步改善的意见和建议。研究结果以期为我国做好氨排放控制基础研究, 开展控制技术试验, 制定相关政策文件, 加强政府引导和扶持等提供科学依据。

关键词: 农业氨排放; 估算方法; 排放因子; 不确定性分析

A synthetic review of the methods used to estimate agricultural ammonia emissions in China

LI Jing^{1,3,*}, ZENG Weibin², ZHOU Yifei², CHEN Xinyu²

1 Laboratory of Ecosystem Network Observation and Modeling, Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China

2 School of Environmental and Chemical Engineering, Nanchang University, Nanchang 330031, China

3 Xinjiang Laboratory of Lake Environment and Resources in Arid Zone, Urumqi 830054, China

Abstract: The largest sources of ammonia pollution in China are the excessive application of chemical fertilizer in agriculture and the continuous expansion of the livestock and poultry industry. Over recent years, the atmospheric environment has attracted much attention and ammonia emission research has become increasingly important. This has meant that accurately and scientifically assessing regional ammonia emissions in China has become particularly pertinent. This study was based on related research progress at home and abroad, and compared the characteristics of the main methods used for estimating ammonia emissions in China. The types of data, pollution routes, parameters quantification, and uncertainty analysis were analyzed. Opinions and suggestions for further improvement are put forward on issues such as single calculation methods and insufficient localization of emission factors in the estimation of domestic ammonia emissions. The results provides a scientific basis that will allow China to conduct basic research on ammonia emission control, carry out control technology tests, formulate relevant policy, and strengthen government guidance and support.

基金项目: 国家重点研发计划课题(2016YFD0300808 和 2017YFD0801404); 新疆维吾尔自治区重点实验室基金(XJDX0909-2013-07); 中国科学院青年创新促进会会员(2017073)

收稿日期: 2017-11-24; 网络出版日期: 2018-00-00

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: jingli@igsnr.ac.cn

Key Words: agricultural ammonia emissions; estimation methods; emission factors; uncertainty analysis

农牧业源是农业活动直接排放氨(NH_3)的排放源的统称^[1],包括畜禽养殖、化肥施用、生物质燃烧、秸秆堆肥等方面。在实际研究农业氨排放过程中,往往也包括了人体粪便这一排放源^[2]。已有研究表明,我国大气氨排放主要来自化肥施用与畜禽养殖,两者排放量之和占人为源氨排放总量比值达 80%^[3]。农业生态系统的氨排放是全球氮素循环的重要组成部分,在使农作物营养物质大量流失的同时,也对环境产生了重要的影响^[4]。作为大气中唯一的常见气态碱, NH_3 易溶于水,能与大气中硫酸气溶胶能够形成 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 或 NH_4HSO_4 ^[5],这些二次颗粒物的产生对大气 $\text{PM}_{2.5}$ 污染和霾的形成有着重要影响。高层大气中氨参与了一系列自由基反应,氨的排放量也存在加剧温室效应的可能性^[6]。此外,氨在土壤酸化及水体富营养化上也有着直接或间接的影响^[5]。

从 20 世纪末开始,国内外学者对 NH_3 排放清单及其对大气污染影响的研究越来越多,也出现较多关于农业氨排放的研究工作^[4,7-8]。在欧洲及美国,畜禽养殖和氮肥施用的 NH_3 排放量占总排放量的 80%—90%,在大部分亚洲国家二者则占到总量的 77% 左右^[5]。同时,相关行政部门建立了包括 NH_3 在内的排放清单^[9]。具有代表性的氨排放研究中,Pain^[10]采用排放因子法估算了英国农业氨排放量,该地区全年农业氨排放量为 197 Gg,畜禽养殖与化肥施用氨排放分别占排放总量的 31% 和 16%。在实际过程中,面对较为复杂的生态系统氮循环,模型法在综合考虑氨的排放、迁移、转化过程时,具有一定优势。目前,国外使用广泛的模型估算法由早期的排放因子法发展而来。英国开发的国家氨减排措施评价体系(Nation Ammonia Reduction Strategy Evaluation System, NARSES),是一个用于估算农业氨排放规模、时空分布规律以及检测相关政策方案实行可能性的模型。1991 年农业氨排放被加入其中的区域空气污染信息和模拟模型(Regional Air Pollution Information and Simulation Model, RAINS Model),由国际应用系统分析学会(IIASA)开发^[9]。Klimont^[11]运用 RAINS 模型对 1990 年和 1995 年中国氨排放总量进行估算,结果显示,1990 与 1995 年中国氨排放总量为 970 万 t 和 1170 万 t,预计到 2030 年 NH_3 的排放量将增加到近 2000 万 t。氨排放主要贡献来自氮肥施用和牲畜,分别占 90 年代总排放量的 52% 和 41%。化肥施用氨排放的比例预计在 2030 年将增加到约 61%,而牲畜的份额则下降到 33%。Streets 等^[12]基于 RAINS 模型,参考了 Klimont 等^[13]的计算方法,估算 2000 年的中国 NH_3 排放量为 13.6 Tg,其中 50% 来自化肥施用,占农业氨排放的 88%。丹麦的氨排放清单模型(Danmark Ammonia Emission Inventory Model, DanAm),在建立各排放源排放因子时,考虑了季节因素对排放因子的影响,同时化肥氮施用的氨排放因子为综合试验结果与经验值得到。除此之外,由政府间气候专门委员会(Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC)提供的 IPCC 方法^[14](活动水平数据模型)是目前国际上应用最广泛的模型,其划分了详细的氨排放源,给出了各种氨排放源和氨排放估算的指导方法,同时提供了大量全球各地可以选用的默认参数及排放因子^[7]。目前,欧洲国家定期报告氨排放量估算,并承诺按照规定的路径实现国家排放限额^[1,15]。在美国,一些报告中有排放要求^[16-17],美国环境保护局最近提出将氨纳入空气质量标准^[18]。对于发展中国家来说,近五年来发表的关于氨排放的研究越来越多,尤其是在中国^[8, 19-20]。尽管如此,对于南美洲而言,关于氨排放量的唯一信息是全球数据库中报告的信息^[21]。最近关于拉丁美洲和加勒比地区短期气候污染物的研究报告(只有摘要可供利用),采用 GAINS 模型以及国家一级的信息估算了氨排放量^[22]。

