生态环境知识网
Eco-Environmental Knowledge Web

环境科学
ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

基于碳减排目标与排放标准约束情景的火电大气污染物减排潜力

李辉，孙雪丽，庞博，朱法华，王圣，晏培

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社

2021年12月
第42卷 第12期
Vol.42 No.12

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第 42 卷 第 12 期
2021 年 12 月 15 日

目 次(卷终)

基于碳减排目标与排放标准约束情景的火电大气污染物减排潜力 …… 李辉, 孙雪丽, 庞博, 朱法华, 王圣, 晏培(5563)
汽修行业挥发性有机物排放与控制现状及对策 …… 王海林, 杨涛, 聂磊, 方莉, 张中申, 郝郑平(5574)
西宁市生物质燃烧源大气污染物排放清单 …… 高玉宗, 姬亚芹, 林孜, 林宇, 杨益(5585)
新冠疫情期间四川盆地空气质量及影响因素分析 …… 陈军辉, 冯小琼, 李媛, 王书肖(5594)
基于 iLME + Geoi-RF 模型的四川省 $PM_{2.5}$ 浓度估算 …… 吴宇宏, 杜宁, 王莉, 蔡宏, 周彬, 吴磊, 敖逍(5602)
《大气污染防治行动计划》后期成都大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性无机离子特征 …… 李佳琪, 张军科, 董贵明, 邓嘉琳, 刘子锐, 王跃思(5616)
洛阳市大气细颗粒物化学组分特征及溯源分析 …… 孙佳宾, 董喆, 李利萍, 刘洋, 陈红阳, 张瑞芹(5624)
北京市黑碳气溶胶浓度特征及其主要影响因素 …… 曹阳, 安欣欣, 刘保献, 景宽, 王琴, 罗霄旭(5633)
天津市郊夏季 VOCs 化学特征及其时间精细化的来源解析 …… 王艺璇, 刘保双, 吴建会, 张裕芬, 冯银厂(5644)
沈阳市挥发性有机物污染特征及反应活性 …… 杜寒冰, 王男, 任万辉, 苏枞枞, 胡建林, 于兴娜(5656)
典型化工集中区环境空气 SVOCs 污染特征及来源解析 …… 葛祥, 吴健, 高松, 冯加良, 陈俊伟, 张舒惟, 焦正(5663)
南京毒性挥发性有机化合物夏冬季源解析及健康风险评估 …… 张子金, 林煜棋, 张煜娴, 曹梦瑶, 章炎麟(5673)
基于排放清单和实地测试的工业 VOCs 排放特征:以郑州市高新区为例 …… 任何, 卢轩, 刘洋, 尹沙沙, 胡鹤霄(5687)
我国水性建筑涂料 VOCs 排放特征及其环境影响 …… 高美平, 王海林, 刘文文, 聂磊, 李国昊, 安小拴(5698)
VOCs 源强不确定性对臭氧生成及污染防治影响的模拟分析 …… 王峰, 汪健伟, 杨宁, 翟菁, 侯灿(5713)
山东省 O_3 时空分布及影响因素分析 …… 张淼, 丁椿, 李彦, 王桂霞, 林晶晶, 孟赫, 许杨(5723)
2020 年成都市典型臭氧污染过程特征及敏感性 …… 钱骏, 徐晨曦, 陈军辉, 姜涛, 韩丽, 王成辉, 李英杰, 王波, 刘政(5736)
基于高分辨率在线测量的轻型汽油车含氧挥发性有机物排放模型构建 …… 郝钰琦, 袁自冰, 王梦雷, 沙青娥, 杜新悦, 刘元向, 刘学辉, 段乐君, 袁斌, 郑君瑜, 邵敏, 闫宇(5747)
三重属性的承载力约束下中国水资源利用效率动态演进特征分析 …… 张凯, 吴凤平, 成长春(5757)
长江流域总氮排放量预测 …… 丁肇慰, 郑华(5768)
1980 ~ 2015 年长江流域净人为氮输入与河流氮输出动态特征 …… 姚梦雅, 胡敏鹏, 陈丁江(5777)
黄河水环境特征与氮磷负荷时空分布 …… 韩谞, 潘保柱, 陈越, 刘亚平, 侯易明(5786)
基于氮氧同位素解析不同降雨条件下硝酸盐污染源 …… 邢子康, 余钟波, 衣鹏, 钱睿智, 王嘉毅(5796)
水源水库真核微生物种群结构季相演替特征 …… 张海涵, 黄鑫, 黄廷林, 刘凯文, 马曼丽, 刘祥, 苗雨甜, 宗容容(5804)
达里湖表层水体浮游细菌群落结构的夏-冬季节差异 …… 李文宝, 郭鑫, 张博尧, 杜蕾, 田雅楠(5814)
尾水排放对受纳水体底栖生物膜细菌群落和水溶性有机质的影响机制 …… 王钰涛, 范晨阳, 朱金鑫, 李轶, 王龙飞(5826)
武汉典型饮用水水源中典型 POPs 污染特征与健康风险评估 …… 张坤锋, 付青, 涂响, 昌盛, 樊月婷, 孙兴滨, 王山军(5836)
上海沙田湖养殖区及周边水体中氟喹诺酮类抗性基因的分布特征及其与环境因子关系 …… 徐慕, 李世豪, 马巾, 王丽卿, 张玮(5848)
曝气人工湿地脱除低污染水中氮的影响因素 …… 李琳琳, 李荣涛, 孔维静, 杨萍果, 杜志超, 毕斌, 卢少勇(5857)
水平潜流人工湿地对畜禽养殖废水中特征污染物的去除 …… 赵伟, 范增增, 杨新萍(5865)
木屑生物炭对填料土的氮磷吸附及雨水持留改良影响 …… 孟依柯, 王媛, 汪传跃, 王报(5876)
黑臭河道中聚乙烯醇/海藻酸钠固定微米沸石粉去除氨氮 …… 魏超, 陈涛, 江桥, 王姝, 邱伟建, 成小英(5884)
玉米秸秆生物炭对灰钙土吸附金霉素的影响 …… 南志江, 蒋煜峰, 毛欢欢, 梁新茹, 邓雪儒(5896)
饮用水砂滤池中微生物对微量污染物的降解潜力与途径 …… 周洁, 王东麟, 林慧, 柏耀辉(5905)
污水分析方法监测城市毒品滥用长期趋势 …… 曹禹, 董小棠, 邵雪婷, 刘琳, 王德高(5912)
阿奇霉素和铜对活性污泥古菌群落和 ARGs 的胁迫影响及后效应 …… 高玉玺, 李星, 赵君如, 张忠兴, 樊晓燕(5921)
典型冶炼行业场地土壤重金属空间分布特征及来源解析 …… 李强, 曹莹, 何连生, 王耀锋, 龚成, 何书涵(5930)
我国焦化场地多环芳烃和重金属分布情况及生态风险评价 …… 王耀锋, 何连生, 姜登岭, 曹莹, 李强, 官健(5938)
浙江省香榧主产区土壤重金属空间异质性及其生态风险 …… 王敏, 董佳琦, 白龙龙, 张勇, 蒋仲龙, 姜霓雯, 吴家森, 张璐瑶, 方嘉, 傅伟军(5949)
北方农田镉污染土壤玉米生产阈值及产区划分初探 …… 管伟豆, 郭堤, 王萍, 张增强, 李荣华(5958)
典型铅锌矿区耕地土壤团聚体重金属含量与农作物含量相关性及其风险评价 …… 强瑀, 李英菊, 罗谦, 陈美凤, 李海燕, 黄先飞, 秦樊鑫(5967)
雄安新区企业周边农田土壤-作物系统重金属污染风险及累积效应 …… 周亚龙, 王乔林, 王成文, 刘飞, 宋云涛, 郭志娟, 杨志斌(5977)
铜仁土壤-水稻重金属积累效应与安全种植区划 …… 朱亮亮, 吴勇, 周浪, 唐乐斌, 宋波(5988)
干湿交替对铈锰改性生物炭固定红壤 As 的影响 …… 黄晓雅, 李莲芳, 朱昌雄, 黄金丽, 吴翠霞, 叶婧(5997)
铵态氮肥和腐殖酸协同促进孔雀草对土壤中 Cd 的去除 …… 王冰清, 阳琴, 李虹颖, 熊启中, 徐刚, 孙瑞波, 田达, 李军利, 郜红建, 叶新新(6006)
稻田灌溉河流 CH_4 和 N_2O 排放特征及影响因素 …… 吴双, 杨蔚桐, 盛扬悦, 方贤滔, 张天睿, 胡靖, 刘树伟, 邹建文(6014)
节水灌溉和控释肥施用耦合措施对单季稻田 CH_4 和 N_2O 排放的影响 …… 王永明, 徐永记, 纪洋, 冯彦房(6025)
有机无机配施下西北旱区麦田土壤 N_2O 的排放特征及微生物特性 …… 王楷, 史雷, 马龙, 王书停, 张然, 郑伟, 李紫燕, 翟丙年(6038)
不同秸秆还田方式对旱地红壤细菌群落、有机碳矿化及玉米产量的影响 …… 孔培君, 郑洁, 栾璐, 陈紫云, 薛敬荣, 孙波, 蒋瑀霁(6047)
氮磷添加对盐渍化草地土壤微生物特征的影响 …… 杨建强, 刁华杰, 胡姝娅, 陈晓鹏, 王常慧(6058)
化肥和有机肥配施生物炭对紫色土壤养分及磷赋存形态的影响 … 向书江, 余泺, 熊子怡, 罗东海, 王鍌燕, 邓正昕, 王子芳, 高明(6067)
浒苔生物炭与木醋液复配改良碱化土壤效果及提高油葵产量 …… 王正, 孙兆军, Sameh El-Sawy, 王珍, 何俊, 韩磊, 邹本涛(6078)
《环境科学》第 42 卷(2021 年)总目录 …… (6091)
《环境科学》征订启事(5593) 《环境科学》征稿简则(5623) 信息(5643, 5835, 5883)

