

DOI: 10.5846/stxb202104231069

黄云凤, 翟元晓, 高兵, 崔胜辉. 黄河流域农业生产活性氮排放及减排对策. 生态学报, 2022, 42(11): 4676-4687.

Huang Y F, Zhai Y X, Gao B, Cui S H. Reactive nitrogen emission sources from agricultural production in the Yellow River Basin and mitigation measures. Acta Ecologica Sinica, 2022, 42(11): 4676-4687.

## 黄河流域农业生产活性氮排放及减排对策

黄云凤<sup>1,\*</sup>, 翟元晓<sup>2,3,4</sup>, 高兵<sup>2,4</sup>, 崔胜辉<sup>2,4</sup>

1 集美大学港口与环境工程学院, 厦门 361021

2 中国科学院城市环境研究所, 城市环境与健康重点实验室, 厦门 361021

3 福建农林大学生命科学学院, 福州 350002

4 厦门市城市代谢重点实验室, 厦门 361021

**摘要:** 人口增长和城市化进程促使粮食和肉禽奶类食品需求不断增加, 由此带来的农业生产活性氮(Nr)大量排放对生态环境及人类健康的影响日益加剧。黄河流域作为中国的粮食主产区, 农业生产活动强度高, 为研究其Nr排放规律, 采用排放因子法估算2000、2005及2010年黄河流域内9省(区)农业生产不同形态Nr的排放源。结果表明: ①黄河流域9省(区)中, 农业生产Nr排放量最大的为河南省, 最小的为四川省, 河南省Nr排放量是四川的8倍。②4种形态Nr排放量从大到小依次为Nr-wp(排放到水体的Nr)、NH<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O和NO<sub>x</sub>。化学氮肥施用和畜禽散养是NH<sub>3</sub>排放的最主要贡献源, 其次是规模化养殖和放牧饲养, 两者贡献率达85%以上。农田作物系统径流、淋洗以及畜禽养殖流失淋洗对Nr-wp排放的贡献率各占1/3左右。四季非蔬菜旱地和畜禽养殖是N<sub>2</sub>O排放的主要来源, 其贡献率之和大于66%。③黄河流域内9省(区)单位农业GDP、单位耕地面积、单位农村人口Nr排放强度最大的均为青海省, 单位农业GDP和单位农村人口氮排放强度空间分布基本呈上游>中游>下游的格局, 单位耕地面积氮排放强度呈上游>下游>中游的格局。9省(区)单位农业GDP氮排放强度均呈减缓趋势, 单位耕地面积和单位农村人口氮排放强度呈稳定或增长趋势, 内蒙古各类排放强度变动指数均最大。通过分析黄河流域农业生产Nr排放源及排放强度, 因地制宜、分类施策地提出Nr减排对策, 为改善黄河流域生态环境、开展Nr排放控制基础研究和控制技术实验、制定相关政策文件、实现黄河流域农业生产高质量发展提供科学依据。

**关键词:** 黄河流域; 农业生产; 活性氮排放量; 排放强度; 减排对策

## Reactive nitrogen emission sources from agricultural production in the Yellow River Basin and mitigation measures

HUANG Yunfeng<sup>1,\*</sup>, ZHAI Yuanxiao<sup>2,3,4</sup>, GAO Bing<sup>2,4</sup>, CUI Shenghui<sup>2,4</sup>

1 College of Harbour and Environmental Engineering, Jimei University, Xiamen 361021, China

2 Key Laboratory of Urban Environment and Health, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China

3 College of Life Science, Fujian Agriculture and Forestry University, Fuzhou 350002, China

4 Xiamen Key Laboratory of Urban Metabolism, Xiamen 361021, China

**Abstract:** Population growth and urbanization have increased the demand for grain, meat, poultry, and dairy products, and the large amount of Reactive Nitrogen (Nr) emissions from agricultural production had a growing impact on the ecological environment and human health. The Yellow River Basin, as the main grain producing area in China, has a high intensity of agricultural production activities. We used the emission factor method to analyze four forms of Nr emissions of nine provinces (regions) in the Yellow River Basin in 2000, 2005, and 2010. The results showed that: (1) among the nine provinces

**基金项目:** 国家重点研发计划项目(2019YFE0194000); 国家自然科学基金面上项目(42071263); 国家自然科学基金国际(地区)合作与交流项目2019-2022(71961137002)

**收稿日期:** 2021-04-23; **网络出版日期:** 2022-02-10

\* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: yfhuang@jmu.edu.cn

(regions) in the Yellow River Basin, Henan had the largest reactive nitrogen emissions, while Sichuan had the smallest ones. The amount of Nr emissions of Henan Province was eight times that of Sichuan Province. (2) The order of emissions of the four forms of Nr from high to low was Nr-wp,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ , and  $\text{NO}_x$ . Chemical nitrogen fertilizer application and free-range animal farming were the largest contributors to  $\text{NH}_3$  emissions, followed by large-scale farming and grazing, which together contributed more than 85% of the emissions. The contribution rate of farmland runoff and leaching and leaching from livestock and poultry farm to Nr-wp emissions was about 1/3 each. Non-vegetable rainfed farming and livestock and poultry farming were the main sources of  $\text{N}_2\text{O}$  emissions, and the total contribution rate was more than 66%. (3) Within the Yellow River Basin, the province (region) with the highest Nr emission intensities of per unit agricultural GDP, per unit cultivated land area, and per unit rural population was Qinghai. The spatial distribution of the emission intensities of per unit agricultural GDP and per unit rural population basically showed a pattern of high in the upstream, followed by the midstream and then the downstream. Emission intensity of per unit cultivated land area was high in the upstream, followed by the downstream and then the midstream. The emission intensity of per unit agricultural GDP in all nine provinces (regions) showed a declining trend, while the emission intensity of per unit cultivated land area and per unit rural population showed a stabilizing or increasing trend, and the emission intensity change indices of various emissions were the highest in Inner Mongolia. By analyzing the Nr emission sources of agricultural production and intensity in the Yellow River Basin, Nr emission reduction measures were put forward according to the local conditions, which could provide some scientific references for conducting basic research on Nr emission control, carrying out control technology tests, formulating relevant policy, improving the ecological environment and realizing the high-quality development of the Yellow River Basin.

**Key Words:** the Yellow River Basin; agricultural production; reactive nitrogen emissions; emission intensity; mitigation measures

活性氮(Reactive Nitrogen, Nr)是指环境中的生物可利用性氮,农业生产中排放到环境的活性氮主要有氧化亚氮( $\text{N}_2\text{O}$ )、氨( $\text{NH}_3$ )、排放到水体的活性氮(Nr-wp)以及氮氧化物( $\text{NO}_x$ )等形态<sup>[1-2]</sup>。Nr的过量排放不仅会引起气候变暖、大气污染、生物多样性减少、粮食安全等环境问题,还会间接危害人类身体健康<sup>[3]</sup>。中国作为农业大国,化学氮肥消耗量占世界总消耗量的1/3,是世界上最大的氮肥生产国和消费国,由此引发的Nr排放问题受到国际社会的广泛关注<sup>[4-7]</sup>。

