

DOI: 10.20103/j.stxb.202312282852

张泽乾, 刘鹏, 刘浩, 许浩, 周婷婷, 王淑, 李娟花, 孙丽慧. 农业生产消费系统氮损失特征及其不确定性. 生态学报, 2024, 44(16): 6923-6936.

Zhang Z Q, Liu P, Liu H, Xu H, Zhou T T, Wang S, Li J H, Sun L H. Characteristics and uncertainty of nitrogen loss in agricultural production and consumption system. Acta Ecologica Sinica, 2024, 44(16): 6923-6936.

农业生产消费系统氮损失特征及其不确定性

张泽乾, 刘 鹏, 刘 浩, 许 浩, 周婷婷, 王 淑, 李娟花, 孙丽慧*

中国环境科学研究院, 环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012

摘要: 准确量化活性氮损失是农业生产消费系统氮管理的重要基础。以长江三角洲地区(长三角地区)为研究区, 基于物质流分析法研究农业生产消费系统的氮损失特征, 采用误差传播方程量化氮损失的不确定性, 并采用多元回归分析对其传播机制进行分析。结果表明, 2011—2020 年, 长三角地区农业生产消费系统活性氮损失总量由 2011 年的 (1841.0 ± 150.4) Gg/a 上升至 2013 年的 (1874.1 ± 154.2) Gg/a, 随后逐年下降至 2020 年的 (1636.4 ± 144.6) Gg/a。作物种植和畜禽养殖子系统是活性氮损失最大的两个源, 10 年平均占比分别为 37.5% 和 31.0%。10 年间, 二者的活性氮损失占比均呈下降趋势, 而居民消费和废物管理子系统活性氮损失占比均呈上升趋势。大气环境是系统活性氮损失最主要的汇, 10 年平均占比为 52.2%。不确定性方面, 系统活性氮损失总量的不确定性为 8.1%—8.8%, 其中, 废物管理子系统和地表水环境活性氮损失分别为不确定性最高的源和汇。由人类活动水平数据和氮流参数引入的系统氮损失的不确定性分别为 1.2%—1.3% 和 8.0%—8.8%, 表明后者是氮损失不确定性的主要来源。畜禽养殖子系统和地表水环境损失对系统氮损失总量不确定性的贡献最大, 分别为 27.4% 和 50.0%。多元回归分析结果显示, 各组分氮损失通量及其不确定性两个因素均显著影响氮损失总量的不确定性, 且各组分氮损失通量是影响不确定性传播的主导因素。研究结果可为降低农业生产消费系统氮损失的不确定性提供参考。

关键词: 物质流分析; 氮流; 氮损失; 误差传播方程; 传播机制

Characteristics and uncertainty of nitrogen loss in agricultural production and consumption system

ZHANG Zeqian, LIU Peng, LIU Hao, XU Hao, ZHOU Tingting, WANG Shu, LI Juanhua, SUN Lihui*

State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China

Abstract: Accurate quantification of nitrogen (N) loss is essential for N management in agricultural production and consumption system. Taking the Yangtze River Delta (YRD) region as the study area, N loss characteristics of agricultural production and consumption system was estimated based on substance flow analysis, and sources of uncertainty were quantitatively analyzed using error propagation equation, and multiple regression analysis was used to analyze the transmission of uncertainty. The results showed that from 2011 to 2020, the total amount of N loss in the agricultural production and consumption system in the YRD initially increased from (1841.0 ± 150.4) Gg/a in 2011 to (1874.1 ± 154.2) Gg/a in 2013, and then decreased year by year to (1636.4 ± 144.6) Gg/a in 2020. The cropland and livestock subsystems were the two largest sources of N loss, accounting for 37.5% and 31.0% on average, respectively. Moreover, the proportion of N loss of them both showed a decreasing trend, while that of human consumption and waste management subsystem showed an increasing trend. It was mainly attributed to the decrease of agricultural production scale and urbanization process in the YRD. Atmospheric environment was the primary sink of N loss in the system, with an average proportion of 52.2% in

基金项目: 中央级公益性科研院所基本科研业务费专项 (2022YSKY-35); 国家环境保护河口与海岸带环境重点实验室开放基金项目 (HKHA2022006)

收稿日期: 2023-12-28; **网络出版日期:** 2024-06-18

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: sunlh@craes.org.cn

the 10 years. Based on calculation, the uncertainty of total N loss in the system was 8.1%—8.8%, in which the waste management subsystem and surface water were the sources and sinks of N loss with the highest uncertainty, respectively. In terms of uncertainty sources, the uncertainties of N loss introduced by human activity level data and N flow parameters were 1.2%—1.3% and 8.0%—8.8%, respectively, indicating that the latter was the main source of uncertainty. In addition, N loss from livestock subsystem and to surface water environment contributed the most to the total N loss uncertainty of the system, responsible for 27.4% and 50.0%, respectively. Multiple regression analysis showed that the N loss flux of each component and its uncertainty both significantly affected the uncertainty of the total N loss of the system, and the N loss flux of each component was the predominant factor affecting the uncertainty propagation. The influence of the N loss flux of each component on the total N loss uncertainty was about 2.3 times that of the latter. The findings could provide a reference for reducing the uncertainty of N loss in agricultural production and consumption system.

Key Words: substance flow analysis; nitrogen flow; nitrogen loss; error propagation equation; transmission mechanism

自 Haber-Bosch 人工合成氨技术问世以来,人类活动产生的活性氮(除 N_2 外其它形式的氮)急剧升高,已达到全球陆地生态系统自然固氮量的 3 倍以上^[1]。由于反硝化的强度并未随之增加,原本封闭的氮循环过程被逐渐打破^[2]。大量的活性氮流失到环境中,导致空气质量下降、水体富营养化等一系列环境问题^[3-4]。有研究表明,农业生产消费系统是中国乃至全球活性氮环境损失的最大来源^[5-7],改善其活性氮管理是减少活性氮损失的关键^[8]。

准确量化活性氮损失通量是改善农业生产消费系统氮管理的前提。迄今为止,国内外学者针对农业生产消费系统氮损失开展了大量研究^[9-11]。这些研究通常基于物质流分析方法,将人类活动水平数据与氮流参数结合起来估算氮损失通量。受人类活动水平数据的准确性、参数的可靠性和适用性、模型概化过程中的假设和简化等因素的影响,氮损失估算结果不可避免地存在不确定性,进而导致对农业生产消费系统氮损失的认识偏差^[12]。为此,氮损失估算结果的不确定性分析开始受到学者的关注。有研究^[13-14]定性分析了氮损失不确定性可能的来源及影响,认为模型估算结果的不确定性主要受到模型结构、统计数据质量和氮流参数适用性的影响。有研究^[15-17]在定性分析的基础上,定量给出了特定置信水平下氮损失的不确定性(以百分数表示)和氮损失通量的不确定区间。例如,洗超凡等^[18]研究发现,深圳市城市生态系统污染氮足迹核算结果的不确定性为-7%—13%。此外,Zhang 等^[19]在量化不确定性的基础上,系统分析了中国氮收支不确定性的来源,并量化了不同来源的贡献。总体而言,现有研究偏重于不确定性分析结果的阐述和来源分析,对氮损失不确定性的传播机制研究不足。

近年来,机器学习等新方法也开始应用于氮损失负荷估算。张育福等^[20]基于随机森林算法构建模型预测长江流域农田总氮径流流失强度,克服了氮径流流失强度与影响因素之间函数关系难以确定的问题,一定程度上提高了预测精度,降低了不确定性。但是,机器学习本身是一个黑箱过程,缺乏预测过程透明度和可解释性^[21],同样无法解析不确定性的传播过程。

氮流不确定性的量化方法主要包括误差传播方程(error propagation equation)^[22-23]和蒙特卡罗(Monte Carlo)模拟^[15,24]等。蒙特卡罗模拟是不确定性评定的有效工具,并在解释随机不确定性方面具有优势。但是,该方法需事先通过统计方法确定输入数据的概率分布函数,操作复杂、计算量大、成本高^[25]。相比之下,误差传播方程对输入数据的概率分布无过多要求,具有计算简单、方便快捷等优点^[26]。可以看出,二者各有优缺点。实际中,二者均被广泛应用于不确定性的估算^[16,27-29]。本研究利用误差传播方程计算农业生产消费系统氮损失的不确定性。