氨减排问题随着我国环境问题的凸显,显得愈来愈重要,如何客观、科学定量的评估我国区域氨排放量的问题尤为重要。因此,本研究在查阅国内外相关研究的基础上,从国内氨排放的估算方法发展历程、估算必需的数据类型与来源、参数取值以及不确定性产生等方面,比较了具有代表性的氨排放研究方法与结果,并与国外研究进行对比,提出了使区域氨排放估算进一步量化、精准的改进建议,以期为我国做好氨排放控制基础研究,制定相关管理政策等提供科学依据。

1 我国氨排放估算研究进展

我国氨排放估算领域起步于 20 世纪 90 年代。表 1 对比了我国各个地区的氨排放研究结果。早期相关的氨排放研究,大多从氨排放角度建立排放清单,排放清单以氮肥施用、畜禽养殖等农业氨排放源为主^[3,7]。早期由于国内各类源排放因子数据的缺乏,研究者一方面参考欧洲地区相关研究,选用其中具有代表性的排放因子计算氨排放。例如,王文兴等^[3]计算得到 1991 年全国氨的排放总量为 8918 Gg,其中畜禽、氮肥施用、人粪便与氮肥生产的排氨量占比分别为 64%、18%、17%和 1%,全国平均氨排放强度为 9 kg/hm²。徐新华^[23]采用类似方法,使用国外排放因子进行计算了江浙沪地区人为氨排放量。由于这些研究使用的排放因子来自于国外,研究结果的准确性可能会有偏差。另一方面,通过实地试验得到观测结果对氨的排放进行研究。朱兆良等^[26]和蔡贵信等^[27]在江苏丹阳、河南封丘等地运用了¹⁵N 示踪技术和微气象学的方法对氨的挥发结果进行测定,研究发现石灰性稻田和酸性稻田土壤中氨挥发的情况差异明显,在酸性稻田区域,碳氨和尿素的氨挥发率分别为 19.5%和 8.8%;而在石灰性稻田土壤中,碳氨和尿素的氨挥发率分别达到 39%和 30%。孙庆瑞等^[24]在估算氮肥施用氨排放时,选取朱兆良等^[26]和蔡贵信等^[27]的氨排放观测数据作为我国氮肥施用氨排放因子,并将计算结果与欧洲地区氨排放量进行比较,结果显示,同期中国氨排放量大于全欧洲的排放量。以上为使用我国实地试验结果数据作为相关源氨排放因子的早期研究实例。Xing 和 Zhu^[28]基于运用微气象学方法得到的研究结果,计算了 1990 年我国的农田氨排放量,并根据统计数据计算了不同氮肥(尿素和碳酸氢铵)分别在不同耕作方式下的氨挥发率。由于不同地区的气候条件,地理环境等影响农业发展的因素差异较大,加上已报道的排放因子数据非常有限,所以依靠单一的排放因子得到的计算结果存在较大的不确定性。因此,在后来的研究中,越来越多的研究者在考虑区域差异性和排放因子本地化等方面进行了探索。

表 1 氨排放研究结果对比
Table 1 Comparison of research result about ammonia emission

地区 Regions	年份 Years	排放量 Emissions	氮肥施用 Nitrogen fertilizer/ Gg	畜禽养殖 Livestock/ Gg	人口 Humans/ Gg	总量 Total/Gg	排放强度 Emission intensity/ (kg/hm ²)	文献 References
全国	1991	排放量	1605.24	5707.52	1516.06	8918.00	9.00	[3]
		占氨排放总量比值/%	18.00	64.00	17.00			
江浙沪地区	1990	排放量	192.11	325.25	36.85	769.29	36.50	[23]
		占人为源氨排放总量 比值/%	25.00	42.28	5.00			
全国	1992	排放量	3808.40	5974.10	1523.20	11499.10	12.00	[24]
		占人为源氨排放总量 比值/%	33.00	52.00	13.00			
川渝地区	2000—2004	排放量	374.94	219.60	98.59	698.80	12.00	[7]
		占农业氨排放总量比值/%	54.00	31.00	14.00			
上海	2011	排放量	18.73	33.39	1.99	54.53	86.01	[5]
		占农业氨排放总量比值/%	34.00	61.00	4.00			
全国	2006	排放量	5300.00	3200.00	200.00	9800.00	10.20	[2]
		占氨排放总量比值/%	54.00	32.60	2.00			
华北平原	2004	排放量	1620.00	1451.00	—	3071	198 ⁽¹⁾	[25]
		占氨排放总量比值/%	54.00	47.00	—			
福建	2015	排放量	89.84	98.37	11.17	228.02	18.8	[20]
		占氨排放总量比值/%	39.40	43.10	4.90			