Eco-Environmental Knowledge Web
环 境 科 学
Environmental Science
第42卷第12期 2021年12月
Vol.42, No.12 Dec., 2021

1980～2015年长江流域净人为氮输入与河流氮输出动态特征

姚梦雅, 胡敏鹏, 陈丁江*
(浙江大学环境与资源学院, 杭州 310058)

摘要: 为推进长江氮污染的精准防治,分析了1980～2015年的净人为氮输入量(net anthropogenic nitrogen inputs, NANI)和大通站河流可溶性无机氮(DIN)输出通量的年际动态变化特征,构建了定量描述两者之间动态响应关系的多元回归模型,识别了河流DIN来源组成. 结果表明, 1980～2015年期间,长江流域NANI(以N计)从1980年的4 166 kg·(km^2·a)$^{-1}$持续增加至2015年的8 571 kg·(km^2·a)$^{-1}$,人口密度和畜禽养殖密度增加是NANI快速增加的主要原因. 化肥氮和净食物/饲料氮输入是NANI的主要来源, 69%的NANI进入农林地($NANI_N$), 31%的NANI进入人居地($NANI_P$). 长江DIN输出通量(以N计)由1980年的455 kg·(km^2·a)$^{-1}$持续增加到了2015年的1 811 kg·(km^2·a)$^{-1}$. 长江DIN输出通量的时间变化不仅与NANI及其组分密切相关,而且受到遗留氮库和建坝库容的影响. 基于$NANI_N$、$NANI_P$和建库容量的多元非线性回归模型能解释长江DIN输出通量92%的时间变异性. 该模型估算结果显示当年NANI、遗留氮库和自然背景源对长江DIN输出通量的36 a平均贡献率分别为58%、36%和6%. 因此,加强NANI和遗留氮协同管理是有效控制长江氮污染的关键.

关键词:长江流域; 人为氮输入; 河流氮输出; 源解析; 模型
中图分类号: X522 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2021)12-5777-09 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.202104259

Dynamic of Net Anthropogenic Nitrogen Inputs and Riverine Nitrogen Export in the Yangtze River Basin in 1980-2015

YAO Meng-ya, HU Min-peng, CHEN Ding-jiang*
(College of Environmental and Resource Sciences, Zhejiang University, Hangzhou 310058, China)

Abstract: To advance accurate controls of riverine nitrogen pollution in the Yangtze River basin (YRB), historical trends of net anthropogenic nitrogen inputs (NANI) and riverine dissolved inorganic nitrogen (DIN) export at Datong station and their dynamic relationship were addressed to develop a multiple regression model for predicting riverine DIN export and its source. Results showed that NANI in the YRB increased continuously from 4 166 kg·(km^2·a)$^{-1}$ in 1980 to 8 571 kg·(km^2·a)$^{-1}$ in 2015. Increasing population density and livestock density are major drivers for the rapid increase of NANI. Chemical fertilizer and net food/feed input were the main sources of NANI, with 69% of NANI entering into agricultural/forest lands ($NANI_N$) and 31% of NANI entering into residential lands ($NANI_P$). Riverine DIN export increased continuously from 455 kg·(km^2·a)$^{-1}$ in 1980 to 1 811 kg·(km^2·a)$^{-1}$ in 2015. Riverine DIN export was not only closely related to NANI, $NANI_N$, and $NANI_P$, but was also influenced by watershed legacy nitrogen sources and dam storage capacity. A multiple non-linear regression model incorporating $NANI_N$, $NANI_P$, and dam storage capacity could explain 92% of temporal variability in riverine DIN flux. This multiple regression model estimated that the current year's NANI, legacy nitrogen source, and natural background source contribute to 58%, 36%, and 6% of annual riverine DIN flux on a 36-year average, respectively. Therefore, enhancing collaborative management of NANI and legacy nitrogen is necessary to efficiently control nitrogen pollution in the Yangtze River.

Key words: Yangtze River basin; net anthropogenic nitrogen inputs; riverine nitrogen export; source identification; model

长江是亚洲第一、世界第三长河,流域面积约占我国国土面积的1/5,维护长江水质安全意义重大[1]. 随着人类活动的加剧,长江水体氮磷污染形势日趋严峻, 水体富营养化、下游河口及邻近海域藻类暴发等问题频发[2]. 2000～2010年,由于长江氮污染负荷逐年增加,下游长江口及其邻近海域的赤潮暴发次数高达500余次,成为全球最主要的"死氧区"之一[3]. 因此,有效控制氮污染对保障长江水资源可持续利用及下游水域生态安全至关重要.

定量识别长江氮输出通量演化趋势及来源组成是实现氮污染控制的关键科学基础. 目前,对大型河流水系氮输出通量模拟及来源识别主要依赖模型模拟方法. 2006年以来,国内外学者已对长江氮污染来源定量解析开展了较为广泛地研究. 有学者应用或改进已有的模型, 如Global-NEWS、MARINA、IMAGE-GNM和SIRPAT等[2,4～8],识别了长江氮输出通量及点源污染和非点源污染贡献. 也有一些学者基于长江流域的水质、污染源及相关报道数据,发展了集总式模型ENPS-LSB、收支平衡模型和多元统计模型[9～11],解析了长江氮污染的来源组成及动态趋势. 然而,已有模型研究对长江氮污染的源解析结果之间存在巨大差异,即不同模型研究得到的非点

收稿日期: 2021-04-24; **修订日期**: 2021-05-18
基金项目: 国家自然科学基金项目(41877465); 浙江省杰出青年基金项目(LR19D010002); 国家重点研究开发计划项目(2017YFD0800101)
作者简介: 姚梦雅(1995～),女,硕士研究生,主要研究方向为流域非点源污染控制, E-mail: 21814152@zju.edu.cn
* 通信作者,E-mail:chendj@zju.edu.cn

源污染贡献为 35% ~ 99%,意味着存在较大的不确定性. 造成以上结果的主要原因之一是已有的模型应用研究中对长江流域氮源输入类型及其估算方法不一致,且往往忽略了流域累积的历史遗留氮的污染贡献.

由于许多流域长期以来人为氮的过量输入,每年输入的人为氮中相当一部分在土壤和地下水中累积,这些累积的遗留氮库成为河流氮污染的持续来源[12]. 以密西西比河流域为例,模型模拟结果显示遗留氮对河流氮输出负荷的贡献达 55%,且持续时间长达十余年[13]. Chen 等[1]的研究构建了基于净人为氮输入(net anthropogenic nitrogen inputs, NANI)的长江可溶性无机氮(DIN)输出通量多元统计模型,识别了 1980 ~ 2012 年期间 5 a 平均 NANI、自然背景源和遗留氮对长江 DIN 输出通量的贡献分别为 56%、6% 和 38%. 但是,由于该研究忽视了 NANI 的氮源组分变化及建坝过程对长江 DIN 输出通量的影响,其结果可能存在较大不确定性[1]. 由于农林地系统氮流失主要通过地表和地下径流形式,而人居地系统的污水排放形式及不透水地表存在,使两个系统中氮流失的输移效率存在较大差异[14]. 因此,需要在进一步系统估算长时间序列的长江流域的 NANI 及其组分变化基础上,构建预测长江氮输出通量及其来源解析模型,科学支撑长江氮污染的精准防治.

本研究基于长江流域 1980 ~ 2015 年的各氮源输入等数据,估算了 1980 ~ 2015 年 NANI 及其组分的年际动态变化,分析了长江大通站河流 DIN 输出通量的年际变化及其影响因素,构建了定量描述 NANI 组分与河流 DIN 输出通量动态关系的多元回归模型,识别了不同氮源对河流 DIN 输出通量的贡献,以期为长江流域人为氮输入宏观调控和河流氮污染高效控制提供关键科学依据.