长三角地区是中国经济最发达、人口密度最大的地区之一,同时也是主要的农业生产区之一^[30-31]。随着经济的快速发展,当地面临着空气质量下降、水体富营养化等氮污染问题^[32-33]。基于上述典型性,本研究拟选取长三角地区作为研究区域,深入研究农业生产消费系统氮损失的不确定性。与现有研究相比,本研究对

农业生产消费系统氮损失不确定性传播机制进行了深入研究,有助于深化对农业生产消费系统氮损失不确定性的科学认识。

1 研究方法与数据来源

1.1 氮损失通量核算

本研究基于物质流分析法(substance flow analysis,SFA)分析量化 2011—2020 年长三角地区农业生产消费系统氮损失通量。以长三角地区中心区 27 个城市的行政边界(图 1)作为模型地理边界。农业生产消费系统共包括作物种植、畜禽养殖、水产养殖、居民消费和废物管理 5 个子系统,并以大气环境和水环境为支持。各子系统间通过基于氮素生物地球化学循环过程概化出的 40 条主要氮流(F01—F40)相连接,形成长三角地区农业生产消费系统氮流分析模型框架(图 2)。通过追踪进入大气环境和水环境中的氮流通量,计算得到系统氮损失。

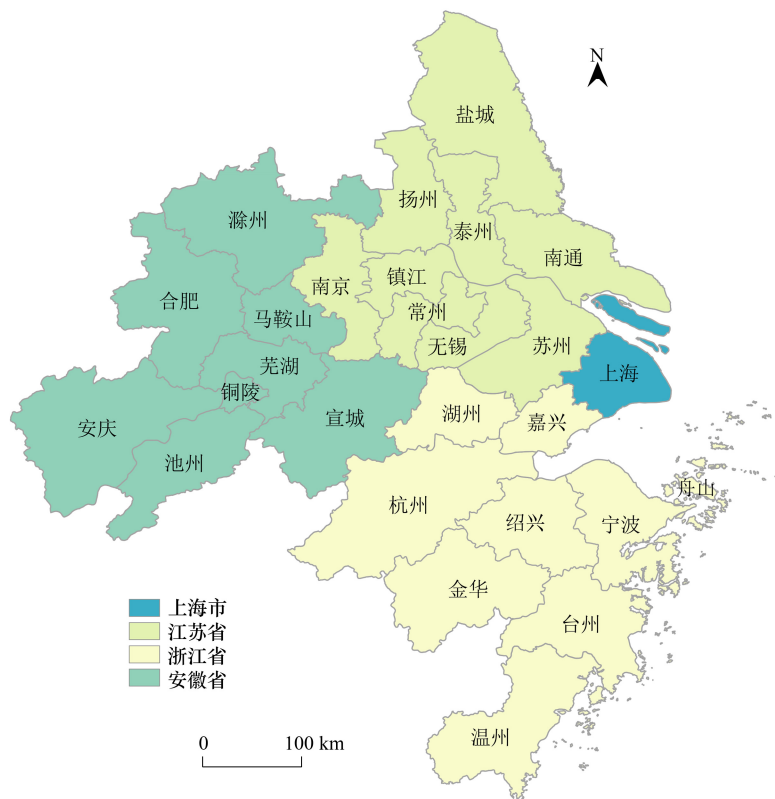


图 1 长三角地区概况

Fig.1 Overview of the Yangtze River Delta region

系统各氮流通量的计算主要基于以下 3 种方法^[34]:

(1) 独立方程法:

$$F_{i,n} = \sum A_{i,n} \times \lambda_{i,n} \quad (1)$$

式中, $F_{i,n}$ 为第 n 年第 i 类氮流通量,Gg/a; $A_{i,n}$ 为第 n 年第 i 类人类活动水平, $\lambda_{i,n}$ 为第 n 年第 i 类人类活动对应的氮转换参数。

(2) 相关方程法:

$$D_{i,n} = \sum F_{i,n} \times f_{i,n} \quad (2)$$

式中, $D_{i,n}$ 为采用相关方程法计算的第 n 年第 i 类氮流通量,Gg/a; $F_{i,n}$ 为采用独立方程法计算的第 n 年第 i 类

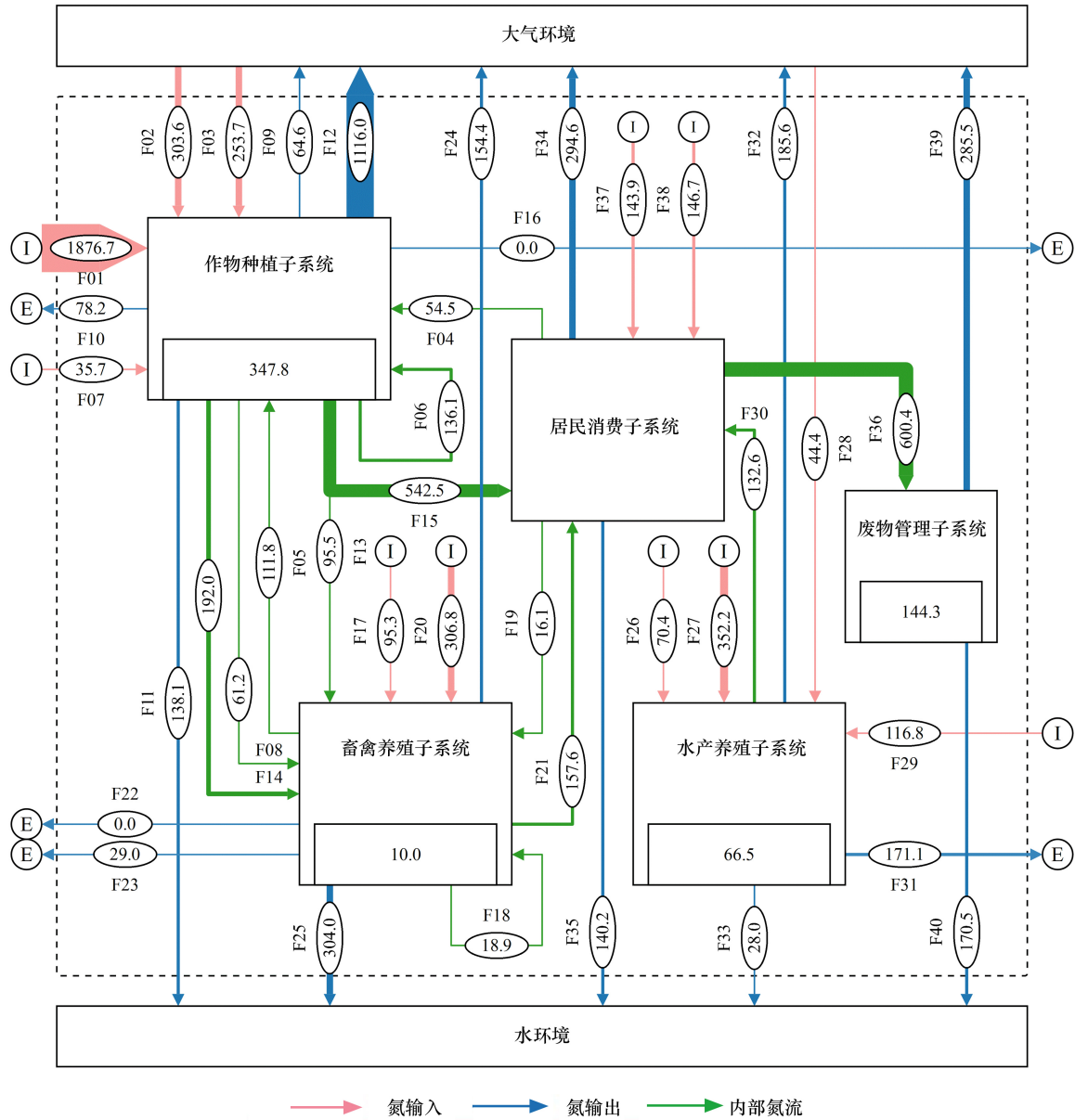


图2 长三角地区农业生产消费系统氮流分析模型框架

Fig.2 Framework of N flow analysis model for agricultural production and consumption system in the Yangtze River Delta region