国内外学者对Nr的研究已取得丰硕成果,主要体现在Nr排放源分析<sup>[8-9]</sup>、排放量估算及变化趋势的预测<sup>[10-11]</sup>、循环过程<sup>[6,10]</sup>等方面。如Cui等研究发现中国的Nr产生量从1910年的9.2 Tg(1Tg=10<sup>12</sup> g)增长到了2010年的56 Tg<sup>[5]</sup>;Gu等对中国1980年和2010年的农作物子系统等14个系统的氮排放及循环进行了核算并预测了2050年中国的Nr排放量<sup>[4]</sup>。以往的研究多基于国家或省级尺度,如高伟等构建1952—2016年长江经济带的人为源氮输入时空模型,评估了该区域氮输入的时空变动特征<sup>[11]</sup>;张千湖等揭示福建省各地市活性氮的排放量及排放强度特征<sup>[12]</sup>;Zhang等从地面和空间两个维度对中国1995—2004年的氮氧化物排放趋势进行研究<sup>[13]</sup>。这些研究侧重对多个系统单一形态Nr排放,缺乏对自然流域农业系统的各形态Nr排放量及排放强度的时空变化研究。目前,关于黄河流域的研究大多聚焦于水质的监测及污水的来源<sup>[13-15]</sup>,如夏星辉等<sup>[16]</sup>发现1980—1999年间黄河干、支流河水氨氮、总氮含量存在明显加速上升趋势,废污水排放和氮肥施用量增加是氮污染的主要原因。而在黄河流域尺度上的各类活性氮排放源及减排对策的研究尚未见报道。

## 1 研究区概况

黄河发源于青藏高原巴颜喀拉山北麓,流经青海、四川、甘肃、宁夏、内蒙古、山西、陕西、河南、山东9省区。黄河流域全长5464 km,是中国第二长河,也被称为中国的“母亲河”。流域内土地、水能、煤炭、石油、天然气、矿产等自然资源丰富,发展潜力大。黄河流域现有耕地1193.33万hm<sup>2</sup>,是中国粮食主产区之一。流域

大部分位于我国中西部地区,经济社会发展相对滞后。流域内的河南、山东、内蒙古为全国粮食生产核心区;能源、原材料行业仍是黄河流域各省(区)国民经济发展的主力行业,占据重要地位;近年来,黄河流域第三产业发展较为迅速<sup>[17]</sup>。2019年黄河流域人口总量为3.24亿人,占全国人口总量的23.31%<sup>[18]</sup>。该流域种植历史悠久,粮食产量占全国1/3;且地理位置独特,有着重要的生态廊道作用。

本文采用排放因子法估算了2000、2005及2010年黄河流域农业生产Nr排放量,分析不同形态Nr的排放源,揭示单位农业GDP、单位耕地面积、单位农村人口氮排放强度变化特征及驱动因素。该方法广泛应用于碳排放等领域,是较为成熟的温室气体排放核算工具,能自下而上的计算多种来源、多种形态的Nr,方法简便,但存在一定的不确定性。通过核算及分析,本研究旨在为黄河流域农业生产中的Nr减排,提供因地制宜、分类施策的科学基础,促进生态保护与高质量发展战略的实施。黄河流域所处位置如图1所示。

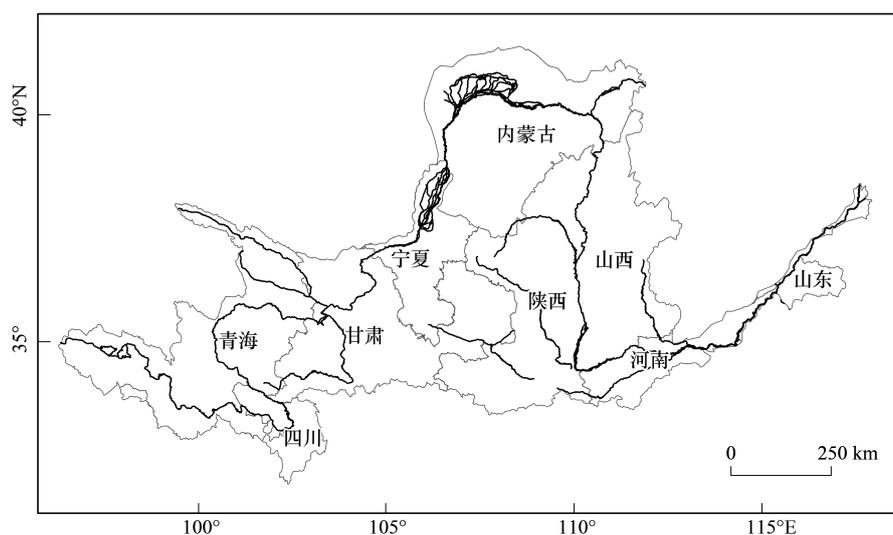


图1 黄河流域区位示意图

Fig.1 Location diagram of the Yellow River Basin

## 2 数据来源和研究方法

### 2.1 数据来源

本文研究的时间尺度为2000、2005、2010年;研究区域为黄河流域,包含上游的青海、四川、甘肃、宁夏、内蒙古5个省(区),中游陕西、山西2个省(区)以及下游河南、山东2个省(区);研究对象为农业生产中的Nr排放,涉及4种形态,即 $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{NO}_x$ 和Nr-wp。农业生产过程中 $\text{NH}_3$ 的人为排放源主要来源于农田生态系统、畜牧业、生物质燃烧及人体排泄物。农业活动产生的 $\text{N}_2\text{O}$ 可分为直接排放和间接排放两大部分。 $\text{NO}_x$ 主要指农业生产过程中柴油、汽油燃烧等产生。Nr-wp是指各种形态的Nr排放到地表水体的部分,其中作物系统包括流失、淋洗和土壤氮累积三部分,畜禽养殖系统主要考虑粪便流失和淋洗。

数据主要来源于各年份的各类统计年鉴、政府文件资料及研究论文等。各形态Nr排放量计算所需的水平数据及参数详见表1,农村人口、第一产业GDP等社会经济数据来源于各省(区)统计年鉴,其中,2005和2010年的第一产业GDP以2000年为基准年进行换算;黄河流域的水质数据来源于《中国生态环境状况公报》和《黄河水资源公报》。

### 2.2 研究方法

#### 2.2.1 Nr排放清单核算方法

参考《中国氮素流动分析方法指南》<sup>[24]</sup>、《大气氮源排放清单编制技术指南》<sup>[19]</sup>、《2005中国温室气体清

单研究》<sup>[21]</sup>等著作以及相关文献,采用排放因子法自上而下地对 2000、2005 及 2010 年黄河流域 9 个省(区)的农业生产 Nr 排放量进行计算。 $N_2O$ 、 $NH_3$ 的计算公式如式(1), $NO_x$ 计算公式如式(2):

表 1 各类形态 Nr 所需活动水平数据及参数

Table 1 Activity level data and parameters required for estimating various forms of Nr

Nr 类型 The type of Nr	子系统 The subsystem	活动水平数据类型 The type of activity level data	来源 Source	参数 Parameter	来源 Source
$NH_3$	农田作物系统	各类固氮作物的种植面积、氮肥施用量、复合肥施用量、耕地面积	《中国农业年鉴》	共生植物固氮速率、复合肥氮含量、土壤本底排放系数、农作物参数(含氮量、秸秆含氮量、经济系数)	[19]
	畜禽养殖系统	各类畜禽年底出栏量、存栏量	《中国畜牧业年鉴》	饲养周期、粪尿挥发比例、粪尿排泄量、氮含量	[20]
	生物质燃烧	各类作物的干物质重量	《中国农业年鉴》	农作物干重比、根冠比	[19]
$N_2O$	农田作物系统	各省(区)各类农用地面积、施用的化肥、粪肥、秸秆量	《中国农业年鉴》	各类农用地直接排放系数、径流系数、淋洗系数、氮气氮沉降系数	[21]
	畜禽养殖系统	各类畜禽年底出栏量、存栏量	《中国畜牧业年鉴》	各类畜禽圈舍和存储阶段的粪尿 $N_2O$ 排放比例	[22]
Nr-wp	农田作物系统	化学氮肥施用量	《中国农业年鉴》	淋溶、径流系数	[22]
	畜禽养殖系统	各类畜禽年底出栏量、存栏量	《中国畜牧业年鉴》	粪便流失和淋洗系数、氨挥发系数、 $N_2O$ 排放比例、反硝化比例、粪尿还田比例	[22]
$NO_x$	各省(区)农业部门中	各类能源消耗量	各省(区)统计年鉴	各类能源消耗系数	[23]