1 材料与方法

1.1 研究区概况

长江发源于青藏高原唐古拉山脉,横跨中国西南部、中部和东部三大区域,最终汇入东海(图 1)[1]. 长江干流流经西藏、青海、四川、云南、重庆、湖北、湖南、江西、安徽、江苏和上海等 11 个省、自治区、直辖市;支流流经贵州、甘肃、山西、河南、广西、浙江、福建和广东等 8 个省、自治区(广东省在长江流域占比 <0.1% 不计入计算). 长江流域面积达 1.8×10^6 km^2,气候温暖,雨量丰沛,平均降水量约为 1 122 $mm \cdot a^{-1}$,平均河流流量为 907 $km^3 \cdot a^{-1}$(图 2). 长江流域是我国的经济中心和畜禽生产基地,生产总值约占全国的 40%,平均人口密度为 231 人·km^{-2},平均畜禽密度为 203 头·km^{-2}(按猪折算). 长江流域各土地利用类型占比分别为森林 42%、农田 27%、草地 24%、未利用地 4%、水域 2% 和住宅用地 1%[15]. 根据流域边界,本研究把长江流域划分成 3 个区段:上游(源头至宜昌,流经有许多支流的山区)、中游(宜昌至湖口,流经有缓坡的低洼平原)和下游(湖口至长江口,流经受潮汐影响的河段)[1].

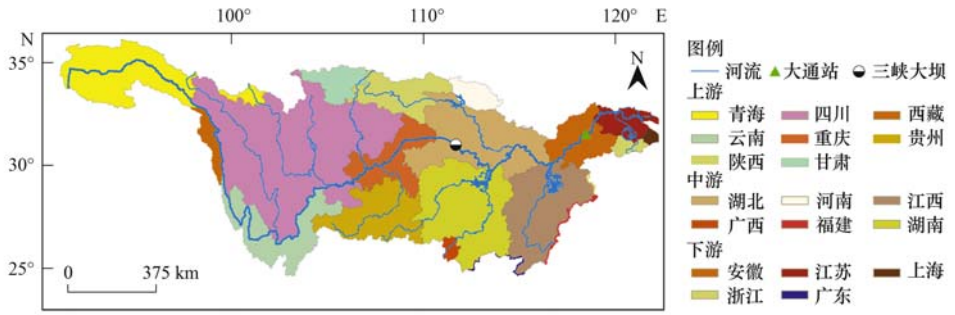

图 1 长江流域及其行政区区位示意

Fig. 1 Location of the Yangtze River basin and its administrative divisions in China

1.2 基础资料收集

1980 ~ 2015 年长江流域 771 个县的氮肥施用量、畜禽养殖数量、人口数量和土地利用方式等基础数据来源于国家统计局(http://www.stats.gov.cn/tjsj/)、中国年鉴网络出版总库(http://acad.cnki.net/kns55/brief/result.aspx? dbPrefix = CYFD)、中国经济社会大数据研究平台(http://data.cnki.net/YearData/Analysis)和各地市的统计年鉴. 1980 ~ 2010 年,长江大通水文站(位于长江下游干流水系,距离入海口 642 km,集水面积占长江流域 95% 以上)的年际河流 DIN 输出通量、平均流量以及流域降水量和建坝库容来源于文献[2,16 ~ 19]. NANI 估算所需的各类参数来自于相关报道(表 1).

1.3 净人为氮输入估算方法

净人为氮输入(NANI)是流域人类活动的控制氮源输入强度核算方法,主要包括大气氮沉降(NAD)、化肥氮输入(CF)、农业生物固氮(ABF)、种子氮输入(SI)和净食物/饲料氮输入(NFFI)这 5 个

表 1　长江流域净人为氮输入(NANI)估算的相关参数值及其来源

Table 1　Relevant values and sources for parameters in estimating net anthropogenic nitrogen inputs (NANI) in the Yangtze River basin

计算参数		参数值	文献
化肥含氮量/%	尿素	46.0	[14,20]
	硝酸铵	35.0	
	碳酸氢铵	17.0	
	其他复合肥	12.8	
农作物固氮能力 /kg·(km^2·a)$^{-1}$	绿肥	150	[21,22]
	豆科作物	64.0	
	水田	45.0	
	旱地	15.0	
种子氮输入 /kg·(km^2·a)$^{-1}$	水稻	69.2	[14,20]
	小麦	227	
	玉米	25.9	
	高粱	30.1	
	薯类作物	107	
	豆科作物	107	
	油料	35.2	
	棉花	5.80	
	蔬菜	2.80	
农作物含氮量 /g·kg^{-1}	水稻	11.8	[23]
	小麦	17.9	
	玉米	14.1	
	高粱	3.20	
	薯类作物	19.4	
	豆科作物	56.2	
	棉花	2.59	
	蔬菜	0.59	
畜禽氮产品含量 /kg·(头·a)$^{-1}$	猪	5.20	[24,25]
	牛	6.00	
	羊	1.10	
	鸡	0.20	
	鸭	0.22	
	水产品/g·kg^{-1}	29.4	
畜禽氮消耗量 /kg·(头·a)$^{-1}$	猪	16.7	[24,25]
	牛	54.8	
	羊	6.85	
	鸡	0.57	
	鸭	0.63	
水产品/g·kg^{-1}		34.4	[24,25]
人为氮消耗量/kg·(人·a)$^{-1}$		3.84～4.75	

组分,代表了人类活动导致研究流域外源氮的输入[14,20]. 具体公式如下:

$$NANI = NAD + CF + NFFI + SI + ABF \quad (1)$$

根据氮输入的土地利用类型不同,本研究将 NANI 划分为农林地氮输入($NANI_N$,代表了非点源污染潜力)和人居地氮输入($NANI_P$,代表了点源污染潜力)[14]:

$$NANI_N = NAD + CF + SI + ABF \quad (2)$$

$$NANI_P = NFFI \quad (3)$$

1.3.1　化肥氮输入

化肥氮输入是 NANI 的重要组成部分. 由于有机肥主要来源于区域内部, 并不是外部的氮源输入, 故在 NANI 计算中仅考虑化学肥料的氮素输入量. 不同类型化肥氮施用量从有关统计年鉴中直接获得,各类型化肥含氮率从已发表文献中获取. 长江流域施用化肥类型主要有:尿素、硝酸铵、碳酸氢铵和其他复合肥,其含氮量分别为 46%、35%、17% 和 13%[14,20].

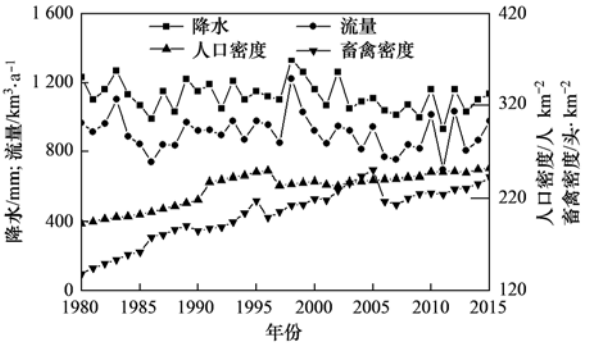

图 2　1980～2015 年长江流域降水、河流流量、人口密度和畜禽密度变化

Fig. 2　Historical trends of annual precipitation, water discharge, population density, and animal density in the Yangtze River basin in 1980-2015

1.3.2　大气氮沉降

大气氮沉降主要包括 NH_y 和 NO_y 两种形态. 在 NANI 核算中,仅考虑来自化石燃烧产生的 NO_y 沉降量, 这是由于 NH_y 在大气中存留时间较短, 主要来源于当地化肥、畜禽粪便等的挥发,因此并不是外部的氮源输入[13]. 本研究中 1980～2015 年的大气氮沉降数据来源文献[20].

1.3.3　农业生物固氮

部分农作物具有固氮作用,是流域氮输入的重要来源. 农业固氮量采用作物种植面积与作物固氮率的乘积获得[13,14]. 根据长江流域的作物和农地类型,本研究主要考虑了绿肥、豆科作物以及水稻和旱地等的固氮作用. 各类作物和农地的单位面积固氮强度来自于已有报道的数据(表 1),对应的种植面积来自统计年鉴.

1.3.4　种子氮输入

不同作物种子氮输入根据各农作物种子播种面积乘以单位面积的种子氮输入强度. 根据长江流域的作物种植类型,本研究主要考虑了水稻、小麦、玉米、高粱、薯类作物、豆科作物、油料、棉花和蔬菜的种子氮输入. 长江流域各农作物播种面积来源于各省份、直辖区、市和县统计年鉴,单位种植面积的种子氮输入强度来源于已有研究(表 1).