(1) 该值为地区最高排放强度。

Zheng 等^[29]首次将模型法运用于我国的氨排放估算中。在对亚洲地区氮循环研究中,Zheng 等通过建立

区域氮循环模型 IAP-N-1.0 模型,分析了 1961—2030 年亚洲各国家、地区的氮收支情况。在计算国内氨排放时,施肥农田部分采用已报道的国内旱地与水田施肥农田的氨排放因子,畜禽养殖排放因子选用 IPCC 推荐值,人体粪便部分则根据文献值计算。李富春等^[7]在 IAP-N 模型基础上,综合考虑农田氮的输入量与氨的排放量。从粪便管理、施肥农田、秸秆燃烧等方面计算了川渝地区氨的排放量,并将计算结果分成 3 个时间段,分析该地区时间与空间的氨排放分布规律。张美双等^[30]采用 NARSES 模型,对 2001 年我国种植业氮肥施用氨排放量进行估算,得到我国氨排放强度时空分布。房效凤等^[5]在排放因子法的基础上,引入模型法对排放因子进行修正,在计算畜禽养殖氨排放时,通过 RAINS 模型计算出畜禽的 NH_3 实际排放因子,结合 NARSES 模型对氮肥施用氨排放因子进行修正,计算出 2011 年上海市农业源氨排放清单。类似地, Huang 等^[2]在结合本地实验结果和修正排放因子的基础上,编制得到 2006 年我国氨排放清单。排放因子通过考虑环境温度、土壤酸度等参数得到,这能够使排放因子更加符合区域的地理环境。Kang 等^[31]则在 Huang 等^[2]的基础上,参考其估算方法,计算了 1980—2012 年我国的氨排放清单。此外, Wang 等^[4]在 2012 年至 2013 年期间建立了全国范围内稻田氨排放的监测网络,并使用标准化的测量方法连续 2 年测量氨排放。该网络包括东北、东南和长江流域等中国主要水稻种植区域。结果表明,排放的氨占施用氮素的比例达 17.7%,2013 年中国稻田的氨总排放量估计为 1.7 Tg N/年。总体来讲,我国农业氨排放估算方法可以分为三个发展阶段(图 1),2011 年至今,国内氨排放研究领域取得一定的进步,排放因子的本地化与模型法估算得到了推广,研究结果的不确定性由早期(80s 末—90s 末)仅有单一的定性评估发展为定量评估,现有的利用多因素校正排放因子的方法和模型估算法具有较高的准确性。与国外的氨排放估算研究对比,国内在估算过程中仍是更多地依赖原有的单一排放因子法以及由国外开发的模型估算法,而对于适用于我国实地农业发展状况的模型以及根据不同地区影响因素修正的排放因子还需要进一步完善。

发展阶段	早期 (80年代末—90年代末)	中期 (2000年—2010年)	后期 (2011年至今)
我国农业氨排放估算方法的研究进展	早期特点 - 使用单一的排放因子法估算氨排放量; - 出现国内实地试验研究结果; - 本地参数少,主要参考国外; - 结果评估以同行对比和定性描述为主。	中期特点 - 估算方法有排放因子法和模型法(IAP-N和NARSES模型); - 实地观测结果较少,各地区排放因子没有得到较好的丰富; - 排放因子主要参考国外取值; - 结果评估包括同行对比、定性描述以及少量定量分析。	后期特点 - 估算方法有排放因子法和模型法(IAP-N、NARSES、RAINS模型); - 出现较新的通过实地观测得到的计算结果; - 较多研究使用的排放因子由国内数据与国外结合; - 定量评估结果的方法应用更加广泛。
	国内氨排放估算领域一直存在本地排放因子少,相关参数数据缺乏的问题		
	活动水平数据主要根据政府提供的统计资料,但不同地区统计类目不统一,增加计算难度		

图 1 我国农业氨排放估算方法的不同发展阶段特点

Fig.1 Characteristics of different development stages of agricultural ammonia emission estimation methods in China

2 主要的估算方法与特征分析

排放因子法即根据排放源的活动水平与排放因子相乘,估算出该排放源的氨排放量。单一的排放源活动水平数据可获得性较高与可使用的本地排放因子数据较少,是排放因子法使用普遍的主要原因。早期研究所使用的排放因子法,多采用单一的排放源活动水平,如根据统计年鉴中牛、羊等畜禽的年末存栏量乘以对应的排放因子,排放因子则直接使用国外数据或多个国外氨排放因子的平均值^[3, 24],由此计算得到我国或部分地区的氨排放水平。这种计算方法产生结果的不确定性,主要来源于国外排放因子与我国各地区实际排放因子

之间的差异。房效凤等^[5]与张美双等^[30]在各自研究氨排放过程,引入模型法对排放因子进行修正,使排放因子更加完善,一定程度上提高了计算结果的准确性。Zheng 等^[32]与李富春等^[7]的研究中,根据 IPA-N 模型,从氮素循环的整体角度,计算了由氮肥总消耗、生物固氮、大气氮沉降回田等多个部分组成的农田生态系统氨排放,进一步提高了氮素输入量的准确性,但由于其各自研究中使用的排放因子都比较单一,主要排放源的排放因子缺乏进一步校正,依然存在一定不确定性。Wu 等^[20]运用 NARSES 模型计算福建省农田生态系统氨排放,通过考虑土壤 pH、耕地方式以及温度等影响因素进行排放因子的修正,而畜禽养殖、人体氨排放估算用到的活动水平数据则来源于政府提供的统计年鉴数据。与其他模型相比,NARSES 模型能够结合不同地域的特点对排放因子进行多因素修正,并且由此得到的氨排放时空分布精度较高。表 2 汇总了我国多个地区农业氨排放量估算的研究实例,对比分析了其方法特征。同时,参考通过不同途径获取的排放因子数据的不确定性评估方法,其不确定度数值参考了 TRACE-P 清单的经验数值的上限^[12, 33],我们确定了各研究中排放因子的不确定度(表 2)。