$$E_{i,j,y} = A_{i,j,y} \times EF_{i,j} \times \gamma \quad (1)$$

$$Q = (1 - P) \sum (F_{ik} \times K_{ik} \times) \quad (2)$$

式中,  $E_{i,j,y}$  为  $y$  年  $i$  省(区) $j$  排放源的 Nr 排放量(Gg);  $A$  表示该排放源所需的活动水平;  $EF_{i,j}$  为  $i$  省(区) $j$  排放源的排放因子。 $NH_3$  排放核算参考《大气氨源排放清单编制技术指南》,  $\gamma$  表示氮与大气氨之间的转换系数, 针对畜禽养殖业, 取 1.214, 农田系统取 1.0。 $N_2O$  排放核算,  $\gamma$  则表示  $N_2O$  转换系数, 其中农田系统取 1.571(即 44/28); 畜禽粪便管理取 1.0。式(2)中,  $Q$  表示  $NO_x$  排放量(Gg);  $F_{ik}$  为农业部门  $i$  中能源  $k$  的消耗量;  $K_{ik}$  为以  $NO_2$  计算的排放因子;  $P$  为参考相关排放标准及文献的平均污染控制水平下的  $NO_x$  脱氮率, 2000、2005 及 2010 年分别取 10%、15% 及 30%。

本研究核算的农田系统的 Nr-wp 计算如公式(3), 畜禽养殖系统的 Nr-wp 如公式(4):

$$T_{Nr-wp} = C_{Nr-wp} + L_{Nr-wp} \quad (3)$$

$$L_{Nr-wp} = L_{manure} - L_1 - L_2 - L_3 - L_4 \quad (4)$$

式中,  $T_{Nr-wp}$  表示整个农业生产过程产生的 Nr-wp(Gg),  $C_{Nr-wp}$  为农田作物系统的 Nr-wp 排放量;  $L_{Nr-wp}$  表示畜禽养殖系统的 Nr-wp 排放量。通过农田的氮投入和相应的径流、侵蚀、淋洗系数进行核算, 在核算时需要扣除以  $NH_3$ 、 $N_2O$  形式排放的气体 Nr<sup>[22, 24]</sup>。式(4)中,  $L_{manure}$  表示畜禽粪便产生的 Nr-wp, 为畜禽的粪便排泄量, 由各类畜禽的数量与排放因子相乘得到;  $L_1$  表示畜禽粪便的  $NH_3$  挥发;  $L_2$  表示  $N_2O$  排放;  $L_3$  表示反硝化;  $L_4$  表示畜禽粪便还田。具体排放因子详见 Ma 等<sup>[22]</sup>。

### 2.2.2 活性氮排放强度计算方法

采用面积加权法核算得到流域内各省(区)的数据, 流域内的青海、四川、甘肃、宁夏、内蒙古、陕西、山西、河南、山东面积占各省(区)行政面积的比重分别是 0.21、0.04、0.31、0.78、0.13、0.65、0.62、0.23、0.13。用贡献率来表示不同来源贡献的相对大小, 贡献率即为各省(区)不同形态 Nr 的每种来源排放量占该形态排放量的比值。采用排放强度变动指数来衡量不同年份排放强度的变动情况, 排放强度变动指数即为排放末期(2010 年)强度与起始期(2000 年)排放强度的差值与起始期排放强度的比值<sup>[25]</sup>。由于各个省(区)在经济发展、农业生产、人口数量方面存在较大差异, 此处应用单位农业 GDP、单位耕地面积、单位农村人口氮排放强度来比

较流域内各省(区)的 Nr 排放负荷情况。单位农业 GDP 氮排放强度即 Nr 排放量与第一产业 GDP 的比值,单位耕地面积、单位农村人口氮排放强度计算方式以此类推。

### 2.2.3 不确定性计算方法

误差传递方法合并清单不确定性主要应用加减运算和乘除运算两个误差传递公式,本文主要应用加减运算,总和的不确定性即标准偏差为各个相加量的标准偏差的平方之和的平方根,其中标准偏差均以绝对值表示<sup>[26]</sup>。

$$U_c = \frac{\sqrt{(U_{s1} \times \mu_{s1})^2 + (U_{s2} \times \mu_{s2})^2 + \dots + (U_{sn} \times \mu_{sn})^2}}{|\mu_{s1} + \mu_{s2} + \dots + \mu_{sn}|} \quad (5)$$

式中, $U_c, U_{s1}, \dots, \mu_{sn}$  为不同估计值的不确定性, $\mu_{s1}, \dots, \mu_{sn}$  为  $n$  个相加减的估计值。

## 3 结果与分析

### 3.1 黄河流域及各省 Nr 排放量

2000、2005 及 2010 年黄河流域农业生产 Nr 排放总量分别为 2153.64、2449.59、2222.14 Gg(1 Gg = 10<sup>9</sup> g); Nr-wp 排放量最大,其次是 NH<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O、NO<sub>x</sub>;流域内 9 省(区)中,河南省 Nr 排放量最大,四川排放量最小,2005 年两省排放量分别达 632.98、77.13 Gg,河南排放量达四川排放量 8 倍之高(表 2)。整体而言,中下游河南、陕西、山西、山东 4 省 Nr 排放量明显高于上游的 5 省(区),这主要与中下游 4 省种植业发达且人口数量多有关。

表 2 黄河流域各省(区)不同形态 Nr 排放量/Gg

Table 2 Emission inventories of different forms of Nr in the nine provinces of the Yellow River Basin

年份 Year	2000				2005				2010			
	N <sub>2</sub> O	NH <sub>3</sub>	Nr-wp	NO <sub>x</sub>	N <sub>2</sub> O	NH <sub>3</sub>	Nr-wp	NO <sub>x</sub>	N <sub>2</sub> O	NH <sub>3</sub>	Nr-wp	NO <sub>x</sub>
河南	12.36	147.81	378.37	0.44	14.33	181.72	436.33	0.60	14.23	173.31	365.52	0.48
陕西	8.78	115.77	297.32	0.27	9.82	131.25	334.07	0.41	10.15	132.19	291.21	0.60
山西	6.77	91.47	233.50	2.04	6.93	97.12	218.78	1.28	6.21	84.33	165.53	1.81
山东	6.48	80.85	185.63	0.61	6.98	89.29	195.55	0.91	5.76	71.20	148.68	0.80
甘肃	2.91	48.97	131.73	0.23	3.64	62.09	162.09	0.25	3.56	62.82	162.53	0.30
宁夏	2.14	35.99	89.88	0.00	2.54	45.34	112.65	0.12	2.74	48.54	113.14	0.14
内蒙古	2.04	26.43	85.45	0.23	3.10	41.32	117.51	0.37	3.49	48.43	130.26	0.57
青海	1.05	18.98	70.05	0.03	1.09	22.73	72.22	0.02	1.08	21.60	73.68	0.04
四川	1.42	17.51	50.08	0.03	1.53	19.78	55.76	0.07	1.42	20.46	55.28	0.08
全流域 The whole basin	43.95	583.80	1522.01	3.89	49.96	690.64	1704.95	4.04	48.63	662.87	1505.82	4.82