1.3.5　净食物/饲料氮输入

净食物/饲料氮输入(NFFI)是指畜禽和作物的氮产量与人类和畜禽耗氮量之间的质量平衡[20],在数值上等于食品氮消费量与畜禽饲料氮消费量之和

减去畜禽产品氮产量与作物氮产量之和：

$$NFFI = HC + AC + (G - GL) - (AP - APL) \quad (4)$$

式中，HC 为人类氮消耗量，AC 为畜禽氮消耗量，G 为收获谷物中的氮产量，AP 为畜禽产品氮产量，GL 为因虫害、腐败和加工造成的谷物氮损失，APL 为因畜禽产品腐败和不可食用造成的氮损失. 作物产品和畜禽产品因变质等原因导致不可用部分按总产量的 10% 计算[14].

当流域内的食物/饲料生产小于需求时，NFFI 为正值(即净进口食品/饲料)；反之为负值(即净出口食品/饲料). 1981、1990、2000 和 2009 年我国人均蛋白质摄入量(以 N 计)分别为 3.92、4.67、4.75 和 4.58 kg·人$^{-1}$，缺失的年份采用线性插值进行估算[20]. 畜禽氮消耗量根据每种畜禽的数量乘以个体氮消耗量进行估算，每种畜禽氮产量为该种畜禽的数量与其产品平均含氮量的乘积. 农作物产品氮含量为农作物产量与农作物氮含量的乘积. 各种畜禽个体的氮消耗量以及畜禽产品和作物产品的氮含量来源文献[13,21]报道的数据. 各类畜禽年均养殖数量用以下公式估算：

$$AL = inventory \times \frac{1}{Cycles} + \frac{Sales}{Cycles} \times \left(\frac{Cycles - 1}{Cycles}\right) \quad (5)$$

式中，AL 为年平均畜禽养殖数量，inventory 为年末畜禽存栏量，Sales 为年畜禽出栏量. Cycles 为 1 a 中包含的畜禽生命周期数(从出生到上市的天数)，以每种 365 d 除以畜禽生命周期进行计算. 本研究中采用的每种畜禽的生命周期为：猪 199 d、家禽(鸡和鸭)132.5 d 和大牲畜(马、牛)以及羊的生命周期都大于 1 a[24].

1.4 数据分析

本研究使用蒙特卡罗方法进行 NANI 估算的不确定性分析. 在蒙特卡罗模拟时，假设 NANI 估算中各参数遵循正态分布，每个参数的变异系数都为 30%. 蒙特卡罗抽样根据正态分布函数随机生成 10 000组模型参数，每年产生10 000个 NANI 样本，得到年度 NANI 的均值和 95% 置信区间[14]. 本研究的相关性分析和回归分析采用 SPSS 软件(17.0，芝加哥，美国).

2 结果与讨论

2.1 长江流域 NANI 的时空演化特征

1980～2015 年期间，长江流域 NANI 呈现持续增加趋势(以 N 计，下同)，即从 1980 年的4 166 kg·(km^2·a)$^{-1}$ 增长至 2015 年的 8 571 kg·(km^2·a)$^{-1}$，净增长 1.1 倍(图 3). 1980～1995 年的增长率为 83%，而 1995～2015 年的增长率为 12%. 本研究的 NANI 估算值高于 Chen 等[1]对长江流域的估算值[从 1980 年的3 537 kg·(km^2·a)$^{-1}$增加到 2012 年的8 177 kg·(km^2·a)$^{-1}$]，这主要是因为其按 11 个子流域 8 a 的数据计算，而本研究按 771 个县的 36 a 数据估算. 本研究估算的长江流域多年平均 NANI 值[6 993 kg·(km^2·a)$^{-1}$]远高于中国大陆[1980～2015 年：3 791 kg·(km^2·a)$^{-1}$][20]、美国东北部流域[20 世纪 90 年代：2 370 kg·(km^2·a)$^{-1}$][26]和厄瓜多尔流域[1994～2006 年：820～8 120 kg·(km^2·a)$^{-1}$][27]. 虽然长江流域多年平均 NANI 值低于滇池流域[2000～2010 年：9 900 kg·(km^2·a)$^{-1}$][28]和淮河流域[2003～2010 年：25 400 kg·(km^2·a)$^{-1}$][29]，但长江流域下游区域的 NANI 高达41 600 kg·(km^2·a)$^{-1}$，表明长江流域是世界上 NANI 的热点区域. 与已有研究结果一致，长江流域年际 NANI 变化与人口密度(R^2 = 0.89，$P < 0.001$，$n = 36$)和畜禽养殖密度(R^2 = 0.95，$P < 0.001$，$n = 36$)呈显著正相关关系，表明人类活动加剧是 NANI 增加的主要原因.

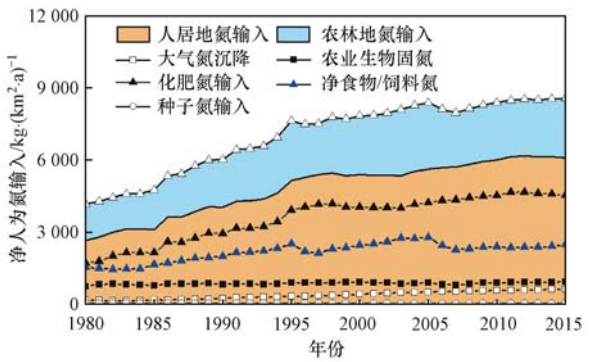

图 3 1980～2015 年长江流域净人为氮输入及其各组分输入动态变化特征

Fig. 3 Dynamic characteristics of NANI and its components in the Yangtze River basin over the 1980-2015 period

1980～2015 年期间，长江流域的 $NANI_N$ 从 1980 年的2 642 kg·(km^2·a)$^{-1}$增长到了 2015 年的 6 094 kg·(km^2·a)$^{-1}$(净增加 1.3 倍)，$NANI_P$ 从 1980 年的1 524 kg·(km^2·a)$^{-1}$增长到了 2015 年的 2 477 kg·(km^2·a)$^{-1}$(净增加 0.6 倍，图 3). $NANI_N$ 和 $NANI_P$ 对 NANI 的平均贡献率为 69%(63%～72%)和 31%(28%～37%)，化肥氮输入、净食物/饲料氮输入、农业生物固氮量、大气氮沉降和种子氮输入对 NANI 的平均贡献率分别为 51%、31%、12%、5% 和 1%. 化肥氮输入是 NANI 的主要来源，约占 NANI 的 41%～55%. 化肥氮输入在 1980～1996 年增加迅速(增加了 136%)，而在 1996～2015

年增速减缓(增长了 12%).这可能与 1990s 以来配土测方施肥技术推广应用有关[30]. 1980～2015 年,净食物/饲料氮输入对 NANI 的贡献为 28～37%,净增加了 63%;农业生物固氮和大气氮沉降分别增加了 25% 和 261%,但种子氮输入略有下降.

从空间分布看,长江流域 1980～2015 年多年平均 NANI 呈现从上游区域向下游区域的上升趋势:上游区域[5 254 kg·(km^2·a)$^{-1}$] < 中游区域[10 400 kg·(km^2·a)$^{-1}$] < 下游区域[15 696 kg·(km^2·a)$^{-1}$](图 4).化肥氮、净食物和饲料氮、大气沉降氮输入和农业生物固氮均呈现与 NANI 一致的空间变化特征.净食物/饲料氮是上游区域 NANI 的主要来源(62%),而中游区域和下游区域的 NANI 主要来源于化肥氮输入(54% 和 61%).