表 2 国内氨排放计算方法比较

Table 2 Comparison of domestic calculation method about ammonia emission

实例 Examples	方法 Methods	区域 Regions	估算范围 Estimation scope	方法特征 Estimated characteristics	排放因子 不确定度 Emission factors uncertainty	文献 References
我国氨的排放量和时空分布	排放因子法	全国	人为源	活动水平数据为省级,可获得性较高;校正国外排放因子与国内观测值,	±50%	[24]
江浙沪地区人为 NH ₃ 排放量的估算	排放因子法	江浙沪地区	人为源	采用欧洲排放因子平均值;活动水平数据为省级,可获得性较高;	±150%	[23]
—2006 年中国人为源大气氨排放时空分布	排放因子法	全国	人为源	参考国外排放因子,活动水平数据为省级,可获得性较高;	±80%	[34]
上海市农业源氨排放清单及分布特征	RAINS、 NARSES 模型	上海市	农业源	结合 RAINS 与 NARSES 模型,对排放因子进行修正;活动水平数据为县级,分辨率较高	±80%	[5]
Description and Application of a Model for Simulating Regional Nitrogen Cycling and Calculating Nitrogen Flux	IAP-N 模型	全国	人为源	排放因子选用 IPCC 默认与国内观测值,参数易获取;活动水平数据为全国性,容易获取	±50%	[32]
川渝地区农业生态系统 NH ₃ 排放	IAP-N 模型	川渝地区	农业源	排放因子选用 IPCC 与国内观测值,参数易获取;活动水平数据为县级,不容易获取,但分辨率较高	±50%	[7]
NARSES 模型在我国种植业氮肥施用氨排放估算中的应用研究	NARSES 模型	全国	氮肥施用	从多个因素修正排放因子,校正参数不易获取;活动水平为县级,获取难度不高,但较为复杂	±80%	[30]
A high-resolution ammonia emission inventory in China	排放因子法	全国	人为源	多因素修正排放因子,参数获取有一定难度;活动水平数据来源于国家统计	±80%	[2]
Agricultural ammonia emissions inventory and spatial distribution in the North China Plain	RAINS 模型	华北平原	农业源	排放因子分阶段计算得到,影响因素的数据较难获取;活动水平数据主要来源于省级统计年鉴	±80%	[25]
High-resolution ammonia emissions inventories in Fujian, China, 2009—2015	NARSES 模型、 排放因子法	福建省	人为源	活动水平数据包括市级和县级;排放因子数据通过多因素修正,校正参数较难获取	±80%	[20]

单一的排放因子法仍是目前我国应用较为普遍的计算方法。在前人的研究基础上,许多研究者考虑到不同区域存在的差异性,对排放因子进行参数化,使其与该地区的实际环境更加符合。考虑到氨的排放是氮素循环的一个环节,建立了适用于我国农业状况的模型进行综合计算。同时,在氨排放的实地观测方面也进行了探索,为我国不同地区的氨排放研究提供了数据支持。但由于我国国土面积广大,各地区农业发展水平差异明显,仍存在(1)来自于实地测得的数据仍不够充足;(2)已有的研究结果缺乏进一步验证与评估;(3)广泛的模型估算法,在应用于不同地区时往往没有做出进一步调整;(4)排放源的活动水平数据受限于统计资料的缺乏和不统一等问题,这导致重点排放源的识别不够且在同程度上降低了计算结果的准确性。

3 数据收集及参数取值

3.1 活动水平数据

目前国内氨排放研究中的活动水平数据包括:主要农作物的播种面积和产量,主要畜禽(牛、猪、羊、鸡等)的饲养量,行政区划面积,耕地面积,乡村人口数,氮肥消费量,化石燃料消耗量等。大多来源于全国、省级统计年鉴,各部门统计资料及相关数据中心等,如中国统计年鉴、中国农村/农业统计年鉴、省级统计年鉴、省级农牧业统计资料、统计资料汇编、中国科学院资源环境科学数据中心、中国农业科学研究院数据中心等。数据收集过程中存在行政区划变异,指标不统一,部分数据缺失等问题。相关国际组织的数据库也可作为补充,Zheng 等^[29]在运用模型法估算我国氨排放量时,使用的农作物数据来源于联合国粮农组织(FAO)数据库。

3.2 参数取值方法

排放因子的选取对模型法及单一排放因子法估算氨排放量的准确性有着重要影响。氮肥施用的平均氨排放因子与各类氮肥的排放因子及多种氮肥施用比例有着较大关联。蔡贵信等^[27]探索了我国碳氮及尿素等氮肥在水稻田中的主要损失途径,发现酸性粘质水稻土上这两种氮肥的氨挥发率为 20% 和 9%。受限于各类氮肥施用比例数据的缺失,部分研究者直接从文献中获取氮肥施用的平均氨排放因子并加入计算之中。孙庆瑞等^[24]根据调查资料计算得到我国氮肥使用比例;王文兴等^[3]从文献中获取到我国氮肥的使用比例。后续的氨排放研究较多借鉴这两份文献中的氮肥施用比例,但两者数据年代较早,是否与我国现阶段使用情况相符还需要进一步证实。董艳强等^[35]则将多种氮肥的生产比例作为长三角地区氮肥的使用份额。周静等^[36]根据调研资料及统计数据得到苏州地区多种氮肥的使用情况。Zhang 等^[37]在估算我国氮肥施用产生的氨排放时,基于 2005 年我国县级调查数据得到各类氮肥的使用比例,精确程度较高。Huang 等^[2]选用已有的测量结果作为基准的排放因子,在此基础上进行修正,这提高了计算结果的准确性。杨志鹏^[6]基于物质流方法,参考 RAINS 模型,基于清单建立必需的基础数据,计算了畜禽养殖的氨排放因子。房效凤等^[5]也根据 RAINS 模型计算了畜禽养殖的排放因子。从排放因子的不确定度来看,通过合理的实地测试所得到的结果具有较高的准确性,同时为相关研究提供重要的参照和数据支持,而使用相关模型法,通过参数的校正确定排放因子也是一种较好的提高排放因子准确性的方法。Wu 等^[20]利用 NARSES 模型,计算了福建省的农田氮肥施用氨排放因子。这一模型考虑了土壤 pH、耕地使用方式、施肥率、降雨以及温度等因素。与直接使用文献中的排放因子数据计算相比,采用结合本地特点的参数得到的结果更加合理。但目前各个地区的可获得的参数不够完善,如施肥率和施肥方式等校正因子在一些地区出现数据缺失的情况,而使用省级或者全国性的平均数据则缺乏代表性。已有文献报道相关氮肥的使用比例及排放因子见表 3。