### 3.2 各形态 Nr 排放来源分析

#### 3.2.1 NH<sub>3</sub>排放源

将 NH<sub>3</sub>的排放源整合为秸秆燃烧和堆肥、放牧饲养、散养、规模化养殖、固氮植物、化学氮肥施用、土壤本底排放 8 类,其中固氮植物包括花生、大豆、绿肥 3 类。黄河流域内各省(区)Nr 各排放源排放情况如图 2 所示。

相较于 2000 年,2010 年仅山西、山东两省 NH<sub>3</sub>排放量有所下降,主要表现为散养的排放量减少,这主要是因为两省受 2007 年前后的禽流感等动物瘟疫的冲击影响较大。以羊为例,山西、山东 2010 年分别较 2000 年减少了 132.68 万、116.87 万头;其他省(区)排放量均呈现不同程度增加趋势。整体而言,化学氮肥施用和散养是 NH<sub>3</sub>排放的最大来源,其次是规模化养殖和放牧饲养,4 种来源所占比重之和在 91% 以上。河南、陕西、山西、山东、宁夏 5 省种植业化学氮肥施用对 NH<sub>3</sub>排放量的贡献率介于 40%—64% 之间;内蒙古、青海、四川畜牧业对 NH<sub>3</sub>排放量的贡献率超过 57%。其中,青海省畜禽业对 NH<sub>3</sub>排放的贡献率在 92% 以上。

#### 3.2.2 Nr-wp 排放源

中下游河南、陕西、山西、山东 4 省 2010 年的 Nr-wp 排放量低于 2000 年,上游甘肃、宁夏、内蒙古、青海、

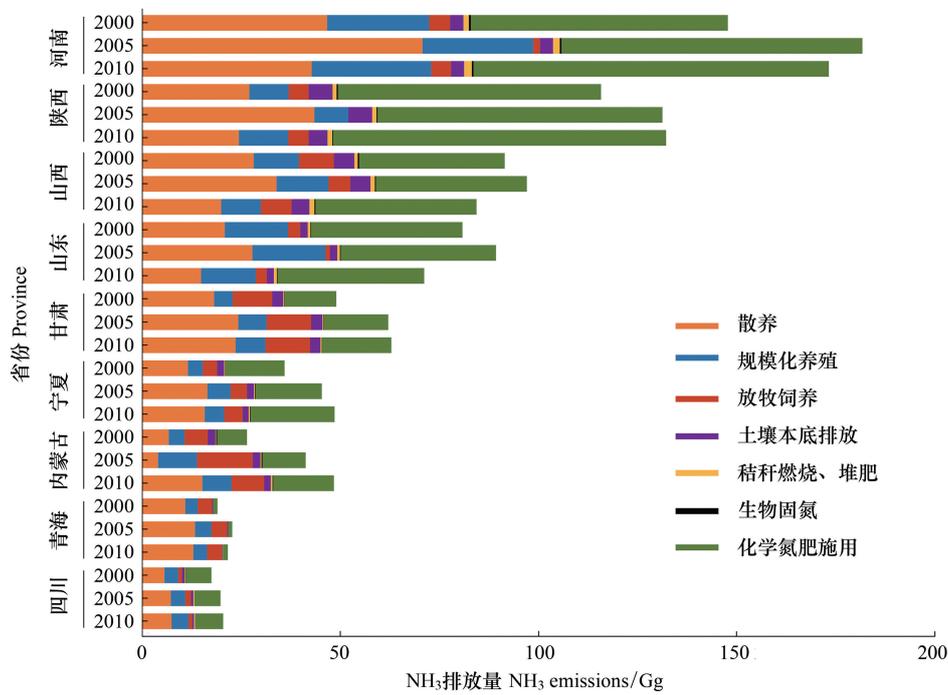


图 2 2000、2005 及 2010 年黄河流域各省(区)NH<sub>3</sub>排放量及排放源贡献

Fig.2 Emission and contribution of NH<sub>3</sub> emission sources in each province of the Yellow River Basin, 2000, 2005, and 2010

四川 2010 年 Nr-wp 排放量则不同程度地高于 2000 年(图 3)。3 种 Nr-wp 排放源贡献率相差不大,但不同年份不同省(区)又存在微小差异。内蒙古、青海、四川 3 省(区)畜禽养殖系统粪便流失和淋洗贡献率达 40%以上;陕西、宁夏农田作物系统淋洗贡献率大于 35%;陕西、山西、河南、山东 4 个中下游省(区)农田作物系统径流贡献率超过 35%。

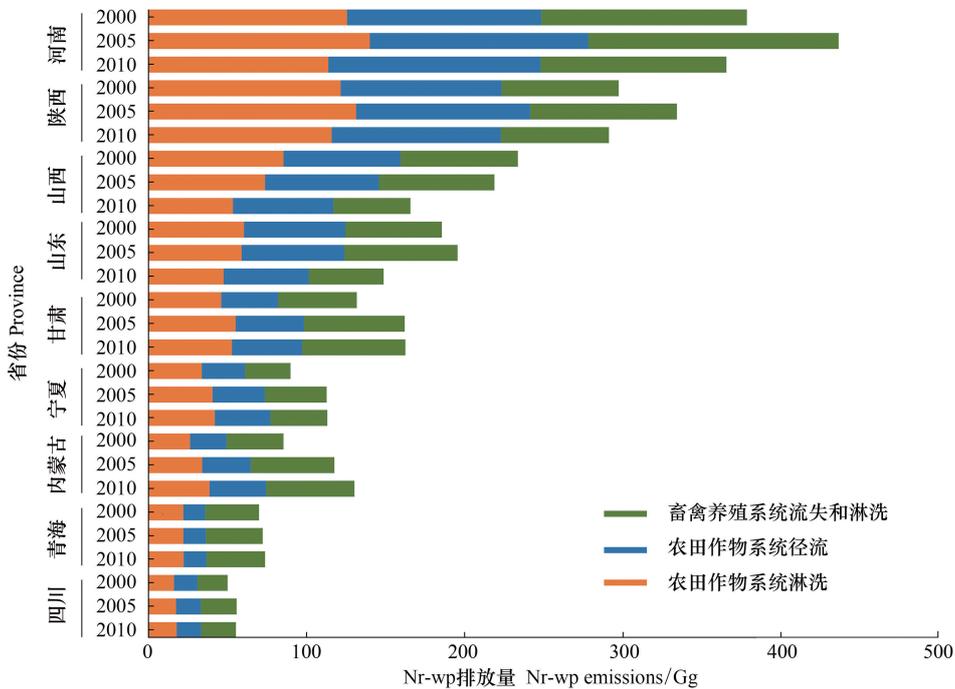


图 3 2000、2005 及 2010 年黄河流域各省(区)Nr-wp 排放量及排放源贡献

Fig.3 Emission and contribution of Nr-wp emission sources in each province of the Yellow River Basin, 2000, 2005, and 2010

### 3.2.3 N<sub>2</sub>O 排放源

将 N<sub>2</sub>O 排放源整合划分为畜禽养殖系统、四季非蔬菜旱地、水旱轮作旱地、水稻田、蔬菜地、茶园果园和非农用地 7 部分,各部分排放情况如图 4 所示。