F01: 含氮化肥, F02: 氮沉降, F03: 作物固氮, F04: 居民粪污还田, F05: 畜禽粪污还田, F06: 秸秆还田, F07: 灌溉水, F08: 秸秆饲料, F09: 秸秆焚烧, F10: 秸秆输出, F11: 农田氮径流和氮淋洗, F12: 农田氮挥发和脱氮, F13: 饲用粮, F14: 粮食加工副产物饲料, F15: 居民口粮, F16: 粮食输出, F17: 秸秆氮化, F18: 畜禽加工副产物饲料, F19: 餐厨垃圾饲料, F20: 外部输入动物饲料, F21: 居民消费动物产品, F22: 动物产品输出, F23: 畜禽加工副产物输出, F24: 畜禽粪污氮挥发和脱氮, F25: 畜禽粪污氮径流和氮淋洗, F26: 水产养殖肥料, F27: 水产养殖饵料, F28: 水产养殖氮沉降, F29: 水产捕捞, F30: 居民消费水产品, F31: 水产品输出, F32: 水产养殖氮挥发和脱氮, F33: 水产养殖氮径流, F34: 居民消费氮挥发和脱氮, F35: 生活污水直排和渗漏, F36: 生活污水和餐厨垃圾处理, F37: 外部输入粮食, F38: 外部输入动物产品, F39: 污水处理厂氮挥发和脱氮, F40: 污水处理厂出水氮排放, I: 外部输入, E: 系统输出; 图中箭头上的数据为基于模型估算的 2020 年长三角地区农业生产消费系统氮流通量, 箭头线宽表示氮流通量的大小; 各子系统的数字表示氮累积

氮流通量, Gg/a ; $f_{i,n}$ 为采用独立方程法计算的第 n 年第 i 类氮流通量的分配参数。

(3) 系统平衡法:

$$\sum_{i=1}^a IN_{i,n} = \sum_{j=1}^p OUT_{j,n} + \sum_{k=1}^q STO_{k,n} \tag{3}$$

式中, $IN_{i,n}$ 为第 n 年各氮输入项, Gg/a ; $OUT_{j,n}$ 为第 n 年各氮输出项, Gg/a ; $STO_{k,n}$ 为第 n 年各氮贮存项, Gg/a ; o, p, q 分别为第 n 年各氮输入、输出和贮存项的类别。

由于无法获得城市尺度的农产品进出口数据, 本研究假设研究区域生产的农产品优先满足本地消费需求, 只有产生过剩时才会流出到区域外。如研究区域生产的农产品无法满足本地消费需求, 不足部分通过系统外输入补充^[34]。

1.2 数据来源

模型输入数据包括人类活动水平数据和氮流参数。其中, 人类活动水平数据主要包括经济发展数据(地区生产总值、各产业增加值)、人口数据(常住人口、城镇人口和农村人口)、农业生产数据(耕地面积、作物种植面积、化肥施用量、作物产量、畜禽养殖规模、动物产品产量、水产品养殖规模、水产品产量)、居民消费数据(农村和城市居民人均食物消费量)和生态环境数据(污水处理量和污泥产生量)等, 主要来自中国统计年鉴、中国城市建设统计年鉴、中国环境统计年鉴、中国农村统计年鉴和各省、市统计年鉴等。数据的时间跨度为 2011—2020 年。氮流参数均来自公开发表的文献, 主要包括氮含量、氮沉降通量、生物固氮率、氮排放因子、氮流分配系数等 89 项参数, 主要参数见表 1。

表 1 主要的氮流参数及其不确定性
Table 1 Main N flow parameters and their uncertainties

参数 Parameter	取值 Value	不确定性 Uncertainty/%
氮沉降通量/($kg\ hm^{-2}\ a^{-1}$) N deposition flux	41.4 ^[35]	20.0 ^[36]
固氮速率/($kg\ hm^{-2}\ a^{-1}$) N fixation rate	豆类: 105.0 ^[27, 37] , 花生: 112.0 ^[37—38] , 水田: 30.0 ^[39—40] , 旱田: 15.0 ^[37, 39]	50.0 ^[41]
农田氮径流系数/($kg\ hm^{-2}\ a^{-1}$) N runoff coefficient of cropland	上海: 6.1 ^[42] , 江苏: 6.5 ^[42] , 浙江: 15.0 ^[42] , 安徽: 5.4 ^[42]	30.0 ^[36]
农田氮挥发系数/% NH_3 volatilization coefficient of cropland	化肥: 16.0 ^[37, 43] , 有机肥: 23.0 ^[37]	30.0 ^[36]
农田 N_2O 排放系数/% N_2O emission coefficient of cropland	化肥: 0.4 ^[37] , 有机肥: 1.0 ^[19]	30.0 ^[36]
畜禽粪污排泄系数/($kg\ head^{-1}\ a^{-1}$) Livestock manure excretion coefficient	猪: 4.9 ^[37] , 牛: 74.4 ^[37] , 羊: 11.2 ^[37] , 兔: 0.5 ^[37] , 禽: 0.4 ^[37]	10.0 ^[44]
畜禽粪污挥发系数/% NH_3 volatilization coefficient of manure	猪: 19.0 ^[27] , 牛: 17.0 ^[27] , 羊: 25.0 ^[27] , 兔: 54.0 ^[27] , 禽: 22.0 ^[27]	30.0 ^[44]
畜禽粪污氮径流系数/% N runoff coefficient of manure	猪: 59.0 ^[45] , 牛: 41.0 ^[45] , 羊: 72.0 ^[45] , 兔: 75.0 ^[45] , 禽: 73.0 ^[45]	30.0 ^[44]
居民粪污排泄系数/% Human feces excretion coefficient	88.0 ^[37]	25.0 ^[46]

N: 氮 Nitrogen

1.3 氮损失不确定性分析

氮流不确定性的主要原因包括: (1) 模型设计和结构: 氮的生物地球化学循环过程极其复杂, 不可避免地要忽略部分氮流, 并对纳入模型的氮流作必要的简化处理; (2) 人类活动水平数据的准确性: 官方统计数据本身存在误差, 统计口径前后不一致, 统计项目不完善; (3) 氮流参数的不唯一性: 模型采用的氮流参数在不同时空尺度上具有不唯一性; (4) 不同氮流的相互影响: 同源氮流之间受分配系数支配, 部分氮流采用系统平衡法间接核算, 存在交互影响。需要指出的是, 模型设计和结构不完善引入的不确定性主要是由于对氮素生物地球化学循环科学认知的不足和模型模拟性能不够, 属于系统误差, 难以量化^[19]。因此, 氮流不确定性量化分析均不包括模型设计和结构不完善引入的不确定性。

在考虑不确定性的条件下, 氮流通量是一个在特定置信水平(95%)以估计值为中心并包含真实值的置信区间。通常, 氮流不确定性表述为百分数, 即数据的标准差(standard deviation, SD)与均值(mean, M)之比, 又称变异系数(coefficient of variation, CV)。不确定性区间则表述为平均值和标准差($M \pm SD$)。本研究采用误

差传播方程^[47]计算农业生产消费系统氮损失的不确定性,公式如下:

$$U_{F_i} = \sqrt{U_{C_i}^2 + U_{A_i}^2} \quad (4)$$

$$U_{\text{total}} = \frac{\sqrt{\sum (U_{F_i} \times F_i)^2}}{\sum F_i} \quad (5)$$

式中, U_{F_i} 为第*i*项氮损失通量的不确定性,%; U_{C_i} 为计算第*i*项氮损失通量所用参数的不确定性,% ,主要参数的不确定性见表1; U_{A_i} 为人类活动水平数据的不确定性,采用5.0%^[37]; F_i 为第*i*项氮损失通量,Gg/a; U_{total} 为氮损失通量的总不确定性,%。