(1) 取酸性土壤数据;N/A 表示数据缺失

畜禽养殖氨排放是农业氨排放的重要组成部分,本研究选取牛、山羊、绵羊、猪、家禽、兔及马等几项指标,对其进行排放因子数据收集(表 4)。在计算畜禽养殖氨排放时,不同省份的活动水平存在差异。而同一排放源排放量也表现出明显的差别。国内在估算畜禽养殖氨排放时,选用的排放因子较多为文献中全国范围性的数据,但不同省份的畜禽养殖种类以及养殖条件均会随当地环境而改变。另外,李富春等^[7]对放牧与非放牧部分牛、山羊以及绵羊氨排放因子的分配系数做了探索。

表 3 国内各地区氮肥排放因子及施用比例汇总
Table 3 Nitrogen fertilizer emission factors and application rate

区域 Regions	排放因子 Emission factors	碳酸铵 Ammonium bicarbonate	尿素 Urea	硝酸铵 Ammonium nitrate	硫酸铵 Ammonium sulfate	氨水 Ammonium hydroxide	其他 Others	平均排放因子 Average of emission factors	文献 References
全国	使用份额/%	56	35	4	0.5	0.5	4	24 ⁽¹⁾	[24]
	排放因子/%	39	12—30	10	15	NA	2		
全国	使用份额/%	55	38.6	3.7	0.7	0.3	1.7	8.191	[3]
	排放因子/%	4	15	2	8	1	4		
长三角	使用份额/%	24	64	4	4	N/A	4	16.8	[35]
	排放因子/%	21.3	17.4	2	8	N/A	4		
四川	使用份额/%	49.53	40.54	0.13	0.23	0.4	9.17	18.01	[38]
	排放因子/%	21.3	17.4	2	8	4	4		
苏州	使用份额/%	10	85	N/A	N/A	N/A	5	16.554	[36]
	排放因子/%	6.93	14.66	N/A	N/A	N/A	0.68		
全国	使用份额/%	22.93	59.7	0.49	0.06	N/A	16.81	12.32	[37]
	排放因子/%	15	14.25	2.15	6.45	N/A	2.15		
广东	使用份额/%	27	71	0.7	0.1	N/A	1.2	23.86	[9]
	排放因子/%	24.29	24.29	2.61	7.83	N/A	2.61		

(1) 取酸性土壤数据

表 4 畜禽养殖氨排放因子/(kg 只⁻¹ a⁻¹)
Table 4 Ammonia emission factors of livestock breeding

排放源		文献 References										
Emission source		[5]	[39]	[36]	[3]	[24]	[40]	[38]	[41]	[6]	[42]	[34]
牛 Cattle	肉牛 Beef cattle		16.7									9.7
	奶牛 Cow	36.74	29.4	20.62	23.04	24.1	30.97	20.62	37.6	N/A	N/A	16.4—26.1
羊 Sheep category	山羊 Goat							4.93	4.06	7.41		
	绵羊 Sheep	4.932	N/A	4.93	1.7	3.1	1.7	5.09	4.2	0.82	1.2	
猪 Pig		4.84	5.4	2.82	5.36	3.8	5.36	2.82	2.82	N/A	3.26	4.8
家禽 Poultry		0.225	N/A	N/A	0.25	0.24	0.25	N/A	N/A	N/A	1.48	0.22
兔 Rabbit		0.283	N/A	0.2	N/A	N/A	0.2	0.2	0.24	0.2	N/A	0.62
马、驴、骡 Horse, donkey and mule		N/A	N/A	N/A	12.20	16.9	N/A	18.6	22.58	18.60	7.16	10.60

N/A 表示该研究未提供排放因子或以其他排放因子形式计算相关排放源

呼吸、汗液以及粪尿是人体排放氨的 3 个主要途径^[35]。人口数量与排放和处理条件对氨排放量的大小有着重要影响^[3]。Möller 等^[43]基于早期的估算研究,选取 1.3 kg/a 作为人的氨排放因子。国内已报道的文献中,李富春等^[7]及王文兴等^[3]研究也参考该值进行计算。冯小琼等^[38]参考 Huang 等^[2]对我国氨排放研究,选取 0.787 kg·人⁻¹·a⁻¹作为人体排放因子。我国环境保护部于 2014 年颁布了《大气氨源排放清单编制技术指南(试行)》(以下简称《指南》)^[44],《指南》中推荐了部分参数值,其中人体粪便排放系数推荐值也为 0.787 kg NH₃人⁻¹ a⁻¹。沈兴玲^[9]在广东省人为氨排放研究中参考了董文煊等^[34]使用的农村与城镇人口氨排放因子。相关文献中的人体氨排放因子数据见表 5。