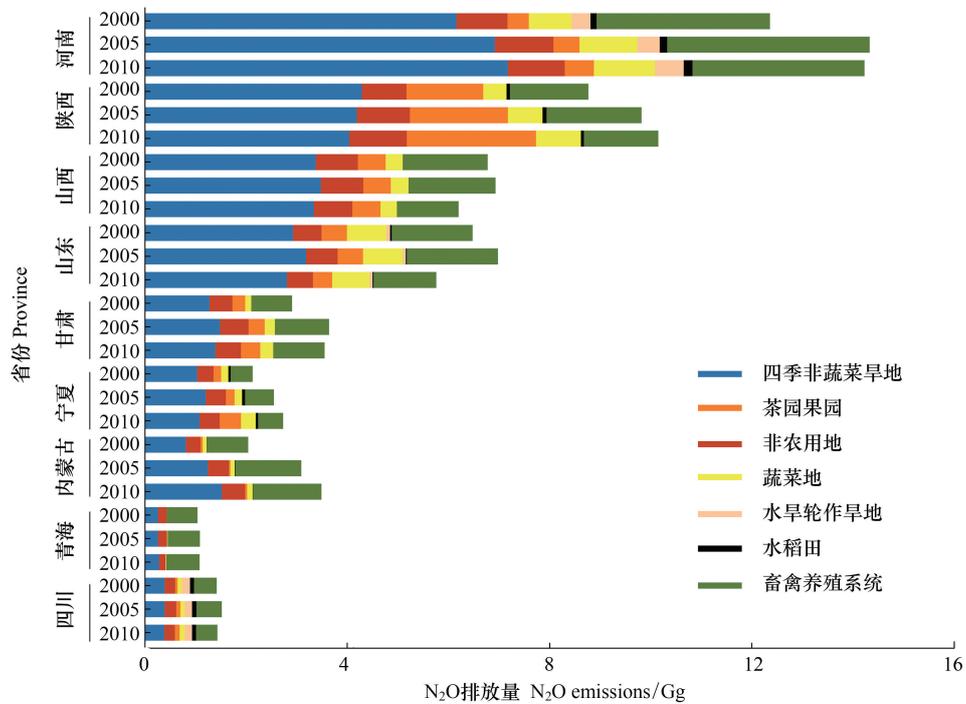


图 4 2000、2005 及 2010 年黄河流域各省(区) N<sub>2</sub>O 排放量及排放源贡献

Fig.4 Emission and contribution of N<sub>2</sub>O emission sources in each province of the Yellow River Basin, 2000, 2005, and 2010

2000—2010 年,受畜禽养殖数量的影响,仅山西、山东两省 N<sub>2</sub>O 排放量有所下降,其他省(区) N<sub>2</sub>O 排放量呈增加趋势。山西、山东、河南、陕西、甘肃、宁夏 6 省 N<sub>2</sub>O 排放源以四季非蔬菜旱地为主,贡献率介于 39%—54%之间,其中陕西省茶园果园氮沉降贡献率明显高于其他省(区);青海、内蒙古两大牧区省(区)的 N<sub>2</sub>O 排放以畜禽养殖系统排放为主,贡献率介于 38%—61%之间;四川省四季非蔬菜旱地和畜禽养殖系统 N<sub>2</sub>O 排放贡献率相差不大,均介于 25%—33%之间,但其水旱轮作旱地和水稻田氮沉降的贡献率明显高于其他省(区)。

### 3.3 N<sub>r</sub> 排放强度分析

黄河流域内各省(区)2000、2005 及 2010 年单位农业 GDP、单位耕地面积、单位农村人口 N<sub>r</sub> 排放强度及变动指数结果如表 3 所示。

黄河流域单位农业 GDP 氮排放强度大幅下降,2010 年排放强度约为 2000 年排放强度的 1/3;单位耕地面积氮排放强度和单位农村人口氮排放强度则小幅上升。就各省(区)排放强度变动情况而言,9 省单位农业 GDP 氮排放强度变动指数均小于 0,主要是因为农业生产技术、肥料的施用及机械化生产在有限的耕地中创造了更多的 GDP 收入,促使单位农业 GDP 的增速大于 N<sub>r</sub> 增速。受城市化影响,各省(区)单位耕地面积和单位农村人口均有所减少,其排放强度变动指数均介于-0.2—1 之间。

山西、陕西和山东 3 省的单位农业 GDP 氮排放强度减缓幅度排在前三位,其中山西和山东是由于 N<sub>r</sub> 排放量呈负增长,而陕西则是由于农业 GDP 增长迅速。由于耕地面积大幅减少,四川省单位耕地面积排放强度变动指数最大,年均增长率为-4.24%;N<sub>r</sub> 排放量趋于减小致使山西和山东省单位耕地面积排放强度变动指数为负。单位农村人口排放强度变动指数最高的省(区)为内蒙古,从高到低依次是宁夏、甘肃、四川、河南、

陕西、青海、山东、山西。内蒙古 Nr 排放量增速远高于其他省(区),年均排放量增速达 4.78%,故其单位农业 GDP、单位耕地面积和单位农村人口氮排放强度变动指数均最大。

表 3 黄河流域各省(区)单位农业 GDP、单位耕地面积、单位农村人口氮排放强度及变动指数

Table 3 Per unit agricultural GDP, per unit cultivated land area, and per unit rural population nitrogen emission intensity and change index in the Yellow River Basin

省(区) Province (district)	单位农业 GDP 氮排放强度 Nitrogen emission intensity per unit of agricultural GDP/(Kg/万元)			变动 指数 Change index	单位耕地面积 氮排放强度 Nitrogen emission intensity per unit cultivated land area/(Gg/km <sup>2</sup> )			变动 指数 Change index	单位农村人口 氮排放强度 Nitrogen emission intensity per rural population/ (Kg/人)			变动指数 Change index
	2000	2005	2010		2000	2005	2010		2000	2005	2010	
山西	299.30	188.45	79.59	-0.73	117.32	113.93	102.55	-0.13	25.09	26.94	22.73	-0.10
内蒙古	250.32	231.05	136.18	-0.46	107.07	152.24	196.69	0.83	64.48	99.10	127.50	0.97
山东	165.89	120.18	50.29	-0.70	273.68	292.84	231.77	-0.16	37.39	44.32	36.21	-0.04
河南	201.74	156.37	77.19	-0.62	288.94	339.33	303.63	0.05	32.97	42.35	41.89	0.27
四川	182.55	137.73	81.19	-0.56	188.26	210.29	324.67	0.70	28.27	35.06	39.81	0.39
陕西	251.51	180.82	71.49	-0.72	126.34	142.32	164.90	0.29	26.60	31.35	32.55	0.21
甘肃	305.53	252.67	130.16	-0.58	118.03	146.42	158.71	0.33	30.46	40.58	43.67	0.42
青海	1069.59	735.08	360.29	-0.66	623.72	664.87	845.77	0.36	127.00	138.78	146.00	0.15
宁夏	356.52	294.94	142.24	-0.61	129.34	162.34	190.56	0.46	43.22	60.05	64.14	0.47
全流域	239.46	179.14	83.97	-0.65	163.45	185.91	192.62	0.17	32.26	39.78	39.68	0.22

以 2010 年排放强度为例,将单位农业 GDP、单位耕地面积、单位农村人口排放强度划分为 3 个等级(图 5)。单位农业 GDP 排放强度方面,以上游的青海省最高,其次是甘肃、宁夏、内蒙古;四川及中下游陕西、山西、河南、山东排放强度最弱;单位耕地面积排放强度以青海最高,四川、河南次之,山东、甘肃、陕西、宁夏、内蒙古、山西排放强度相对最小;单位农村人口排放强度以青海、内蒙古最大,宁夏次之,甘肃、四川、陕西、山西、河南、山东排放强度最小。受地理位置及气候条件的影响,青海省耕地面积较少,地广人稀,畜牧业发达但多以初级产品生产为主,产品附加值低,其农业 GDP 最小,因此青海省各类排放强度均最大。四川省畜牧业发达,而河南与山东农业种植强度大,三省(区)Nr 排放量大但耕地面积相对较小,因此单位耕地面积排放强度较大。四川、陕西等单位农村人口排放强度中等的省(区)人口密度大,2005 年人口密度均大于 180 人/km<sup>2</sup>,其中河南、山东人口密度均大于 610 人/km<sup>2</sup>;而宁夏、内蒙古人口密度均小于 100 人/km<sup>2</sup>,青海省人口密度仅介于 7—8 人/km<sup>2</sup>,因此青海、宁夏、内蒙古单位农村人口排放强度明显高于河南、山东等省(区)。