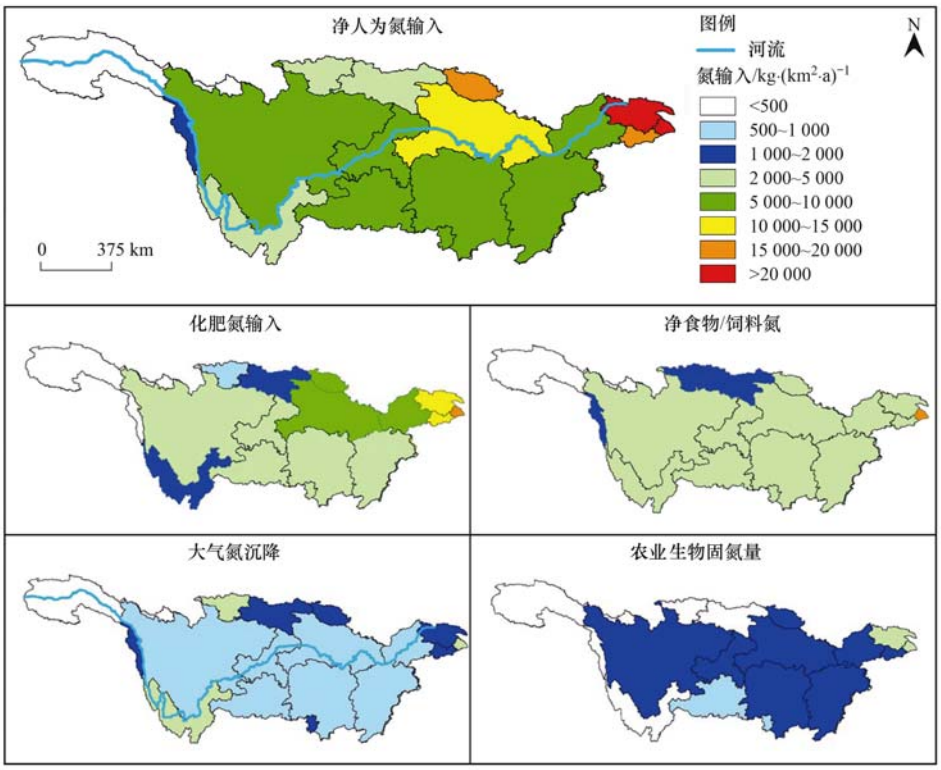

图 4　长江流域 NANI 及其主要组分的空间分布

Fig. 4　Spatial distribution of NANI and its main components in the Yangtze River basin

2.2　长江 DIN 输出通量时间演化特征

1980～2015 年期间,长江大通站的 DIN 输出通量净增长了 4 倍,即由 1980 年的 455 kg·(km^2·a)$^{-1}$(0.85 mg·L^{-1})增加到 2015 年的 1 811 kg·(km^2·a)$^{-1}$(3.40 mg·L^{-1},图 5).长江 DIN 输出通量与 NANI[R^2 = 0.84, P < 0.001, n = 36,图 6(a)]、NANI$_N$[R^2 = 0.84, P < 0.001, n = 36,图 6(b)]和 NANI$_P$[R^2 = 0.70, P < 0.001, n = 36,图 6(c)]间均呈现出显著的正相关关系.以上结果表明 NANI 及 NANI$_N$ 和 NANI$_P$ 的增加是长江 DIN 输出通量快速增加的重要原因.河流 DIN 输出通量与 NANI$_P$ 之间的显著正相关关系体现了长江流域点源污染的重要影响.已有的研究表明,长江流域污水排放量(主要含 NH_4^+ 和可溶性有机氮)从 1980 年的 197 × 10^8 Mt 增加到 2015 年的 347 × 10^8 Mt(增加了 1.8 倍)[31].然而,长江 DIN 输出通量的年增长速率(图 5)显著高于 NANI、NANI$_N$ 和 NANI$_P$ 的(图 3),这表明长江流域人为氮从陆域到河流输移效率增加或者遗留氮(即历年累积在土壤、地下水等中的人为输入氮)的污染贡献增加.已有的研究表明,1982～2015 年期间,长江流域梯田、谷坊、植树造林和保护性耕作等水土保持措施的应用面积显著增加[32],使得植被覆盖面积增加了 5%[19],意味着非点源污染氮流失效率可能未提高.因此,长江流域土壤和地下水中累积的遗留氮库贡献的氮污染负荷可能不容忽视.

1980～2015 年期间,长江建坝库容从 1980 年的 92.8 km^3 增长到了 2015 年的 296.4 km^3(图 5).Maavara 等[33]的研究结果表明由于建坝增加,长江的反硝化作用脱氮效率将由 1980 年 6% 增到 2015 年的 14%.但是,建坝库容与长江 DIN 输出通量呈显著正相关关系[R^2 = 0.81, P < 0.001, n = 36,图 6(d)].这可能一方面是由于 NANI 的增加提高的河流 DIN 输出通量增量远大于建坝库容增加提高的河流脱氮作用.另一方面是由于河流滞留时间的增

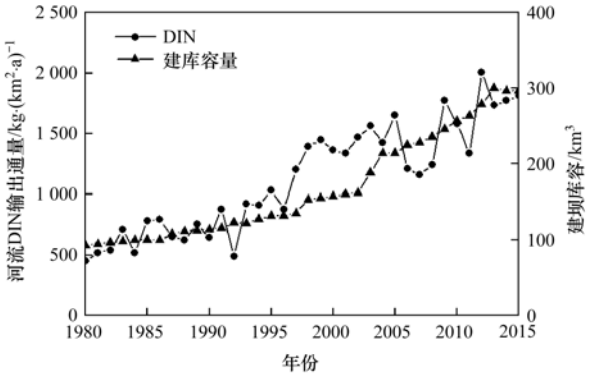

图 5 1980~2015 年长江大通站 DIN 输出通量和建坝库容动态变化

Fig. 5 Dynamic changes in riverine DIN export and dam storage capacity at Datong Station in the Yangtze River in 1980-2015

加促进了颗粒态氮沉降并向 DIN 的转化[34]. 由于建坝过程降低了河流悬浮物浓度,增加了水体温度以及光照入射深度,有利于沉积物中颗粒态氮向 DIN 的生物转化[35,36]. 然而,长江 DIN 输出通量与流域降水量和河流流量未呈现相关关系,这一方面与点源污染影响较大有关,另一方面与地下水对长江 DIN 污染的贡献较大有关. 已有的研究表明,长江流域 77%~80% 的 NO_3^- 非点源污染负荷是通过地下径流途径输移进入长江水系[37],这表明长江的 NO_3^- 输出通量有相当一部分来自于历史遗留氮.

2.3 长江 DIN 输出通量模型构建及来源识别

基于以上分析结果,结合已有的相关研究[1,14],本研究考虑将 $NANI_N$ 和 $NANI_P$ 作为长江 DIN 输出通量的来源,将建坝库容(V, km^3)作为反硝化作用(建坝库容与反硝化作用呈显著正相关关系[33])以及遗留氮库的代表性因素(建坝库容和 NANI 与河流 DIN 输出通量之间差值之间存在显著正相关关系,$R^2=0.99$, $P<0.001$, $n=36$),并将河流流量(Q, $km^3\cdot a^{-1}$)作为河流 DIN 输出通量年际变异性的影响因素,试构建预测长江 DIN 输出通量[F_{DIN}, $kg\cdot(km^2\cdot a)^{-1}$]的多元回归模型. 根据模拟精度指标($R^2$ 和 NS 系数),比较筛选了以上变量各类组合方式的模型形式,选择了以下最优的多元回归模型形式:

$$F_{NANI} = 0.192Q^{0.535}(\ln V)^{1.95} \times \exp(2.09 \times 10^{-4}NANI_N + 2.52 \times 10^{-4}NANI_P) + 282 \quad (6)$$

式(6)能解释长江 DIN 输出通量 92% 的年际变异性,NS 系数为 0.89,平均相对误差为 13%(误差范围:-16%~43%),见图 7. 与 Chen 等[1]的研究所建立的基于 NANI 的长江 DIN 输出通量模型相比($R^2=0.90$),式(6)具有更高的精度(本研究的数据点过多). 这可能不仅是由于本研究对 NANI 的估算时间和空间尺度上更加精细,而且综合考虑了建坝