表 5 人体氨排放因子/(kg 人⁻¹ a⁻¹)
Table 5 Ammonia emission factors of human body

文献 References	[34]					[45]			[35]	[3]	[2]
	农村 Village	城镇 Cities and towns	[11]	[5]	[23]	呼吸 Breathe	汗液 Sweat	粪尿 Excretion			
排放因子 Emission factors	0.5	0.25	0.5	0.787	0.3	3.64	17	0.76	0.05	1.3	0.787

生物质燃烧产生的大量气态及颗粒态组分对全球气候环境及生态系统有着重要影响^[46]。我国目前生物质燃烧主要有开放式燃烧与室内燃烧。薪柴的燃烧与秸秆的露天焚烧及其作为燃料燃烧是生物质燃烧中的一部分,同时还包括森林火灾、草原燃烧等。《指南》中推荐了相关的参数,其中,秸秆作燃料燃烧与露天焚烧取同一排放系数。除了燃烧时的排放系数外,秸秆实际产量往往需要根据作物的产量换算得到。毕于运^[47]在对秸秆资源评价及利用的研究中对农作物的草谷比进行了较为详细的探究,并建立了较为完整的草谷比体系。此外,其他研究也参考中国农村能源行业协会提供的草谷比数据进行计算。张国等^[48]调查了 2011 年我国主要农作物秸秆利用方式,焚烧与作燃料比例分别为 27%,17%。陆炳等^[46]研究我国大陆地区生物质燃烧时参考了张鹤丰^[49]对作物秸秆燃烧效率的测试结果。

4 不确定性分析

关键数据缺失(如活动水平数据)、排放因子不具代表性及计算过程中的随机误差都是增加氨排放估算结果不确定性的因素^[50]。在对氨排放结果不确定性分析时,定性评估、半定量评估以及定量评估是常用的 3 种方法。其中,定性评估通过描述性的语言来评价排放结果的不确定性,这种方法具有较强主观性;半定量评估是通过判断打分的方式来识别排放源清单的置信度(表 6)^[33];定量评估则是通过相关的计算与分析方法量化不确定性的范围^[9]。

表 6 评估方法比较^[33]
Table 6 Comparison of assessment methods

类型 Types	方法 Methods	优点 Advantages	缺点 Disadvantages
定性评估 Qualitative assessment	主观感性评价排放清单的不确定性	不要求大量的基础数据	主观性强,不能对不确定性给出一个定量的评判
半定量评估 Semi-quantitative assessment	提供一个数值帮助确定清单各部分的置信度,通过数学操作得出明确的清单结果	可快速评估代表因子对清单的作用;可有效描述清单的不确定性	无法描述清单不确定性的值域范围,无法给出清单不确定性的关键源
定量评估 Quantitative assessment	获得输入数据的概率分布特征将输入数据的不确定性推送到清单的不确定性	清晰描述清单的可变性估算和不确定性估算;识别清单不确定性的关键源	需要大量的输入数据的概率分布表征数据

目前国内的氨排放研究以定性分析为主,研究者往往通过对氨排放结果的比较,根据所使用的活动水平数据及选取的排放因子,描述性地分析研究中存在的不确定性,无法定量的给出不确定性的范围。不确定性分析的定量评估主要有两部分关键性工作,一是确定输入数据的概率密度分布函数,二是将输入信息的不确定度传递演算至清单的不确定度^[33]。输入数据包括基本排放单元活动水平数据和排放因子数据。我国氨排放研究中的活动水平数据较多从统计资料中获取,一般只有一个有效数值,无法满足获取概率密度分布函数所需要的一定样本数量,而排放因子样本数据也同样比较有限。在这种情况下,魏巍等^[33]参考其他文献的计算方法,假定活动水平及排放因子均呈正态分布或对数正态分布形式,取文献中获取的数值为平均值,相对标准差由数据来源的可靠性、数据数值的准确性决定,再利用蒙特卡洛数值模拟法将输入信息的不确定度传递到清单计算结果,得到排放清单的不确定性,并根据 Spearman 相关系数法进行敏感性分析。敏感性分析被用于识别某个模型输入的变化对模型输出变化的影响,而不确定性分析则是研究输入信息的不确定性如何传播到输出结果。Spearman 与 Pearson 相关系数法相关系数法是常用的两种敏感性分析方法^[50]。此外,刘禹淇等^[19]采用 IPCC 的分析误差传递法^[51]来进行计算,根据清单输入信息不确定值推算出清单结果的不确定值。沈兴玲^[9]在对广东省人为源氨排放进行研究时,利用其所在课题组开发的软件工具 AuvToolPro 对农业源氨排放结果的不确定性范围进行具体量化,通过建立不确定型分析模型、采用自展模拟数值分析以及蒙特卡洛数值模拟等步骤,得到不确定性结果。钟流举等^[50]探究了大气污染物排放源清单不确定性的定量分析方法并通过案例进一步分析。不确定性分析是评估计算结果的重要环节,由于现阶段国内氨排放领域的可获得数

据还不够充足,计算方法的合理性也处于不断地验证中,因此,对计算过程及结果做不确定性分析更是必要。另一方面,我国氨排放估算结果的不确定度分析也正在逐步量化。与早期主观性强的定性评估相比,定量评估能使不确定性量化,并且结合统计学方法进行更加深入的计算与结果的讨论分析,使研究结果得到更充分的验证,一定程度上提高了研究方法的合理性与可信度。

5 结论与建议

(1)氮肥施用和畜禽养殖是我国主要的两个氨排放来源,两者氨排放的估算过程中往往受到本地排放因子和校正系数缺乏的限制,这降低了估算结果的准确性,因此,加强各地区氨排放因子的试验研究,为氨排放量的估算提供数据支持和结果的参照,是提高国内氨排放估算结果准确性的重要基础;