## 4 讨论

### 4.1 化学氮肥施用对 N<sub>2</sub>O 排放量变化的影响

化肥施用量是影响 N<sub>2</sub>O 排放量的重要因素。除青海和内蒙古外,其余 7 省农田生态系统 N<sub>2</sub>O 排放对农业生产总 N<sub>2</sub>O 排放的贡献率高于 60%,各类农业用地中,又以四季非蔬菜旱地排放量最大(图 4)。2000—2010 年黄河流域各类农用地共减少 627.25×10<sup>3</sup> hm<sup>2</sup>,但农田生态系统 N<sub>2</sub>O 排放量从 32.58 Gg 增长到了 97.90 Gg,主要原因在于各类用地施肥强度的变化。2000—2010 年四季非蔬菜旱地减少了 1311.72×10<sup>3</sup> hm<sup>2</sup>,而四季非蔬菜旱地的施肥量增加值高达 31.73 万 t。四季非蔬菜旱地用地面积大幅减少但化肥施用量增长迅速,茶园果园、蔬菜地用地面积和施肥量都有较大幅度增长,因此该 3 种用地类型对 N<sub>2</sub>O 排放量的增长贡献较大,占农田生态系统 N<sub>2</sub>O 总增长量的 95%。陕西省施肥强度从 2000 年的 1.66 t/km<sup>2</sup>增加到 2010 年的 2.50 t/km<sup>2</sup>;河南省耕地面积和施肥量均有不同程度的增加,导致河南、陕西两省农田生态系统 N<sub>2</sub>O 排放增长量最大,分别为 1.79 Gg 和 1.19 Gg。

因此,就不同用地类型而言,四季非蔬菜旱地具有最大的 N<sub>2</sub>O 减排潜力;就流域内各省(区)而言,陕西省

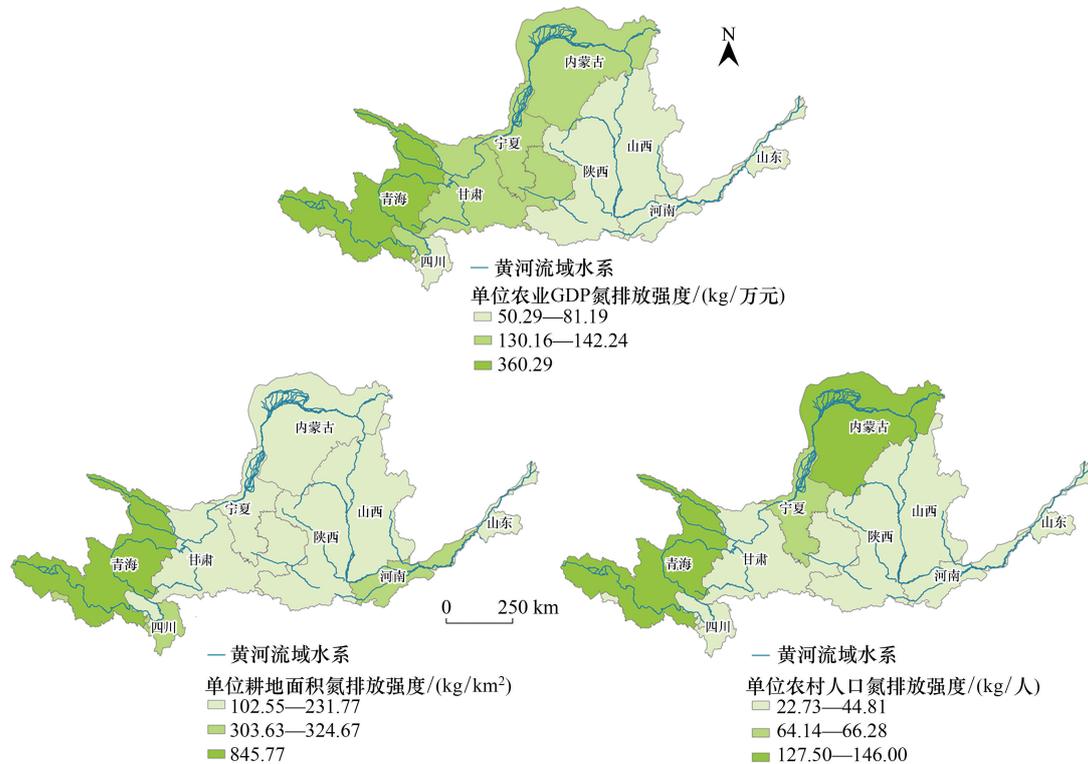


图 5 2010 年黄河流域各省(区)单位农业 GDP、单位耕地面积、单位农村人口氮排放强度分级

Fig.5 Nitrogen emission intensity of per unit agricultural GDP, per unit cultivated land area, and per unit rural population in the Yellow River Basin, 2010

具有最大的  $N_2O$  减排潜力,其次是河南;减排的主要方式即合理减量施肥。

#### 4.2 不同省(区)的 $N_r$ 减排策略

2000—2010 年内蒙古  $N_r$  排放量增速远高于其他省(区),应加强该省(区)的氮素管理。而青海省各类排放强度均最大,提高青海省的农业现代化水平、促进氮素的利用效率是重中之重。河南、山东农业种植强度大,应加强农业的施肥管理和采取种养结合等措施以提高氮素利用率。四川省的畜禽养殖发达,应制订规模化畜禽养殖各个环节的操作规程和氨减排措施。

黄河流域农业生产的  $N_r$  排放对周边地区的大气和地表水造成了环境影响,众所周知,京津冀及其周边地区是中国雾霾污染比较严重的地区,而  $NH_3$  作为  $PM_{2.5}$  产生的重要前体物,对其减排已成为控制雾霾的重要手段<sup>[27]</sup>。因此,河南和山东两省的  $NH_3$  排放控制是减缓该地区  $PM_{2.5}$  污染的重点任务。同时,据《2019 年中国生态环境状况公报》<sup>[28]</sup> 的数据显示,汾渭平原 11 个城市首要污染物也是  $PM_{2.5}$ 。青海省作为中国主要畜牧区之一,畜禽养殖对  $NH_3$  的贡献率超过 92%。因此,河南、山东、山西、陕西、青海 5 个省应该着重控制畜禽养殖的  $NH_3$  排放,并强化  $NH_3$  减排措施。据《2018 年中国生态环境状况公报》<sup>[29]</sup>,黄河流域地表水首要污染物是氨氮,氨氮污染主要是由水体中氧气不足时有机物分解所致,有机物主要来源于农业面源污染、生活污水、工业废水等<sup>[30]</sup>。黄河流域劣 V 类断面比例为 12.4%,主要分布在汾河及其支流、涑水河、三川河、清涧河等<sup>[29]</sup>,其中汾河流域 2006—2018 年持续重度污染。农业面源污染特别是氮肥的过量施用和畜禽养殖业不规范的排泄管理是上述水质恶化的主要原因<sup>[31]</sup>,为此,山西和陕西两省排入水体的  $N_r$  减排尤为迫切,必须加强科学施肥与农田氮素的流失管理。