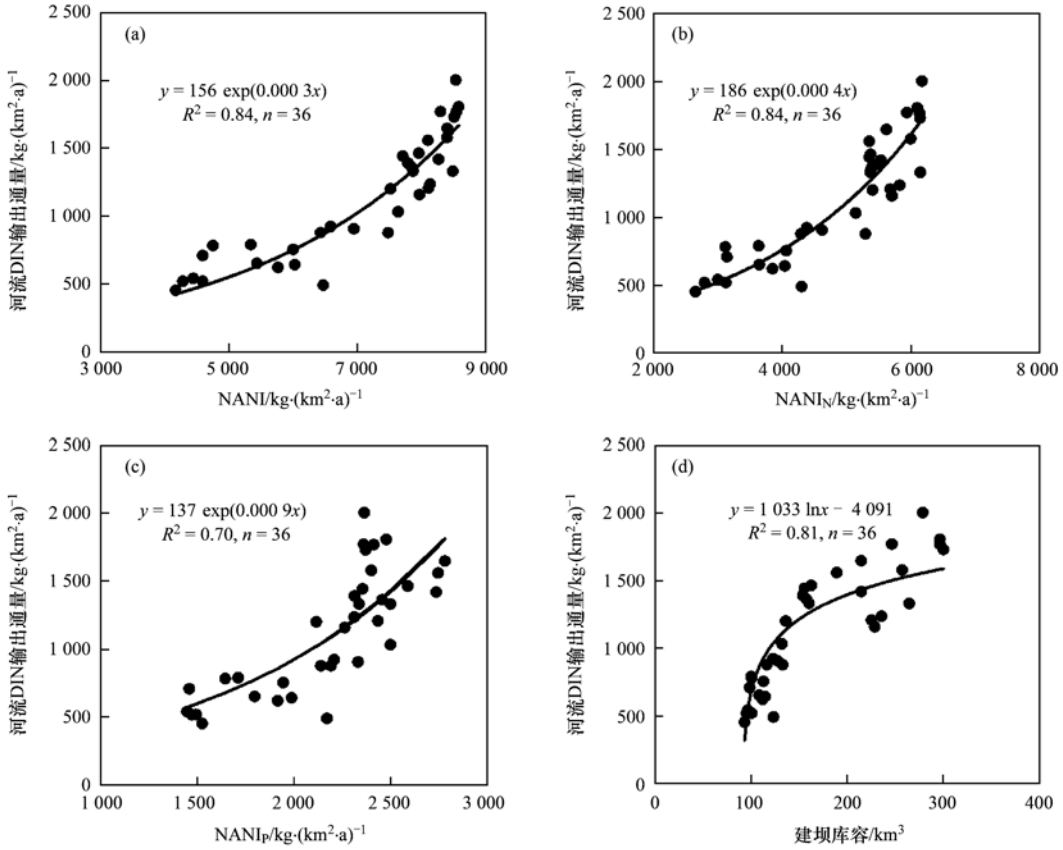

图 6 长江 DIN 输出通量与 NANI、$NANI_N$、$NANI_P$ 和建坝库容的相关关系

Fig. 6 Relationships between riverine DIN export and NANI, $NANI_N$, $NANI_P$, and dam capacity in the Yangtze River

库容以及不同 NANI 组分($NANI_N$ 和 $NANI_P$)对河流 DIN 输出通量的影响. 同时,式(6)的模拟精度高于大部分之前应用 Global NEWS-DIN、MARINA、IMAGE-GNM、SIRPAT 和 ENPS-LSB 等模型对长江流域氮污染的模拟精度(R^2 为 0.63～0.97)[2,4～9]. 考虑到长江流域氮循环和流失过程复杂性,式(6)对长江 DIN 输出通量年际变化具有较高预测精度,为评价长江氮污染的长时间序列变化趋势及其对人类活动的响应提供了有效工具.

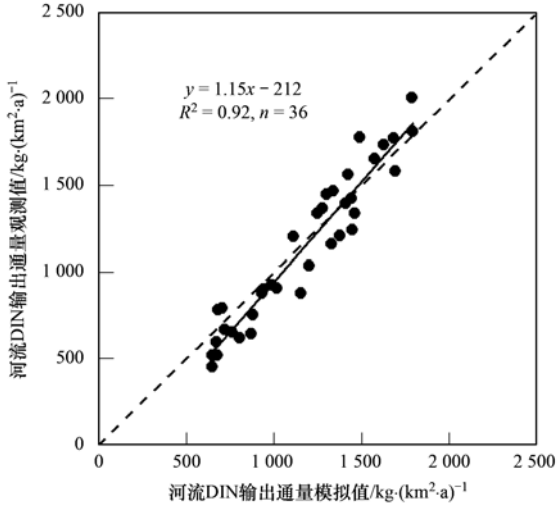

图 7　长江大通站河流 DIN 输出通量的式(6)模拟值与观测值比较

Fig. 7　Relationship between modeled and observed riverine DIN fluxes at the Datong Station in the Yangtze River in 1980-2015

已有的研究结果表明,河流氮的来源主要包括当年 NANI、遗留氮库(遗留氮库是指在土壤、地下水和沉积物等中累积的历年人为输入氮[38])、自然背景源(自然背景源是指非人类活动形成的河流氮污染负荷,即来源于森林和天然植被等的生物固定氮或岩石释放氮[1,14]). 基于建立的式(6),本研究试着进一步分解 NANI、遗留氮库和自然背景源对长江 DIN 输出通量的贡献. 参考相关研究方法[3,4],当 $NANI_N$ 和 $NANI_P$ 都为 0 时,式(6)预测的河流 DIN 输出通量主要来源于遗留氮库和自然背景源. 因此,来源于当年 NANI 的河流 DIN 输出通量[F_{NANI}, kg·(km²·a)⁻¹]可以表示为:

$$F_{NANI} = 0.192Q^{0.535}(\ln V)^{1.95} \times [\exp(2.09 \times 10^{-4}NANI_N + 2.52 \times 10^{-4}NANI_P) - 1] \quad (7)$$

为了进一步区分来自长江流域(流域面积为 1 800 087 km²)遗留氮库和自然背景源的河流 DIN 输出通量,以 20 世纪 80 年代初的长江平均 ρ(DIN)作为自然背景值[(0.12 ± 0.04) mg·L⁻¹][39],因此,自然背景源贡献的长江 DIN 输出通量为[$F_{Background}$, kg·(km²·a)⁻¹]:

$$F_{Background} = 0.12Q \times 10^6/1\,800\,087 \quad (8)$$

基于以上分割结果,流域遗留氮库贡献的长江 DIN 输出通量[F_{Legacy}, kg·(km²·a)⁻¹]可表示为:

$$F_{Legacy} = 0.195Q^{0.535}(\ln V)^{1.95} - \frac{0.12Q \times 10^6}{1\,800\,087} + 282 \quad (9)$$

1980～2015 年期间,流域当年 NANI、遗留氮库和自然背景源对长江 DIN 输出通量的贡献分别为 58%(34%～72%)、36%(25%～56%)和 6%(3%～10%),见图 8. 这与 Chen 等[1]研究报道的当年 NANI、遗留氮库和自然背景源对河流 DIN 输出通量的贡献分别为 56%(37%～66%)、38%(29%～51%)和 6%(5%～12%)的结果整体相当[13],也与浙江椒江流域[40]和福建山美水库流域[41]等研究结果具有可比性. 自然背景源贡献的河流 DIN 输出通量为 46～81 kg·(km²·a)⁻¹[均值为 61 kg·(km²·a)⁻¹],这与之前对其他流域研究中估计的自然背景源贡献的河流氮输出通量相当[58～278 kg·(km²·a)⁻¹][42～44]. 当年 NANI 贡献的 DIN 输出通量为 224～1 286 kg·(km²·a)⁻¹[均值为 717 kg·(km²·a)⁻¹],是长江 DIN 输出通量的主要来源.

1980～2015 年期间,遗留氮库贡献的长江 DIN 输出通量从 1980 年的 362 kg·(km²·a)⁻¹持续增加到 2015 年的 444 kg·(km²·a)⁻¹[均值为 394 kg·(km²·a)⁻¹],因此,其污染贡献不容忽视. 对长江流域的一些氮收支评估研究结果表明,由于长期的人为氮过量输入,土壤和地下水中累积了巨量的遗留氮(1900～2010 年间累积 17.8 Mt)[2]. 在长江流域的一些长期田间监测结果也表明,1988～2012 年期间 0～0.4m 的土壤剖面中累积的遗留氮量达 24 670 kg·km⁻²[45,46],而地下水平均 $\rho(NO_3^-)$ 从

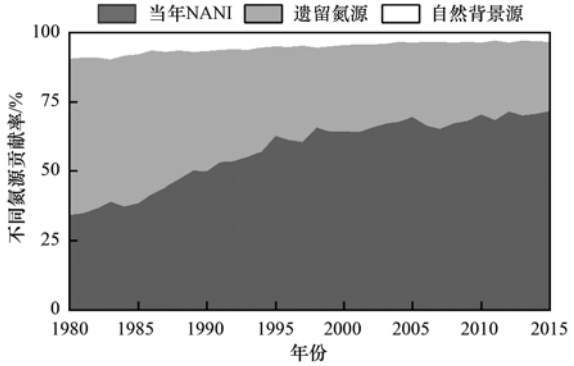

图 8　1980～2015 年长江流域 NANI、遗留氮和自然背景源对河流 DIN 输出通量的贡献

Fig. 8　Contributions of a particular year's net anthropogenic nitrogen inputs (NANI), legacy N source, and natural background source to annual riverine DIN export in the Yangtze River basin in 1980-2015

1990s 的 7.45 mg·L^{-1} 增加到 2000s 的 9.08 mg·L^{-1}[47]. 土壤及地下水中累积的遗留氮在经历矿化作用等复杂的生物地球化学过程以及缓慢的地下径流输移过程最终进入受纳水体,使得其对地表水的氮污染贡献可能会持续几年到数十年时间[12]. 因此,为了有效控制长江 DIN 污染,不仅需要削减 NANI(特别是化肥氮输入)、加强点源污染治理,而且需要重视通过加大测土配方施肥等技术推广应用以促进农田土壤遗留氮的二次利用,并通过在地下水污染关键区域应用渗透性反应屏障等技术以削减地下径流氮输移负荷[48].