(2)模型估算法是近年来国内外使用较多的计算方法,现阶段国内采用的计算模型大多由国外建立,尽管这些方法已经相对成熟,但在应用于我国不同地区时,依然受到不同地区农业发展状况差异明显的影响。如何建立更加符合我国各个地区实际条件的计算模型是氨排放估算研究领域的重要突破方向;

(3)估算结果的不确定性分析是研究过程的重要环节,定量的评估能够使结果的讨论分析更加深入合理,目前国内氨排放估算的不确定性分析应从建立输入数据的概率密度分布函数、不确定度量化及敏感性分析等三方面进行进一步完善,以提高数据来源的可靠性、估算结果的准确性,对建立更加合理并且较高操作性的评估方法具有显著的积极意义。

参考文献 (References):

- [1] EEA. European Union Emission Inventory Report 1990—2015 Under the UNECE Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution (LRTAP). Denmark Report No 9/2017. Copenhagen: EEA, 2017.
- [2] Huang X, Song Y, Li M M, Li J F, Huo Q, Cai X H, Zhu T, Hu M, Zhang H S. A high-resolution ammonia emission inventory in China. *Global Biogeochemical Cycles*, 2012, 26(1): 1030.
- [3] 王文兴, 卢筱凤, 庞燕波, 汤大纲, 张婉华. 中国氨的排放强度地理分布. *环境科学学报*, 1997, 17(1): 3-8.
- [4] Wang H Y, Zhang D, Zhang Y T, Zhai L M, Yin B, Zhou F, Geng Y C, Pan J T, Luo J F, Gu B J, Liu H B. Ammonia emissions from paddy fields are underestimated in China. *Environmental Pollution*, 2018, 235: 482-488.
- [5] 房效凤, 沈根祥, 徐昶, 钱晓雍, 李金文, 赵子刚, 于绍凤, 朱凯承. 上海市农业源氨排放清单及分布特征. *浙江农业学报*, 2015, 27(12): 2177-2185.
- [6] 杨志鹏. 基于物质流方法的中国畜牧业氨排放估算及区域比较研究[D]. 北京: 北京大学, 2008: 105-105.
- [7] 李富春. 川渝地区农业生态系统 NH_3 排放[D]. 昆明: 昆明理工大学, 2009.
- [8] Zhao Z Q, Bai Z H, Winiwarter W, Kieseewetter G, Heyes C, Ma L. Mitigating ammonia emission from agriculture reduces $\text{PM}_{2.5}$ pollution in the hai river basin in China. *Science of the Total Environment*, 2017, 609: 1152-1160.
- [9] 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: 99-99.
- [10] Paina B F, Van der Weerdena T J, Chambers B J, Phillips V R, Jarvis S C. A new inventory for ammonia emissions from U.K. Agriculture. *Atmospheric Environment*, 1998, 32(3): 309-313.
- [11] Klimont Z. Current and future emissions of ammonia in China//Proceedings of the 10th Annual Emission Inventory Conference: One Atmosphere, One Inventory, Many Challenges. Denver, CO: IIASA, 2001.
- [12] Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, Fernandes S D, Fu Q, He D, Klimont Z, Nelson S M, Tsai N Y, Wang M Q, Woo J H, Yarber K F. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2003, 108(D21): 8809.
- [13] Klimont Z, Streets D G, Gupta S, Cofala J, Fu L X, Ichikawa Y. Anthropogenic emissions of non-methane volatile organic compounds in China. *Atmospheric Environment*, 2002, 36(8): 1309-1322.
- [14] IPCC. Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Working Group I Contribution to the Fourth Assessment Report of the IPCC. Geneva, Switzerland: The Intergovernmental Panel on Climate Change Published, 2007: 544-546.
- [15] Directive (EU) 2016/2284 of the European parliament and of the council of 14 december 2016 on the reduction of national emissions of certain atmospheric pollutants, amending directive 2003/35/EC and repealing directive 2001/81/EC. *Official Journal of the European Union*. 2016.
- [16] USEPA. Emergency Planning and Community Right-to-Know Act (EPCRA). Washington, DC: EPA. 2016.
- [17] USEPA. Comprehensive Environmental Response, Compensation, and Liability Act (CERCLA) and Federal Facilities. Washington, DC: EPA, 2016.
- [18] AAQTF. Ammonia Emissions: What to Know Before You Regulate. Official White Paper of the USDA Agricultural Air Quality Task Force. Seattle,

WA: AAQTF, 2014.