1.4 趋势检验

采用 Mann-Kendall 检验对氮损失的年际变化趋势进行显著性判断^[48-49]。对于氮损失序列 $X_1, \dots, X_n$, 其统计量 S 和 Z 的计算如下:

$$S = \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n \text{sgn}(X_j - X_i) \quad (6)$$

$$\text{sgn}(X_j - X_i) = \begin{cases} 1, & X_j - X_i > 0 \\ 0, & X_j - X_i = 0 \\ -1, & X_j - X_i < 0 \end{cases} \quad (7)$$

$$\text{var}(S) = \frac{n(n-1)(2n+5)}{18} \quad (8)$$

$$Z = \begin{cases} \frac{S-1}{\sqrt{\text{var}(S)}}, & S > 0 \\ 0, & S = 0 \\ \frac{S+1}{\sqrt{\text{var}(S)}}, & S < 0 \end{cases} \quad (9)$$

式中, X_i 和 X_j 分别为年份*i*和*j*所对应的氮损失值, n 为时间序列长度。在给定显著性水平 α 下,若 $|Z| \geq Z_{1-\alpha/2}$ 时,表示在 α 水平上时间序列存在显著变化趋势,其中, $Z > 0$ 为显著上升趋势, $Z < 0$ 为显著下降趋势。本研究取 $\alpha = 0.05$,判断在0.05置信水平上(即要求 $|Z| > 1.96$),2011—2020年氮损失变化趋势的显著性。

2 结果与分析

2.1 氮损失及不确定性特征

长三角地区农业生产消费系统活性氮损失不确定性及源汇结构特征如图3所示。系统活性氮损失总量由2011年的 (1841.0 ± 150.4) Gg/a 上升至2013年的 (1874.1 ± 154.2) Gg/a,随后逐年下降至2020年的 (1636.4 ± 144.6) Gg/a。源汇方面,2011—2020年,作物种植和畜禽养殖子系统是活性氮损失最大的两个源,损失量分别为 (569.6 ± 62.3) — (720.5 ± 87.8) Gg/a 和 (429.9 ± 71.6) — (641.7 ± 96.3) Gg/a,10年平均占比分别为37.5%和31.0%(图3)。作物种植和畜禽养殖子系统活性氮损失占比均呈下降趋势,居民消费和废物管理子系统活性氮损失占比均呈上升趋势(Mann-Kendall 检验, $P < 0.05$)。水产养殖子系统活性氮损失占比无显著变化趋势(Mann-Kendall 检验, $P > 0.05$)。大气环境是系统活性氮损失最主要的汇,损失量为 (855.5 ± 88.5) — (971.6 ± 105.0) Gg/a,10年平均占比为52.2%;其次是地表水环境,10年平均占比为42.0%;占比最低的是地下水环境,10年平均占比为5.8%。损失至大气环境、地下水环境的活性氮占比均呈上升趋势,损失至地表水环境的活性氮占比呈下降趋势(Mann-Kendall 检验, $P < 0.05$)。

长三角地区农业生产消费系统活性氮损失不确定性详见表2。系统活性氮损失总量的不确定性为8.1%—8.8%,与Zhang等^[19]的研究结果(8.0%)非常接近。作物种植、畜禽养殖、水产养殖、居民消费和废物

管理子系统活性氮损失的不确定性分别为 10.9%—12.2%、14.8%—16.7%、23.6%—24.5%、16.5%—18.1% 和 48.1%—48.4%。损失至大气、地表水和地下水环境的活性氮的不确定性分别为 10.0%—10.8%、13.8%—16.6% 和 12.0%—15.4%。上述结果表明,废物管理子系统是不确定性最高的活性氮损失源,地表水环境是不确定性最高的活性氮损失汇。

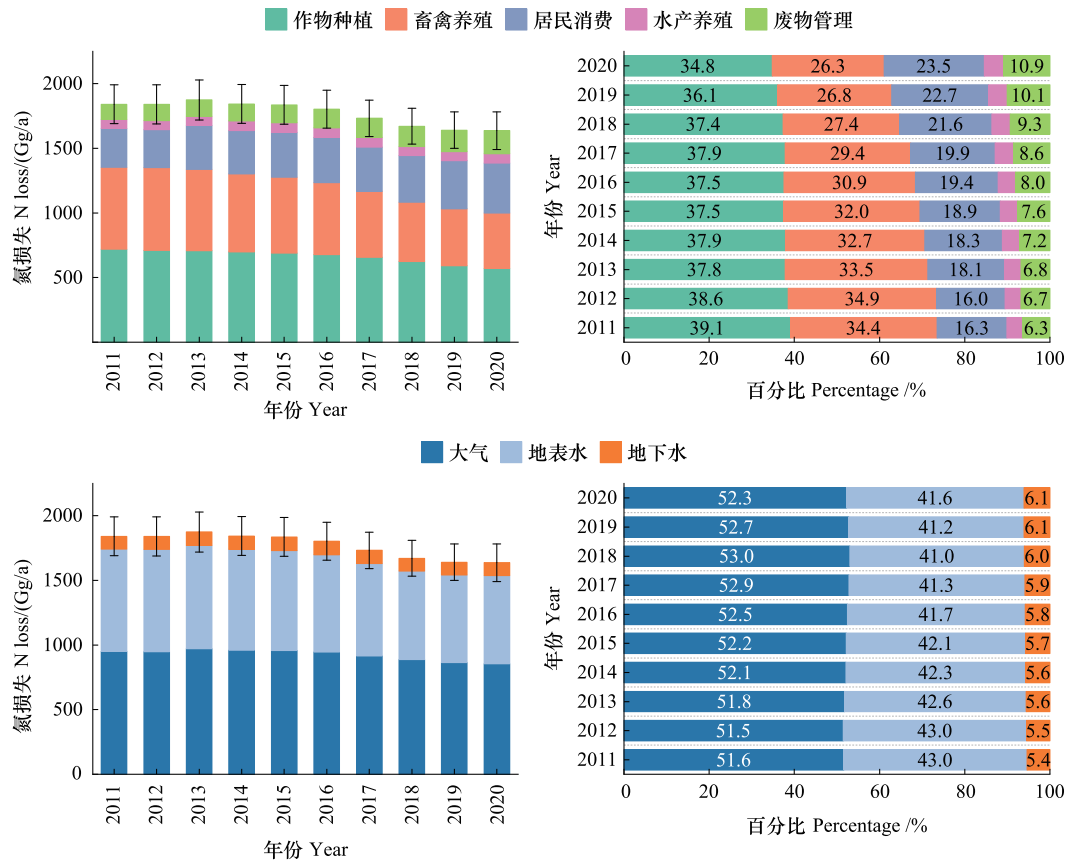


图3 长三角地区农业生产消费系统氮损失不确定性及源汇结构特征

Fig.3 Uncertainty and source-sink characteristics of N loss in agricultural production and consumption system in the Yangtze River Delta region

图中误差棒表示氮损失的不确定性区间

表2 2011—2020 年长三角地区农业生产消费系统活性氮损失不确定性

Table 2 Uncertainty of N loss in agricultural production and consumption system in the Yangtze River Delta region during 2011—2020

项目 Items	名称 Name	不确定性 Uncertainty/%									
		2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020
活性氮损失源 N loss sources	作物种植	12.2	12.1	12.0	11.9	11.8	11.0	11.0	11.0	11.0	10.9
	畜禽养殖	15.0	15.0	15.0	14.8	14.9	15.1	15.1	15.5	16.3	16.7
	居民消费	16.5	16.7	18.1	17.8	16.5	16.8	16.9	17.0	16.8	16.9
	水产养殖	23.6	23.8	23.9	24.1	24.4	24.5	24.5	24.3	24.3	24.2
	废物管理	48.4	48.4	48.2	48.2	48.2	48.1	48.2	48.1	48.1	48.2
活性氮损失汇 N loss sinks	大气损失	10.8	10.7	10.8	10.7	10.5	10.0	10.1	10.2	10.3	10.3
	地表水损失	13.8	14.1	14.1	14.1	14.2	14.6	14.8	15.3	16.1	16.6
	地下水损失	12.0	12.1	13.3	13.4	13.1	13.3	13.5	15.1	14.9	15.4
活性氮损失总量 Total N loss		8.2	8.2	8.2	8.2	8.1	8.1	8.1	8.4	8.6	8.8

2.2 氮损失不确定性的来源

农业生产消费系统输入数据引入的氮损失不确定性详见图 4。由人类活动水平数据引入的系统氮损失的不确定性为 1.2%—1.3%，而由氮流参数引入的系统氮损失的不确定性为 8.0%—8.8%。表明氮流参数引入的不确定性是系统氮损失不确定性的主要来源。