3 结论

(1)1980 ~ 2015 年期间,长江流域 NANI 呈显著增加趋势,净增加了 1.1 倍. 人口密度和畜禽养殖密度增加是 NANI 快速增加的主要原因. 化肥氮输入是 NANI 的主要来源.

(2)1980 ~ 2015 年期间,长江大通站的 DIN 输出通量呈显著增加趋势,净增加了 3 倍. 长江 DIN 输出通量的增加主要是由于 NANI 的增加以及遗留氮库的贡献负荷增加,且受建坝库容增加的影响.

(3)基于 $NANI_N$、$NANI_P$ 和建库容量的多元非线性回归模型能较好地预测长江 DIN 输出通量的年际变化,为定量评价长江氮污染的长时间序列变化趋势及其对人类活动的响应提供了有效工具.

(4)1980 ~ 2015 年期间,当年 NANI、遗留氮库和自然背景源对长江 DIN 输出通量的贡献分别为 58%(34% ~ 72%)、36%(25% ~ 56%)和 6%(3% ~ 10%). 因此,加强 NANI 和遗留氮协同管理是有效控制长江氮污染的关键.

参考文献:

[1] Chen F, Hou L J, Liu M, *et al*. Net anthropogenic nitrogen inputs (NANI) into the Yangtze River basin and the relationship with riverine nitrogen export [J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2016, **121**(2): 451-465.

[2] Liu X C, Beusen A H W, Van Beek L P H, *et al*. Exploring spatiotemporal changes of the Yangtze River (Changjiang) nitrogen and phosphorus sources, retention and export to the East China Sea and Yellow Sea[J]. Water Research, 2018, **142**: 246-255.

[3] Shen L, Xu H P, Guo X L, *et al*. Characteristics of large-scale harmful algal blooms (HABs) in the Yangtze River estuary and the adjacent east China sea (ECS) from 2000 to 2010[J]. Journal of Environmental Protection, 2011, **2**(10): 1285-1294.

[4] Yan W J, Mayorga E, Li X Y, *et al*. Increasing anthropogenic nitrogen inputs and riverine DIN exports from the Changjiang River basin under changing human pressures [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2010, **24** (4), doi: 10. 1029/2009GB003575.

[5] 王佳宁, 李新艳, 晏维金, 等. 基于 MEA 情景的长江流域氮平衡及溶解态无机氮通量: 流域-河口/海湾氮综合管理[J]. 环境科学学报, 2016, **36**(1): 38-46.
Wang J N, Li X Y, Yan W J, *et al*. Future nitrogen balance and dissolved inorganic nitrogen flux from the Yangtze River basin to coastal bay under the framework of the Millennium Ecosystem Assessment[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2016, **36**(1): 38-46.

[6] Strokal M, Kroeze C, Wang M R, *et al*. The MARINA model (Model to assess river inputs of nutrients to seAs): model description and results for China [J]. Science of the Total Environment, 2016, **562**: 869-888.

[7] Chen X J, Strokal M, Kroeze C, *et al*. Seasonality in river export of nitrogen: a modelling approach for the Yangtze River[J]. Science of the Total Environment, 2019, **671**: 1282-1292.

[8] Cui M, Guo Q J, Wei R F, *et al*. Temporal-spatial dynamics of anthropogenic nitrogen inputs and hotspots in a large river basin [J]. Chemosphere, 2021, **269**, doi: 10. 1016/j. chemosphere. 2020. 129411.

[9] Wang X, Hao F H, Cheng H G, *et al*. Estimating non-point source pollutant loads for the large-scale basin of the Yangtze River in China[J]. Environmental Earth Sciences, 2011, **63**(5): 1079-1092.

[10] Ti C P, Yan X Y. Spatial and temporal variations of river nitrogen exports from major basins in China[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2013, **20**(9): 6509-6520.

[11] 王佳宁, 晏维金, 贾晓栋. 长江流域点源氮磷营养盐的排放、模型及预测[J]. 环境科学学报, 2006, **26**(4): 658-666.
Wang J N, Yan W J, Jia X. Modeling the export of point sources of nutrients from the Yangtze River basin and discussing countermeasures[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2006, **26**(4): 658-666.

[12] Chen D J, Shen H, Hu M P, *et al*. Legacy nutrient dynamics at the watershed scale: principles, modeling, and implications[J]. Advances in Agronomy, 2018, **149**: 237-313.

[13] Van Meter K J, Basu N B, Cappellen P V. Two centuries of nitrogen dynamics: Legacy sources and sinks in the Mississippi and Susquehanna River Basins [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2017, **31**(1): 2-23.

[14] Chen D J, Hu M P, Guo Y, *et al*. Modeling forest/agricultural and residential nitrogen budgets and riverine export dynamics in catchments with contrasting anthropogenic impacts in eastern China between 1980- 2010 [J]. Agriculture, Ecosystems & Environment, 2016, **221**: 145-155.

[15] 许晨, 万荣荣, 马倩, 等. 太湖西北部湖区入湖河流氮磷水质标准修正方案研究[J]. 长江流域资源与环境, 2017, **26**(8): 1180-1188.
Xu C, Wan R R, Ma Q, *et al*. The research in the revised plan of water quality standard of the nitrogen and phosphorus for the inflow rivers in the northwest of the Taihu lake[J]. Resources and Environment in the Yangtze Basin, 2017, **26**(8): 1180-1188.

[16] Dai Z J, Du J Z, Zhang X L, *et al*. Variation of riverine material loads and environmental consequences on the Changjiang (Yangtze) estuary in recent decades (1955- 2008) [J]. Environmental Science & Technology, 2011, **45** (1): 223-227.

[17] Dai Z J, Fagherazzi S, Mei X F, *et al*. Decline in suspended sediment concentration delivered by the Changjiang (Yangtze) River into the East China Sea between 1956 and 2013 [J]. Geomorphology, 2016, **268**: 123-132.

[18] Zhao Y F, Zou X Q, Liu Q, *et al*. Assessing natural and anthropogenic influences on water discharge and sediment load in

the Yangtze River, China[J]. Science of the Total Environment, 2017, **607-608**: 920-932.

[19] Yang H F, Yang S L, Xu K H, *et al*. Human impacts on sediment in the Yangtze River: a review and new perspectives [J]. Global and Planetary Change, 2018, **162**: 8-17.

[20] Han Y G, Fan Y T, Yang P L, *et al*. Net anthropogenic nitrogen inputs (NANI) index application in Mainland China [J]. Geoderma, 2014, **213**: 87-94.

[21] Yan X Y, Cai Z C, Yang R, *et al*. Nitrogen budget and riverine nitrogen output in a rice paddy dominated agricultural watershed in eastern China[J]. Biogeochemistry, 2011, **106**(3): 489-501.

[22] Ti C P, Pan J J, Xia Y Q, *et al*. A nitrogen budget of mainland China with spatial and temporal variation[J]. Biogeochemistry, 2012, **108**(1-3): 381-394.

[23] 王光亚. 我国食物成分表的发展简史[J]. 营养学报, 2003, **25**(2): 126-129.

[24] 王方浩, 马文奇, 窦争霞, 等. 中国畜禽粪便产生量估算及环境效应[J]. 中国环境科学, 2006, (5): 614-617.
Wang F H, Ma W Q, Dou Z X, *et al*. The estimation of the production amount of animal manure and its environmental effect in China[J]. China Environmental Science, 2006, **26**(5): 614-617.

[25] Han Y G, Li X Y, Nan Z, *et al*. Net anthropogenic nitrogen accumulation in the Beijing metropolitan region [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2011, **18**(3): 485-496.

[26] Boyer E W, Goodale C L, Jaworski N A, *et al*. Anthropogenic nitrogen sources and relationships to riverine nitrogen export in the northeastern U.S.A.[J]. Biogeochemistry, 2002, **57**(1): 137-169.

[27] Borbor-Cordova M J, Boyer E W, McDowell W H, *et al*. Nitrogen and phosphorus budgets for a tropical watershed impacted by agricultural land use: Guayas, Ecuador [J]. Biogeochemistry, 2006, **79**(1-2): 135-161.

[28] Gao W, Howarth R W, Hong B, *et al*. Estimating net anthropogenic nitrogen inputs (NANI) in the Lake Dianchi basin of China[J]. Biogeosciences, 2014, **11**(16): 4577-4586.

[29] Zhang W S, Swaney D P, Li X Y, *et al*. Anthropogenic point-source and non-point-source nitrogen inputs into Huai River basin and their impacts on riverine ammonia-nitrogen flux [J]. Biogeosciences, 2015, **12**(14): 4275-4289.

[30] 杨帆. 测土配方施肥技术在我国的发展与现状[J]. 中国农资, 2006, (4): 60-61.