- [19] 刘禹淇, 陈报章, 郭立峰, 刘莹. 南昌市固定燃烧点源大气污染物排放清单及特征. 环境科学学报, 2017, 37(5): 1855-1863.
- [20] Wu S P, Zhang Y J, Schwab J J, Li Y F, Liu Y L, Yuan C S. High-resolution ammonia emissions inventories in Fujian, China, 2009-2015. Atmospheric Environment, 2017, 162: 100-114.
- [21] Claire G, Damas S, Cathy L, Middleton P, Aude M, Paulin M, Vincent P. The ECCAD Database: Emissions of Atmospheric Compounds & Compilation of Ancillary Data. IGAC Newsletter, 2012, 18-20.
- [22] UNEP. Integrated Assessment of Short-lived Climate Pollutants in Latin America and the Caribbean: Improving Air Quality while Contributing to Climate Change Mitigation. Summary for Decision Makers. Nairobi, Kenya: UNEP. 2016.
- [23] 徐新华. 江浙沪地区人为 NH_3 排放量的估算. 农村生态环境, 1997, 13(3): 51-53.
- [24] 孙庆瑞, 王美蓉. 我国氨的排放量和时空分布. 大气科学, 1997, 21(5): 79-87.
- [25] Zhang Y, Dore A J, Ma L, Liu X J, Ma W Q, Cape J N, Zhang F S. Agricultural ammonia emissions inventory and spatial distribution in the North China Plain. Environmental Pollution, 2010, 158(2): 490-501.
- [26] 朱兆良, Simpson J R, 张绍林, 蔡贵信, 陈德立, Freney J R, Jackson A V. 石灰性稻田土壤上化肥氮损失的研究. 土壤学报, 1989, 26(4): 337-342.
- [27] 蔡贵信, 朱兆良, 朱宗武, Trevitt A C F, Freney J R, Simpson J R. 水稻田中碳铵和尿素的氮素损失的研究. 土壤, 1985, 17(5): 225-229, 256-256.
- [28] Xing G X, Zhu Z L. An assessment of N loss from agricultural fields to the environment in China. Nutrient Cycling in Agroecosystems, 2000, 57(1): 67-73.
- [29] Zheng X, Fu C, Xu X, Yan X, Huang Y, Han S, Hu F, Chen G. The Asian nitrogen cycle case study. Ambio, 2002, 31(2): 79-87.
- [30] 张美双, 荣胜基. NARSSES 模型在我国种植业氮肥施用氨排放估算中的应用研究. 安徽农业科学, 2009, 37(8): 3583-3586.
- [31] Kang Y N, Liu M X, Song Y, Huang X, Yao H, Cai X H, Zhang H S, Kang L, Liu X J, Yan X Y, He H, Zhang Q, Shao M, Zhu T. High-resolution ammonia emissions inventories in China from 1980 to 2012. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, 16(4): 2043-2058.
- [32] Zheng X H, Liu C Y, Han S H. Description and application of a model for simulating regional nitrogen cycling and calculating nitrogen flux. Advances in Atmospheric Sciences, 2008, 25(2): 181-201.
- [33] 魏巍, 王书肖, 郝吉明. 中国人为源 VOC 排放清单不确定性研究. 环境科学, 2011, 32(2): 305-312.
- [34] 董文煊, 邢佳, 王书肖. 1994—2006 年中国人为源大气氨排放时空分布. 环境科学, 2010, 31(7): 1457-1463.
- [35] 董艳强, 陈长虹, 黄成, 王红丽, 李莉, 戴璞, 贾记红. 长江三角洲地区人为源氨排放清单及分布特征. 环境科学学报, 2009, 29(8): 1611-1617.
- [36] 周静, 刘松华, 谭译, 钱飞跃, 梁媛, 武瑾. 苏州市人为源氨排放清单及其分布特征. 环境科学研究, 2016, 29(8): 1137-1144.
- [37] Zhang Y S, Luan S J, Chen L L, Shao M. Estimating the volatilization of ammonia from synthetic nitrogenous fertilizers used in China. Journal of Environmental Management, 2011, 92(3): 480-493.
- [38] 冯小琼, 王幸锐, 何敏, 韩丽. 四川省 2012 年人为源氨排放清单及分布特征. 环境科学学报, 2015, 35(2): 394-401.
- [39] 潘涛, 薛念涛, 孙长虹, 刘桂中, 张俊娥, 李珊珊. 北京市畜禽养殖业氨排放的分布特征. 环境科学与技术, 2015, 38(3): 159-162.
- [40] 王平. 南通市人为源大气氨排放清单及特征. 环境科学与管理, 2012, 37(11): 85-88.
- [41] 刘春蕾, 姚利鹏. 江苏省农业源氨排放分布特征. 安徽农业科学, 2016, 44(22): 70-74.
- [42] van Aardenne J, Pulles T. Uncertainty in Emission Inventories: What Do We Mean and How Could We Assess It? TNO Institute of Environmental Sciences, Energy and Process Innovation, 11th International Emission Inventory Conference—"Emission Inventories-Partnering for the Future". Atlanta, GA, 2002.
- [43] Möller D, Schieferdecker H. Ammonia emission and deposition of NH_x in the G.D.R. Atmospheric Environment, 1989, 23(6): 1187-1193.
- [44] 环境保护部. 大气氨源排放清单编制技术指南(试行). 北京: 环境保护部, 2014.
- [45] 尹沙沙. 珠江三角洲人为源氨排放清单及其对颗粒物形成贡献的研究[D]. 广州: 华南理工大学, 2011: 114-114.
- [46] 陆炳, 孔少飞, 韩斌, 王秀艳, 白志鹏. 2007 年中国大陆地区生物质燃烧排放污染物清单. 中国环境科学, 2011, 31(2): 186-194.
- [47] 毕于运. 秸秆资源评价与利用研究[D]. 北京: 中国农业科学院, 2010.
- [48] 张国, 逯非, 赵红, 杨广斌, 王效科, 欧阳志云. 我国农作物秸秆资源化利用现状及农户对秸秆还田的认知态度. 农业环境科学学报, 2017, 36(5): 981-988.
- [49] 张鹤丰. 中国农作物秸秆燃烧排放气态、颗粒态污染物排放特征的实验室模拟[D]. 上海: 复旦大学, 2009: 93-93.
- [50] 钟流举, 郑君瑜, 雷国强, 陈晶. 大气污染物排放源清单不确定性定量分析方法及案例研究. 环境科学研究, 2007, 20(4): 15-20.
- [51] IPCC. Quantifying Uncertainties in Practice//Good Practice Guidance and Uncertainty Management in National Greenhouse Gas Inventories. Bracknell, UK: IES, IPCC, OECD, 1997.