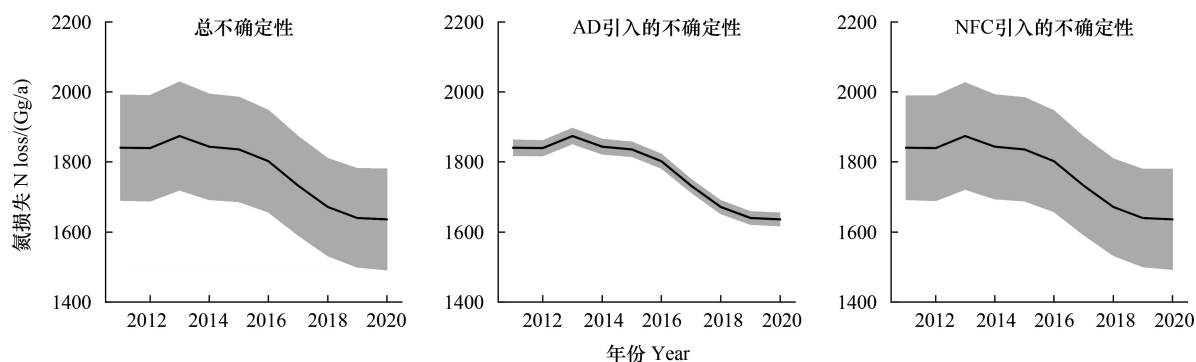


图 4 长三角地区农业生产消费系统输入数据引入的氮损失不确定性

Fig.4 Uncertainty of N loss introduced by input data in agricultural production and consumption system in the Yangtze River Delta region

AD: 人类活动水平数据; NFC: 氮流参数; 图中色带表示氮损失的不确定性区间

各子系统对氮损失不确定的贡献如图 5 所示。作物种植、畜禽养殖、水产养殖、居民消费和废物管理子系统对系统氮损失不确定性的贡献分别为 25.1%、27.4%、6.8%、18.1% 和 22.7%，损失至大气、地表水、地下水环境的活性氮对系统氮损失不确定性的贡献分别为 43.9%、50.0% 和 6.3%。上述结果表明，畜禽养殖子系统是对氮损失不确定性贡献最大的源，地表水环境是对氮损失不确定性贡献最大的汇。

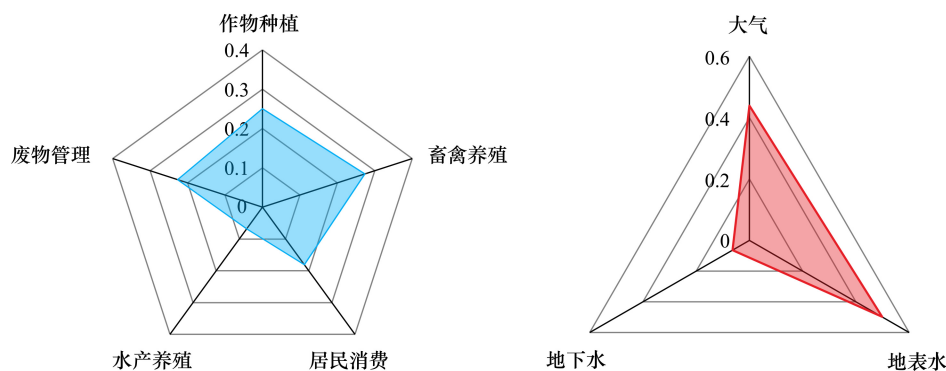


图 5 长三角地区农业生产与消费系统各子系统对氮损失不确定性的贡献

Fig.5 Contribution of subsystems of agricultural production and consumption system to the uncertainty of N loss in the Yangtze River Delta region

2.3 氮损失不确定性传播的影响因素

系统氮损失各组分的不确定性最终将传递至氮损失总量，影响估算结果的准确性。为进一步明确输入数据不确定性在模型中的传播机制，探究各氮损失组分的通量及其不确定性与各组分对氮损失总量不确定性的贡献之间的相关关系（图 6）。结果表明，各组分的氮损失通量与其对氮损失总量不确定性的贡献之间存在显著的线性正相关关系（ $R^2 = 0.75456, P < 0.0001$ ），即自身通量越大的氮损失组分，其对系统氮损失总量不确定性的贡献越大。各组分自身的不确定性与其对氮损失总量不确定性的贡献之间呈现显著的幂函数相关关系（ $R^2 = 0.00176, P < 0.0001$ ），即各组分对氮损失总不确定性的贡献随着其自身不确定性的增加而增大，但增加速度缓慢降低。

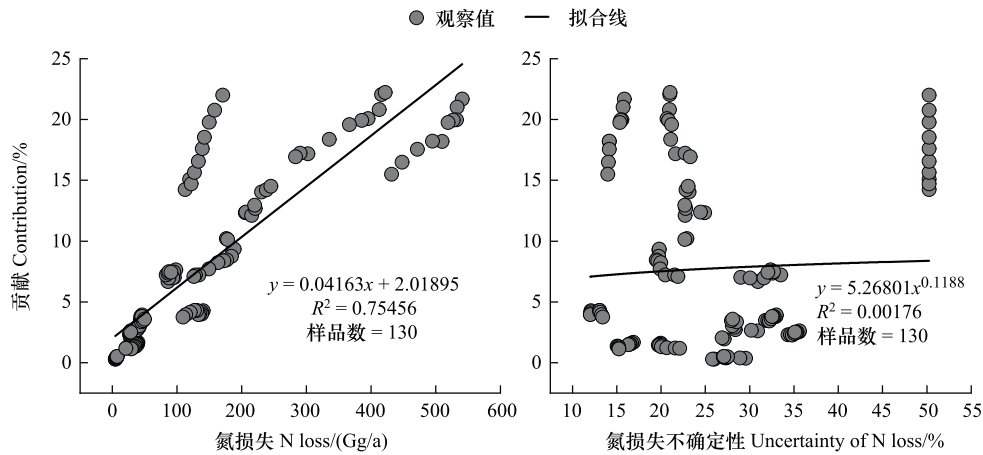


图 6 长三角地区农业生产消费系统氮损失不确定性传播的影响因素相关分析

Fig.6 Uncertainty propagation mechanism of N loss in agricultural production and consumption system in Yangtze River Delta region

基于多元线性回归,进一步考察各组分氮损失通量及其不确定性两个因素的影响大小。回归模型通过了显著性检验($P<0.001$),模型有效(表 3)。回归结果进一步证实(表 4),各组分氮损失通量及其不确定性两个因素均显著影响氮损失总量的不确定性($P<0.001$)。模型方差膨胀因子 $VIF<5$,表明模型无多重共线性问题。结果显示,氮损失组分通量的标准化回归系数大于氮损失组分不确定性,前者对氮损失总量不确定性的相对影响约是后者的 2.3 倍。

表 3 回归模型显著性检验结果

Table 3 The *F*-test of overall significance in regression

模型 Model	平方和 Sum of squares	自由度 Degree of freedom	均方 Mean square	<i>F</i>	显著性 <i>P</i> Significance <i>P</i>
回归 Regression	5650.422	2	2825.211	774.327	<0.001
残差 Residual	463.372	127	3.649	—	—
总计 Total	6113.795	129	—	—	—

表 4 回归模型系数表

Table 4 Coefficients of regression model

模型 Model	非标准化系数 Unstandardized coefficients		标准化系数 Standardized coefficients	<i>t</i>	显著性 <i>P</i> Significance <i>P</i>	共线性统计 Collinearity	
	<i>B</i>	标准误 Std. Error	Beta			容差 Tolerance	VIF
常量 Constant	-6.703	0.567	—	-11.829	< 0.001	—	—
氮损失组分通量 N loss flux	0.048	0.001	1.011	39.115	< 0.001	0.893	1.119
氮损失组分不确定性 Uncertainty of N loss	0.303	0.018	0.436	16.860	< 0.001	0.893	1.119

B:非标准化系数值;VIF:方差膨胀因子 variance inflation factor

3 讨论

3.1 系统氮损失源汇特征

研究结果显示,作物种植和畜禽养殖子系统是长三角地区农业生产消费系统活性氮损失最大的两个源,这主要与长三角地区农业生产结构有关。基于本研究数据,作物种植和畜禽养殖子系统的活性氮输入量