#### 4.3 不同形态的活性氮减排对策

$Nr-wp$  和  $NH_3$  是黄河流域农业生产  $N_r$  排放的主要形态,二者占比超过 97%。 $Nr-wp$  主要来源于作物种植

系统。 $\text{NH}_3$ 排放主要来自畜禽养殖,其中畜禽养殖又以散养贡献最大。以青海省为例,在不同的养殖规模中,散养贡献最大,受地理位置、气候条件的影响,单位耕地面积积极少,消纳牲畜粪便的能力有限,大量畜禽粪便暴露在空气中产生氨气。氨气主要是由动物粪便中的蛋白质转换而来,因此减少氨气排放,源头在于降低高蛋白含量品种饲料应用的比例。河南、山西、山东、四川4省规模化养殖对 $\text{NH}_3$ 排放的贡献率相对较高,介于10%—20%之间,该4省种植业发达,化学氮肥施用贡献率大于30%。

根据以上分析,制定如下对策:①合理减量施肥,提高利用效率。国内外有大量研究证明,施肥量通过影响氮淋洗和径流速率从而进一步影响土壤硝态氮含量<sup>[32-34]</sup>。当地政府和农业部门针对不同区域的土壤肥力等评定合理的施肥量,引导农户合理施肥。②实施农牧结合,强化循环利用。采取种养结合的方式,增加畜禽粪便还田量,代替部分化学氮肥。③研发新型肥料,减少氮肥挥发。在化肥中适当添加脲酶抑制剂以减少氨挥发。④优化耕作制度,培育土壤质量。在放牧过程中推行规范化的粪便储存、堆沤技术,试点推广放牧-种植循环模式和二圃轮作制,最大化地将牲畜粪便本地消纳。避免连作、单作也能有效地减少氮损失<sup>[35]</sup>。此外,宣传推广覆土深施氮肥有助于减少氨挥发。⑤创新水肥管理,构建技术体系。在畜禽养殖过程中采用更合理的建筑设计可有效降低圈舍的 $\text{NH}_3$ 排放,如建设集中的粪便收集区域、合理控制排泄区温度等<sup>[36]</sup>。针对流域内的干旱区,如内蒙古、宁夏、甘肃等省(区),大力推广喷灌、滴灌技术<sup>[37]</sup>;中下游河南、陕西、山东、山西农作物种植区除调整大水漫灌的灌溉方式外,可考虑在干支流两侧设置禁养区,调整种植结构,同时设置一定宽度的湿地过渡区,以减缓农田氮素的流失。

#### 4.4 不确定性分析

本文采用排放因子法,该方法包含活动水平数据和排放因子两部分,活动水平数据多来自统计年鉴,参数选自参考文献,存在一定的误差和不确定性。通过误差传递的方法对黄河流域Nr排放量进行不确定性分析,将化肥施用量、农作物种植面积等活动水平的不确定性定为5%<sup>[5]</sup>,将干重比、含氮量等参数的不确定性定为10%—20%<sup>[22]</sup>,得出2000、2005及2010年黄河流域农业生产Nr排放量的不确定性分别为18.01%、19.00%、19.66%, $\text{NH}_3$ 的不确定性分别为13.87%、16.01%、13.57%, $\text{N}_2\text{O}$ 的不确定性分别是18.64%、16.24%、18.11%,Nr-wp的不确定性分别是23.62%、26.73%、28.59%, $\text{NO}_x$ 的不确定性分别是21.38%、20.95%、20.97%,其中Nr-wp的不确定性最大,但均在可接受的范围内。本文核算的流域内四川省2010年畜禽养殖 $\text{NH}_3$ 排放量为12.65 Gg,与冯小琼等<sup>[38]</sup>核算的2018年畜禽养殖氨排放量结果相差15%,表明本研究结果的可信度较高。本文中,3个年份4种形态的Nr对排放总量的贡献分别是Nr-wp(69.35%)> $\text{NH}_3$ (28.38%)> $\text{N}_2\text{O}$ (2.09%)> $\text{NO}_x$ (0.19%);欧盟对作物种植和畜禽养殖两个子系统氮足迹核算的结果为Nr-wp(66.46%)> $\text{NH}_3$ (29.54%)> $\text{N}_2\text{O}$ (3.06%)> $\text{NO}_x$ (0.95%)<sup>[39]</sup>的结果相比相差不大。基于黄河流域内各省(区)活动水平数据汇总的农业生产Nr排放量结果与上述已发表文献中的估算结果误差均在可接受范围内,表明本文核算结果的可靠性有所保证。

## 5 结论

本文估算了2000、2005及2010年黄河流域农业生产Nr排放量,分析不同形态Nr的排放源,揭示单位农业GDP、单位耕地面积、单位农村人口Nr排放强度变化特征,为黄河流域农业生产中的Nr减排提供科学基础,促进黄河流域生态保护与高质量发展战略的实施。

(1)黄河流域2000、2005及2010年农业生产Nr排放总量分别为2153.64、2449.59、2222.14 Gg;Nr-wp排放量最大,其次是 $\text{NH}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{NO}_x$ ,流域内中下游省(区)排放量明显高于上游省(区)。

(2)化学氮肥施用和散养是 $\text{NH}_3$ 排放的最大来源,其次是规模化养殖和放牧饲养,4种来源所占比重在91%以上。3种Nr-wp排放源贡献率相差不大,但不同年份不同省份又存在微小差异。内蒙古、青海、四川3省份畜禽养殖系统粪便流失和淋洗贡献率达40%以上;陕西、宁夏农田作物系统淋洗贡献率大于35%;陕西、山西、河南、山东4个中下游省份农田作物系统径流贡献率超过35%。山西、山东、河南、陕西、甘肃、宁夏6省

$N_2O$  排放源以四季非蔬菜旱地为主,贡献率介于 39%—54%之间;青海、内蒙古两大牧区省份的  $N_2O$  排放以畜禽养殖系统排放为主,贡献率介于 38%—61%之间。

(3) 黄河流域单位农业 GDP 氮排放强度大幅下降,2010 年排放强度约为 2000 年排放强度的 1/3;单位耕地面积氮排放强度和单位农村人口氮排放强度则小幅上升。受自然环境及农业发展方式的影响,青海省单位农业 GDP、单位耕地面积、单位农村人口氮排放强度均最大;内蒙古  $N_r$  排放量增幅最大,因此各类氮排放强度变动指数均最大。

(4) 针对黄河流域不同省(区)的农业生产特征以及  $N_r$  的排放来源和强度特征,要因地制宜,分类施策。同时推进上下游、南北岸的统筹规划,打破行政边界限制,协同推进治理。根据各省(区)不同形态的活性氮来源和排放强度,采取相应的减排策略和对策。