10 年均值分别为 3160.6 Gg/a 和 1016.6 Gg/a, 分别是水产养殖子系统氮输入量 (10 年均值 575.3 Gg/a) 的 5.5 倍和 1.8 倍。可以看出, 长三角地区作物种植和畜禽养殖的生产规模 (以 N 计) 远高于水产养殖。在各子系统活性氮利用效率差异不大的条件下 (27.1%—42.6%)^[50], 氮输入越高的子系统产生的氮损失越高。因此, 作物种植和畜禽养殖子系统的活性氮损失量最大。此外, 系统活性氮损失总量的下降趋势也主要是由于作物种植和畜禽养殖子系统。受作物播种面积下降^[51]、化肥使用量零增长行动^[52]以及畜禽禁限养政策^[53]等的影响, 长三角地区化肥施用量和畜禽养殖规模在 10 年间分别下降了 20.5% 和 47.2% (图 7), 导致上述两个子系统的活性氮损失分别下降了 109.6 Gg/a 和 59.9 Gg/a。同时, 受城市化进程驱动^[50], 居民消费和废物管理子系统活性氮损失分别增加了 68.95 Gg/a 和 3.1 Gg/a。因此, 作物种植和畜禽养殖子系统是系统活性氮损失总量下降的主导因素。这也可以解释研究期间作物种植和畜禽养殖子系统活性氮损失占比下降而居民消费和废物管理子系统活性氮损失占比上升的变化趋势。

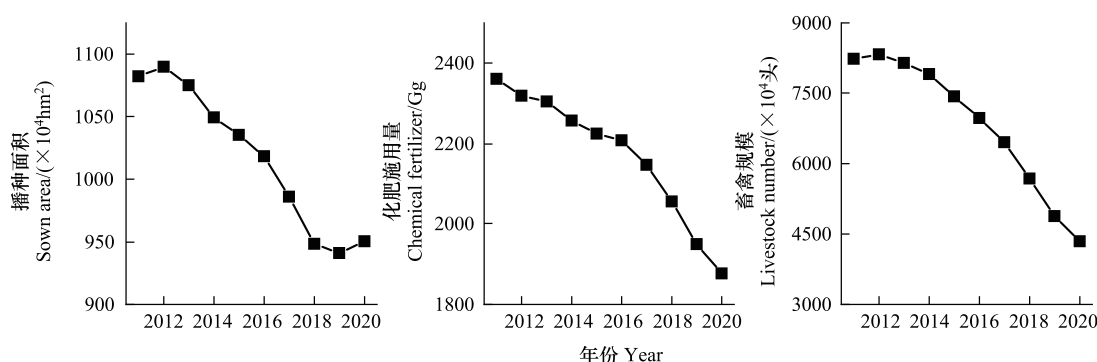


图 7 长三角地区作物种植和畜禽养殖规模变化情况

Fig.7 Temporal variation of crop planting and livestock breeding in the Yangtze River Delta region

图中数据来源于统计年鉴

大气环境是系统活性氮损失最主要的汇, 这主要是因为氨挥发排放量大。氨挥发是化肥、畜禽粪尿和居民排泄物的重要排放途径^[54—55]。以化肥为例, 有研究表明全球以氨挥发形式损失的活性氮占化肥施氮量的平均比例为 17.6%^[56]。考虑到中国农田化肥施用强度高且氮素利用效率较低的实际情况, 本研究采用 16% 的排放因子可能较实际情况偏保守而非高估。在此基础上, 氨挥发排放因子仍显著高于氮径流和氮淋洗 (表 2)。因此, 以氨挥发形式排放的活性氮的量高于排放至地表水环境 (氮径流) 和地下水环境 (氮淋洗) 的量, 成为活性氮损失最大的汇。这与 Wang 等^[57]的研究结果一致。

3.2 输入数据对不确定性的影响

物质流分析方法框架下, 人类活动水平数据的不确定性显著低于氮流参数已得到广泛认同^[12, 19, 28]。然而, 由于不确定性的传播过程比较复杂, 关于二者对模型最终结果不确定性的相对影响究竟多大却少有准确的认识。本研究通过分析活动水平数据和氮流参数对模型结果不确定性的影响, 量化地证实了人类活动水平数据对结果不确定性的影响显著低于氮流参数。此外, 废物管理子系统活性氮损失的不确定性最高也正是因为污水处理厂氨挥发和脱氮 (F39) 和出水氮排放 (F40) 的排放系数不确定性高。由于不同污水处理厂的污水处理工艺、运行管理水平、进水水质、排放标准等的差异, 出水水质中的总氮浓度差异较大^[58]。本研究将氨挥发排放因子和出水总氮浓度的不确定性设定为 50%, 导致废物管理子系统活性氮损失的不确定性最高。基于上述结果, 氮流参数的质量是降低输入数据导致的不确定性的关键。

本研究将人类活动水平数据的不确定性统一设定为 5%, 虽然这是大多数研究的常规做法, 但其合理性值得商榷。现实中, 统计口径的变化、行政区划的调整、统计项目的不完善和统计方法的差异等均会导致统计数据质量的波动。已有研究证实, 受统计方法和口径的影响, 常住人口^[59]、城镇化率^[60]等统计指标的人口普查数据与行政统计数据之间可能存在大于 5% 的偏离。因此, 将人类活动水平数据的不确定性统一设为 5%

可能会影响不确定性估计的准确性,最终给科学决策带来困难。现有研究中,已有部分学者针对不同人类活动水平数据采用了不同的不确定性。例如,Luo 等^[61]将水产品产量等统计数据的不确定性设定为 30%;Zhang 等^[19]为不同的人类活动水平数据设定了 5%—30%不等的 uncertainty。但总体而言,目前人类活动水平数据不确定性的设定并不统一,且尚未有科学完善的方法。未来需要对人类活动水平数据的不确定性进行深入研究,提出科学的方法合理确定其不确定性,提高不确定性分析的可靠性。

3.3 不确定性的传播机制

深入解析不确定性的传播机制对于降低氮损失核算结果的不确定性非常重要。本研究发现,系统活性氮损失各组分的通量和自身不确定性均会对系统活性氮损失总量的不确定性产生影响,且前者的影响显著高于后者。这是因为当某个活性氮损失组分通量较小时,其通量占比低,即使自身不确定性高,也难以对氮损失总量核算结果产生大的冲击。体现在不确定性上,即该组分对系统活性氮损失总量不确定性的贡献很小。因此,氮损失各组分通量大小在不确定性传播过程中起到更大的作用。当组分通量大小差异不大时(小于 2.3 倍),组分自身的不确定性才会产生明显影响。这可以解释畜禽养殖子系统和地表水环境损失对系统活性氮损失不确定性贡献最大的原因。虽然二者均不是通量最大的组分,但由于其通量与活性氮损失的最大组分间差异不大,且自身不确定性高于最大组分,使其对氮损失总体不确定性的贡献最大。

3.4 对降低不确定性的启示

氮流不确定性与人类活动水平数据的质量和氮流参数的可靠性密切相关。针对不同的人类活动水平数据,鉴于人口等数据已被证实可能存在超过 5%的不确定性,采用差异化的不确定性更为合理。而如何确定不同类型人类活动水平数据的不确定性尚缺乏科学的方法支撑,未来需要开展进一步研究。当前可在已证实其不确定性可能超过 5%的数据类型中采用差异化的不确定性。氮流参数对输入数据的不确定贡献更大,需要重点控制。小尺度研究时可辅以现场实际调查^[62]来约束不确定性;大空间尺度和长时间序列的研究,可通过开发科学的参数尺度转化方法,应用卫星遥感数据和模型模拟等多源数据强化交叉验证^[63—64]等途径来约束不确定性。此外,氮流参数受众多因素的影响,通过机器学习^[20]等新技术建立更为准确的基于影响因素的参数预测方法,也有助于提高氮流参数的质量和精细程度,降低不确定性。