#### 参考文献 (References):

- [ 1 ] Galloway J N, Cowling E B. Reactive nitrogen and the world: 200 years of change. *AMBIO: A Journal of the Human Environment*, 2002, 31(2): 64-71.
- [ 2 ] Oita A, Malik A, Kanemoto K, Geschke A, Nishijima S, Lenzen M. Erratum: substantial nitrogen pollution embedded in international trade. *Nature Geoscience*, 2016, 9(3): 260.
- [ 3 ] Hu Y C, Su M R, Wang Y F, Cui S H, Meng F X, Yue W C, Liu Y F, Xu C, Yang Z F. Food production in China requires intensified measures to be consistent with national and provincial environmental boundaries. *Nature Food*, 2020, 1(9): 572-582.
- [ 4 ] Gu B J, Ju X T, Chang J, Ge Y, Vitousek P M. Integrated reactive nitrogen budgets and future trends in China. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2015, 112(28): 8792-8797.
- [ 5 ] Cui S H, Shi Y L, Groffman P M, Schlesinger W H, Zhu Y G. Centennial-scale analysis of the creation and fate of reactive nitrogen in China (1910-2010). *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2013, 110(6): 2052-2057.
- [ 6 ] Erisman J W, Galloway J, Seitzinger S, Bleeker A, Butterbach-Bahl K. Reactive nitrogen in the environment and its effect on climate change. *Current Opinion in Environmental Sustainability*, 2011, 3(5): 281-290.
- [ 7 ] 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): 8256-8265.
- [ 8 ] 焦雯珺, 闵庆文, 成升魁, 袁正, 李静, 戴忱. 基于污染足迹模型的太湖流域水环境演变的人文驱动力评估——以江苏省常州市为例. *资源科学*, 2011, 33(2): 223-229.
- [ 9 ] Misselbrook T H, Van Der Weerden T J, Pain B F, Jarvis S C, Chambers B J, Smith K A, Phillips V R, Demmers T G M. Ammonia emission factors for UK agriculture. *Atmospheric Environment*, 2000, 34(6): 871-880.
- [ 10 ] Ma L, Wang F H, Zhang W F, Ma W Q, Velthof G, Qin W, Oenema O, Zhang F S. Environmental assessment of management options for nutrient flows in the food chain in China. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(13): 7260-7268.
- [ 11 ] 高伟, 白辉, 严长安, 陈岩. 1952-2016 年长江经济带天然与人为氮输入时空演变趋势. *环境科学学报*, 2019, 39(9): 3134-3143.
- [ 12 ] 张千湖, 高兵, 黄薇, 颜晓妹, 崔胜辉. 福建省地级市人为源活性氮排放及其特征分析. *环境科学*, 2017, 38(9): 3610-3619.
- [ 13 ] Zhang Q, Streets D G, He K B, Wang Y X, Richter A, Burrows J P, Uno I, Jang C J, Chen D, Yao Z L, Lei Y.  $NO_x$  emission trends for China, 1995-2004: the view from the ground and the view from space. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2007, 112(D22): D22306.
- [ 14 ] 吴青, 张青云, 李立阳, 王丽伟, 郭正. 近十年黄河流域水质状况及变化趋势分析. *安阳工学院学报*, 2006, (4): 1-5.
- [ 15 ] 韩凤朋, 郑继勇, 张兴昌. 黄河 6 条支流非点源污染分布现状. *西北农林科技大学学报: 自然科学版*, 2006, 34(8): 75-81.
- [ 16 ] 夏星辉, 周劲松, 杨志峰, 陈静生. 黄河流域河水氮污染分析. *环境科学学报*, 2001, 21(5): 563-568.
- [ 17 ] 张会言, 杨立彬, 张新海. 黄河流域经济社会发展指标分析. *人民黄河*, 2013, 35(10): 11-13.
- [ 18 ] 中华人民共和国国家统计局. 人口. (2020-09-21)[2020-11-12]. <http://www.stats.gov.cn/tjsj/ndsj/2020/indexch.htm>.
- [ 19 ] 环境保护部. 大气氨源排放清单编制技术指南. (2014-08-20)[2020-11-12]. [http://www.mee.gov.cn/gkml/hbb/hgg/201408/t20140828\\_288364.htm](http://www.mee.gov.cn/gkml/hbb/hgg/201408/t20140828_288364.htm).
- [ 20 ] Gao B, Wang L, Cai Z C, Huang W, Huang Y F, Cui S H. Spatio-temporal dynamics of nitrogen use efficiencies in the Chinese food system, 1990-2017. *Science of the Total Environment*, 2020, 717: 134861.
- [ 21 ] 国家发展和改革委员会应对气候变化司. 中国温室气体清单研究: 2005. 北京: 中国环境出版社, 2014.
- [ 22 ] Ma L, Velthof G L, Wang F H, Qin W, Zhang W F, Liu Z, Zhang Y, Wei J, Lesschen J P, Ma W Q, Oenema O, Zhang F S. Nitrogen and phosphorus use efficiencies and losses in the food chain in China at regional scales in 1980 and 2005. *Science of the Total Environment*, 2012, 434: 51-61.

- [23] 施亚岚, 崔胜辉, 许肃, 林剑艺, 黄葳. 中国产业能源消费氮氧化物排放影响因素分析. 环境科学与技术, 2014, 37(S1): 355-362.
- [24] 蔡祖聪. 中国氮素流动分析方法指南. 北京: 科学出版社, 2018.
- [25] 张千湖, 高兵, 黄葳, 颜晓妹, 崔胜辉. 我国人为源气态活性氮排放时空变动特征分析. 环境科学学报, 2017, 37(8): 3065-3076.
- [26] 张晓梅, 庄贵阳, 刘杰. 城市温室气体清单的不确定性分析. 环境经济研究, 2018, 3(01): 8-18, 149-149.
- [27] 顾梦娜, 潘月鹏, 何月欣, 田世丽, 王彦君, 吕雪梅, 倪雪, 孙杰, 吴电明, 方运霆. 稳定同位素模型解析大气氨来源的参数敏感性. 环境科学, 2020, 41(7): 3095-3101.
- [28] 中华人民共和国生态环境部. 2019 中国生态环境状况公报. (2020-05-18) [2020-06-02]. <http://www.mee.gov.cn/hjzl/sthjzk/zghjzkgb/202006/P020200602509464172096.pdf>.
- [29] 中华人民共和国生态环境部. 2018 中国生态环境状况公报. (2019-05-29) [2019-05-29]. <http://www.mee.gov.cn/hjzl/sthjzk/zghjzkgb/201905/P020190619587632630618.pdf>.
- [30] 张占平. 水体中氨氮污染源及其控制——富营养化的思考. 内蒙古环境科学, 2008, 20(5): 71-72.
- [31] 高钰晶. 黄河兰州段水质氨氮变化浅析. 环境研究与监测, 2020, 33(2): 49-54.
- [32] 郑伟, 何萍, 高强, 沙之敏, 金继运. 施氮对不同土壤肥力玉米氮素吸收和利用的影响. 植物营养与肥料学报, 2011, 17(2): 301-309.
- [33] 冀建华, 刘秀梅, 李祖章, 刘益仁, 侯红乾, 刘光荣, 罗奇祥. 长期施肥对黄泥田碳和氮及氮素利用的影响. 中国农业科学, 2011, 44(12): 2484-2494.
- [34] 袁新民, 王周琼. 硝态氮的淋洗及其影响因素. 干旱区研究, 2000, 17(4): 46-52.
- [35] Izaurralde R C, Feng Y, Robertson J A, McGill W B, Juma N G, Olson B M. Long-term influence of cropping systems, tillage methods, and N sources on nitrate leaching. Canadian Journal of Soil Science, 1995, 75(4): 497-505.
- [36] 巨晓棠, 谷保静, 蔡祖聪. 关于减少农业氨排放以缓解灰霾危害的建议. 科技导报, 2017, 35(13): 11-12.
- [37] 杨梦娇. 不同灌水量及施肥量条件下硝态氮在土壤中的分布规律. 石河子: 石河子大学, 2013.
- [38] 冯小琼, 陈军辉, 姜涛, 熊文朋, 梅林德. 四川盆地 2018 年畜禽养殖氨排放清单研究. 四川环境, 2020, 39(5): 24-31.
- [39] Leip A, Weiss F, Lesschen J P, Westhoek H. The nitrogen footprint of food products in the European Union. The Journal of Agricultural Science, 2014, 152(S1): 20-33.