在降低输入数据不确定性的基础上,需同时关注不确定性的传播过程,重点降低对系统氮损失影响大的氮损失组分的不确定性。例如本研究中,畜禽养殖和地表水环境损失对系统氮损失的不确定性贡献最大。因此,二者是影响系统氮损失不确定性的重点过程,需要优先强化控制。基于此,因现实条件受限无法提高全部输入数据质量的情况下,可通过不确定性传播过程分析,识别出影响系统氮损失不确定性的重点过程,然后通过现场实际调查、多源数据交叉验证、应用新技术等手段优先改善重点过程输入数据的质量,以实现在有限条件下最大程度降低研究结果的整体不确定性。

需注意的是,目前不确定性的量化仅针对输入数据引入的不确定性。对于模型设计和结构不完善引入的不确定性,尚无法准确评估,也是研究的难点。总体而言,降低模型结构不完善引入的不确定性,一方面需加强基础研究,深化对强烈人类活动干扰下氮素生物地球化学循环过程的科学认识;另一方面,需要开发更为科学的模型工具,为实现更精细化的氮流模拟奠定基础。

4 结论

(1)长三角地区农业生产消费系统活性氮损失总量呈先上升后下降趋势。作物种植和畜禽养殖子系统是活性氮损失最大的两个源。受农业生产规模下降的影响,二者占比均呈下降趋势。而居民消费、废物管理子系统活性氮损失占比均呈上升趋势。大气环境是系统活性氮损失最主要的汇,主要原因是氨挥发排放因子较高。

(2)长三角地区农业生产消费系统活性氮损失总量的不确定性为 8.1%—8.8%,与其他研究结果接近。其中,废物管理子系统和地表水环境活性氮损失分别为不确定性最高的源和汇,主要是因为氮排放系数不确

定性高。此外,氮流参数是不确定性的主要来源,畜禽养殖子系统和地表水环境损失对系统活性氮损失总量不确定性的贡献最大。

(3) 各组分氮损失通量及其不确定性均与其对氮损失总量不确定性的贡献之间存在显著正相关关系,且前者的影响显著高于后者。因此,系统氮损失不确定性的传播过程主要受各组分氮损失通量支配。

(4) 提高氮流参数质量、强化重点过程控制和深化氮循环科学认识对于降低农业生产消费系统氮损失的不确定性具有重要意义。

参考文献(References):

- [1] Fowler D, Coyle M, Skiba U, Sutton M A, Cape J N, Reis S, Sheppard L J, Jenkins A, Grizzetti B, Galloway J N, Vitousek P, Leach A, Bouwman A F, Butterbach-Bahl K, Dentener F, Stevenson D, Amann M, Voss M. The global nitrogen cycle in the twenty-first century. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences*, 2013, 368(1621): 20130164.
- [2] Gruber N, Galloway J N. An earth-system perspective of the global nitrogen cycle. *Nature*, 2008, 451(7176): 293-296.
- [3] Erisman J W, Galloway J N, Seitzinger S, Bleeker A, Dise N B, Petrescu A, Leach A M, de Vries W. Consequences of human modification of the global nitrogen cycle. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences*, 2013, 368(1621): 20130116.
- [4] Galloway J N, Leach A M, Bleeker A, Erisman J W. A chronology of human understanding of the nitrogen cycle. *Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences*, 2013, 368(1621): 20130120.
- [5] Galloway J N, Winiwarter W, Leip A, Leach A M, Bleeker A, Erisman J W. Nitrogen footprints: past, present and future. *Environmental Research Letters*, 2014, 9(11): 115003.
- [6] Cui S H, Shi Y L, Malik A, Lenzen M, Gao B, Huang W. A hybrid method for quantifying China's nitrogen footprint during urbanisation from 1990 to 2009. *Environment International*, 2016, 97: 137-145.
- [7] Gu B J, Leach A M, Ma L, Galloway J N, Chang S X, Ge Y, Chang J. Nitrogen footprint in China: food, energy, and nonfood goods. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(16): 9217-9224.
- [8] Springmann M, Clark M, Mason-D'Croz D, Wiebe K, Bodirsky B L, Lassaletta L, de Vries W, Vermeulen S J, Herrero M, Carlson K M, Jonell M, Troell M, DeClerck F, Gordon L J, Zurayk R, Scarborough P, Rayner M, Loken B, Fanzo J, Godfray H J, Tilman D, Rockström J, Willett W. Options for keeping the food system within environmental limits. *Nature*, 2018, 562(7728): 519-525.
- [9] Ren C C, Zhang X M, Reis S, Wang S T, Jin J X, Xu J M, Gu B J. Climate change unequally affects nitrogen use and losses in global croplands. *Nature Food*, 2023, 4(4): 294-304.
- [10] Wang F F, Wang Y H, Cai Z C, Chen X. Environmental losses and driving forces of nitrogen flow in two agricultural towns of Hebei province during 1997–2017. *Environmental Pollution*, 2020, 264: 114636.
- [11] 段扬, 吴文俊, 蒋洪强, 李勃, 杨勇. 长江经济带农田氮素平衡特征与污染风险评估分析. *生态环境学报*, 2020, 29(7): 1344-1351.
- [12] Liao C S, Xia Y L, Wu D M. Nitrogen flows associated with food production and consumption system of Shanghai. *Environmental Pollution*, 2021, 279: 116906.
- [13] Xu R H, Cai Y P, Wang X, Li C H, Liu Q, Yang Z F. Agricultural nitrogen flow in a reservoir watershed and its implications for water pollution mitigation. *Journal of Cleaner Production*, 2020, 267: 122034.
- [14] Dong Y, Xu L Y. Anthropogenic intensification of urban reactive nitrogen inputs and potential to mitigate nitrogen pollution in Guangzhou, China. *Resources, Conservation and Recycling*, 2020, 159: 104847.
- [15] 方利江, 杨一群, 叶观琼. 浙江省 2008—2018 年人为源氨排放清单及分布特征. *环境科学*, 2022, 43(10): 4380-4391.
- [16] 翟元晓, 崔胜辉, 高兵, 张千湖, 黄葳. 黄河流域农业生产活性氮排放的时空特征研究. *环境科学学报*, 2021, 41(7): 2886-2895.
- [17] Cai Y P, Xu W, Ji D B, Yang Z F, Fu Q. Material flow analysis of the nitrogen loading to surface water of Miyun reservoir watershed under uncertainty. *Journal of Cleaner Production*, 2022, 353: 131574.
- [18] 冼超凡, 潘雪甄, 甄泉, 韩宝龙, 姜亚琼, 周伟奇, 欧阳志云. 城市生态系统污染氮足迹与灰水足迹综合评价. *环境科学学报*, 2019, 39(3): 985-995.
- [19] Zhang X M, Ren C C, Gu B J, Chen D L. Uncertainty of nitrogen budget in China. *Environmental Pollution*, 2021, 286: 117216.
- [20] 张育福, 潘哲祺, 陈丁江. 基于机器学习的长江流域农田氮径流流失负荷估算. *环境科学*, 2023, 44(7): 3913-3922.
- [21] 纪守领, 李进锋, 杜天宇, 李博士. 机器学习模型可解释性方法、应用与安全研究综述. *计算机研究与发展*, 2019, 56(10): 2071-2096.
- [22] 董莉, 邹天森, 徐睿, 张泽乾, 杨鹤平. 基于物质流模型的长三角城市群食物生产与消费系统氮素流动格局及影响因素. *环境工程技术学报*, 2023, 13(4): 1614-1624.

- [23] 赵永强, 田冬, 刘伟. 中国农村居民生活氮素流动特征. 生态学报, 2023, 43(12): 5162-5172.
- [24] 杨益, 姬亚芹, 高玉宗, 林孜, 林宇, 马妍. 西宁市农牧源氨排放清单及其分布特征. 环境科学, 2022, 43(4): 1844-1852.
- [25] Jamroz B F, Williams D F. Consistency in Monte Carlo uncertainty analyses. *Metrologia*, 2020, 57(6): 10.1088/1681-10.1088/7575/aba5aa.
- [26] Zhu X, Shen J L, Li Y, Liu X J, Xu W, Zhou F, Wang J, Reis S, Wu J S. Nitrogen emission and deposition budget in an agricultural catchment in subtropical central China. *Environmental Pollution*, 2021, 289: 117870.
- [27] 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.
- [28] Gao B, Huang W, Wang L, Huang Y F, Ding S P, Cui S H. Driving forces of nitrogen flows and nitrogen use efficiency of food systems in seven Chinese cities, 1990 to 2015. *Science of the Total Environment*, 2019, 676: 144-154.
- [29] 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.
- [30] 沈晓梅, 孔千慧, 于欣鑫, 戴梦圆. 长三角地区农业虚拟水流动格局研究——基于水资源拓展的多地区投入产出分析. 中国农村水利水电, 2023, (9): 17-25, 34.
- [31] Yang Y J, Zhang M Y, Li Q X, Chen B, Gao Z Q, Ning G C, Liu C, Li Y B, Luo M. Modulations of surface thermal environment and agricultural activity on intraseasonal variations of summer diurnal temperature range in the Yangtze River Delta of China. *Science of the Total Environment*, 2020, 736: 139445.
- [32] Chen X J, Stokol M, Kroeze C, Ma L, Shen Z Y, Wu J C, Chen X P, Shi X J. Seasonality in river export of nitrogen: a modelling approach for the Yangtze River. *Science of the Total Environment*, 2019, 671: 1282-1292.
- [33] 吴舒祺, 么嘉祺, 杨冉, 张鐸文, 赵文吉. 长三角城市群 PM_{2.5} 时空变化和影响因素分析. 环境科学, 2023, 44(10): 5325-5334.
- [34] Jiang S Y, Yuan Z W. Phosphorus flow patterns in the Chaohu watershed from 1978 to 2012. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(24): 13973-13982.
- [35] Yu G R, Jia Y L, He N P, Zhu J X, Chen Z, Wang Q F, Piao S L, Liu X J, He H L, Guo X B, Wen Z, Li P, Ding G A, Goulding K. Stabilization of atmospheric nitrogen deposition in China over the past decade. *Nature Geoscience*, 2019, 12(6): 424-429.
- [36] 董越. 典型城市氮物质流模拟及生态环境影响潜力研究[D]. 北京: 北京师范大学, 2020.
- [37] 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.
- [38] Gao B, Huang Y F, Huang W, Shi Y L, Bai X M, Cui S H. Driving forces and impacts of food system nitrogen flows in China, 1990 to 2012. *Science of the Total Environment*, 2018, 610/611: 430-441.
- [39] Chen F, Hou L J, Liu M, Zheng Y L, Yin G Y, Lin X B, Li X F, Zong H B, Deng F Y, Gao J, Jiang X F. Net anthropogenic nitrogen inputs (NANI) into the Yangtze River basin and the relationship with riverine nitrogen export. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2016, 121(2): 451-465.
- [40] Zhu Z L, Wen Q X, Freney J R. Nitrogen in soils of China. Netherlands: Springer Dordrecht, 1997.
- [41] Walker J T, Bell M D, Schwede D, Cole A, Beachley G, Lear G, Wu Z Y. Aspects of uncertainty in total reactive nitrogen deposition estimates for North American critical load applications. *Science of the Total Environment*, 2019, 690: 1005-1018.
- [42] 生态环境部.《排放源统计调查产排污核算方法和系数手册》. (2021-06-11) [2023-12-01]. https://www.mee.gov.cn/xxgk2018/xxgk/xxgk01/202106/t20210618_839512.html.
- [43] Chen X P, Cui Z L, Fan M S, Vitousek P, Zhao M, Ma W Q, Wang Z L, Zhang W J, Yan X Y, Yang J C, Deng X P, Gao Q, Zhang Q, Guo S W, Ren J, Li S Q, Ye Y L, Wang Z H, Huang J L, Tang Q Y, Sun Y X, Peng X L, Zhang J W, He M R, Zhu Y J, Xue J Q, Wang G L, Wu L, An N, Wu L Q, Ma L, Zhang W F, Zhang F S. Producing more grain with lower environmental costs. *Nature*, 2014, 514(7523): 486-489.
- [44] Fu H, Luo Z B, Hu S Y. A temporal-spatial analysis and future trends of ammonia emissions in China. *Science of the Total Environment*, 2020, 731: 138897.
- [45] 蔡祖聪, 高兵, 逆超普, 谷保静, 颜晓元, 崔胜辉, 李彦旻, 马林, 魏志标. 中国氮素流动分析方法指南. 北京: 科学出版社, 2018.
- [46] Zhang X M, Wu Y Y, Liu X J, Reis S, Jin J X, Dragosits U, Van Damme M, Clarisse L, Whitburn S, Coheur P F, Gu B J. Ammonia emissions may be substantially underestimated in China. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(21): 12089-12096.
- [47] IPCC. Quantifying uncertainties in practice//Good practice guidance and uncertainty management in national greenhouse gas inventories. Japan: The Institute for Global Environmental Strategies, 2000.
- [48] 张睿, 师玮一, 周靖宣, 方贺, 王宇白, 徐深, 康娟, 徐栋. 2001—2019 年中国自然保护区生态环境质量时空变化特征及其驱动力. 生态学报, 2023, 43(5): 2101-2113.
- [49] 雷茜, 胡忠文, 王敬哲, 张英慧, 邬国锋. 1985—2015 年中国不同生态系统 NDVI 时空变化及其对气候因子的响应. 生态学报, 2023, 43(15): 6378-6391.

- [50] Zhang Z Q, Deng C N, Dong L, Zou T S, Yang Q P, Wu J, Li H S. Nitrogen flow in the food production and consumption system within the Yangtze River Delta city cluster: Influences of cropland and urbanization. *Science of the Total Environment*, 2022, 824: 153861.
- [51] 国家统计局. 中国统计年鉴 2021. 北京: 中国统计出版社, 2021.
- [52] 张田野, 孙炜琳, 王瑞波. 化肥零增长行动对农业污染的减量贡献分析——基于 GM(1,1) 模型及脱钩理论. *长江流域资源与环境*, 2020, 29(1): 265-274.
- [53] 熊蓓, 王瑞梅. 禁养区政策下的畜禽养殖结构调整及环境效应. *中国农业大学学报*, 2022, 27(11): 291-304.
- [54] Zhang L, Chen Y F, Zhao Y H, Henze D K, Zhu L Y, Song Y, Paulot F, Liu X J, Pan Y P, Lin Y, Huang B X. Agricultural ammonia emissions in China: reconciling bottom-up and top-down estimates. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18(1): 339-355.
- [55] 赵睿东, 于兴娜, 侯新红, 沈丽. 浙江省人为源氨排放清单建立及分布特征. *环境科学*, 2020, 41(9): 3976-3984.
- [56] Fu X, Wang S X, Ran L M, Pleim J E, Cooter E, Bash J O, Benson V, Hao J M. Estimating NH₃ emissions from agricultural fertilizer application in China using the bi-directional CMAQ model coupled to an agro-ecosystem model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(12): 6637-6649.
- [57] 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.
- [58] 孙光霖, 王若琛, 杨慎华, 张亮. 基于厌氧氨氧化的低碳氮比城市污水同步脱氮除磷工艺研究进展. *水处理技术*, 2023, 49(8): 13-18, 24.
- [59] 陈友华, 孙永健. 人口普查数据与行政统计数据偏离现象研究——以中国四大城市为例. *人口与经济*, 2022, (3): 86-96.
- [60] 潘志龙, 王志宝, 蔚丽杰. 基于中国省域数据人口城镇化率的修正. *统计与决策*, 2024, 40(1): 46-51.
- [61] Luo Z B, Hu S Y, Chen D J. The trends of aquacultural nitrogen budget and its environmental implications in China. *Scientific Reports*, 2018, 8(1): 10877.
- [62] 郭晓明, 金超, 孟红旗, 肖春艳, 张春霞, 赵同谦. 丹江口水库浙川库区大气氮湿沉降特征. *生态学报*, 2021, 41(10): 3901-3909.
- [63] 姜磊, 何世雄, 崔远政. 基于空间计量模型的氮氧化物排放驱动因素分析: 基于卫星观测数据. *地理科学*, 2020, 40(3): 364-373.
- [64] 於清源, 银燕, 张昕. 基于地基 MAX-DOAS 和 TROPOMI 卫星遥感的南京地区大气 NO₂ 污染特征. *中国环境科学*, 2023, 43(6): 2722-2733.