[31] Li Y P, Acharya K, Yu Z B. Modeling impacts of Yangtze River water transfer on water ages in Lake Taihu, China [J]. Ecological Engineering, 2011, **37**(2): 325-334.

[32] Qu S, Wang L C, Lin A W, *et al*. What drives the vegetation restoration in Yangtze River basin, China: climate change or anthropogenic factors? [J]. Ecological Indicators, 2018, **90**: 438-450.

[33] Maavara T, Chen Q W, Van Meter K, *et al*. River dam impacts on biogeochemical cycling [J]. Nature Reviews Earth & Environment, 2020, **1**(2): 103-116.

[34] Akbarzadeh Z, Maavara T, Slowinski S, *et al*. Effects of damming on river nitrogen fluxes: a global analysis[J]. Global Biogeochemical Cycles, 2019, **33**(11): 1339-1357.

[35] Hou L J, Liu M, Lu J J, *et al*. Ammonium regeneration in intertidal sediments of the Yangtze estuary during air-exposure [J]. Environmental Geology, 2006, **49**(7): 937-945.

[36] He W, Chen M L, Schlautman M A, *et al*. Dynamic exchanges between DOM and POM pools in coastal and inland aquatic ecosystems: a review[J]. Science of the Total Environment, 2016, **551-552**: 415-428.

[37] 陈帅, 鲁程鹏, 李姝蕾, 等. 长江干流朱沱站-大通站基流变化特征分析[J]. 南水北调与水利科技, 2015, **13**(5): 823-826, 836.
Chen S, Lu C P, Li S L, *et al*. Variation characteristics of baseflow between Zhutuo and Datong stations along the mainstream of Yangtze River[J]. South-to-North Water Transfers and Water Science & Technology, 2015, **13**(5): 823-826, 836.

[38] Tomich T P, Brodt S B, Dahlgren R A, *et al*. The california nitrogen assessment: challenges and solutions for people, agriculture, and the environment[M]. Oakland: University of California Press, 2016.

[39] Meybeck M. Carbon, nitrogen, and phosphorus transport by world rivers[J]. American Journal of Science, 1982, **282**(4): 401-450.

[40] Huang H, Chen D J, Zhang B F, *et al*. Modeling and forecasting riverine dissolved inorganic nitrogen export using anthropogenic nitrogen inputs, hydroclimate, and land-use change[J]. Journal of Hydrology, 2014, **517**: 95-104.

[41] 王迪, 刘梅冰. 河流氮输出对人类活动净氮输入的响应[J]. 亚热带资源与环境学报, 2019, **14**(1): 47-53.
Wang D, Liu M B. Response of riverine nitrogen export to net anthropogenic nitrogen inputs [J]. Journal of Subtropical Resources and Environment, 2019, **14**(1): 47-53.

[42] Han H, Allan J D, Scavia D. Influence of climate and human activities on the relationship between watershed nitrogen input and river export [J]. Environmental Science & Technology, 2009, **43**(6): 1916-1922.

[43] Howarth R, Swaney D, Billen G, *et al*. Nitrogen fluxes from the landscape are controlled by net anthropogenic nitrogen inputs and by climate[J]. Frontiers in Ecology and the Environment, 2012, **10**(1): 37-43.

[44] Howarth R W. Coastal nitrogen pollution: a review of sources and trends globally and regionally[J]. Harmful Algae, 2008, **8**(1): 14-20.

[45] 李建军, 辛景树, 张会民, 等. 长江中下游粮食主产区 25 年来稻田土壤养分演变特征[J]. 植物营养与肥料学报, 2015, **21**(1): 92-103.
Li J J, Xin J S, Zhang H M, *et al*. Evolution characteristics of soil nutrients in the main rice production regions, the middle-lower reach of Yangtze River of China[J]. Journal of Plant Nutrition and Fertilizer, 2015, **21**(1): 92-103.

[46] 张涵, 郭珊珊, 许懿, 等. 成都平原典型农区耕地氮磷负荷与土壤养分平衡研究[J]. 安全与环境学报, 2020, **20**(4): 1449-1458.
Zhang H, Guo S S, Xu Y, *et al*. Study on nitrogen and phosphorus load and soil nutrient balance of cultivated land in a typical agricultural area in Chengdu Plain[J]. Journal of Safety and Environment, 2020, **20**(4): 1449-1458.

[47] Gu B J, Ge Y, Chang S X, *et al*. Nitrate in groundwater of China: Sources and driving forces[J]. Global Environmental Change, 2013, **23**(5): 1112-1121.

[48] Thomas Z, Abbott B W. Hedgerows reduce nitrate flux at hillslope and catchment scales via root uptake and secondary effects[J]. Journal of Contaminant Hydrology, 2018, **215**: 51-61.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 42 No. 12

Dec. 15, 2021

CONTENTS

Emission Reduction Potential of Air Pollutants of Thermal Power Industry Based on Carbon Emission Reduction Target and Emission Standard Constraint Scenarios ····· LI Hui, SUN Xue-li, PANG Bo, *et al.* (5563)

Volatile Organic Compounds in the Vehicle Repairing Industry of China: Emission, Management, Purification, and Policy ····· WANG Hai-lin, YANG Tao, NIE Lei, *et al.* (5574)

Pollutant Emission Inventory of Biomass Combustion Sources in Xining City ····· GAO Yu-zong, JI Ya-qin, LIN Zi, *et al.* (5585)

Analysis of Air Quality and Influencing Factors in Sichuan Basin During the COVID-19 Outbreak ····· CHEN Jun-hui, FENG Xiao-qiong, LI Yuan, *et al.* (5594)

Estimation of $PM_{2.5}$ Concentration in Sichuan Province Based on Improved Linear Mixed Effect Model and Geo-intelligent Random Forest ····· WU Yu-hong, DU Ning, WANG Li, *et al.* (5602)

Characterization of Water-soluble Inorganic Ions in Atmospheric $PM_{2.5}$ in Chengdu During the Later Stage of the Air Pollution Prevention and Control Action Plan ····· LI Jia-qi, ZHANG Jun-ke, DONG Gui-ming, *et al.* (5616)

Characteristics of Chemical Composition and Source Apportionment of Atmospheric Fine Particulate Matter in Luoyang ····· SUN Jia-bin, DONG Zhe, LI Li-ping, *et al.* (5624)

Characteristics and Main Influencing Factors of Black Carbon Aerosol in Beijing ····· CAO Yang, AN Xin-xin, LIU Bao-xian, *et al.* (5633)

Chemical Characteristics and Source Apportionment with Temporal Refinement for VOCs in Tianjin Suburb in Summer ····· WANG Yi-xuan, LIU Bao-shuang, WU Jian-hui, *et al.* (5644)

Pollution Characteristics and Reactivity of Volatile Organic Compounds in Shenyang ····· DU Han-bing, WANG Nan, REN Wan-hui, *et al.* (5656)

Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric SVOCs Around Typical Chemical Industry Zones ····· GE Xiang, WU Jian, GAO Song, *et al.* (5663)

Source Analysis and Health Risk Assessment of Toxic Volatile Organic Compounds in Nanjing in Summer and Winter ····· ZHANG Zi-jin, LIN Yu-chi, ZHANG Yu-xian, *et al.* (5673)

Emission Characteristics of Industrial VOCs Based on Emission Inventory and Field Test: A Case Zhengzhou High-tech Zone ····· REN He, LU Xuan, LIU Yang, *et al.* (5687)

VOCs Emission Characteristics of Water-based Architectural Coatings and the Influence on the Atmospheric Environment in China ····· GAO Mei-ping, WANG Hai-lin, LIU Wen-wen, *et al.* (5698)

WRF-Chem Simulations of the Impacts of Uncertainty in VOCs Emissions on Ozone Formation and Control Strategies ····· WANG Feng, WANG Jian-wei, YANG Ning, *et al.* (5713)

Spatial and Temporal Distribution of Ozone and Influencing Factors in Shandong Province ····· ZHANG Miao, DING Chun, LI Yan, *et al.* (5723)

Chemical Characteristics and Contaminant Sensitivity During the Typical Ozone Pollution Processes of Chengdu in 2020 ····· QIAN Jun, XU Chen-xi, CHEN Jun-hui, *et al.* (5736)

Development of an Emission Model for Oxygenated Volatile Organic Compounds from Gasoline Vehicles Based on the Online Measurement ····· HAO Yu-qi, YUAN Zi-bing, WANG Meng-lei, *et al.* (5747)

Dynamic Evolution Characteristics of Water Resources Utilization Efficiency in China Under the Constraint of Triple Attribute Carrying Capacity ····· ZHANG Kai, WU Feng-ping, CHENG Chang-chun (5757)

Prediction of Total Nitrogen Load in Yangtze River Basin ····· DING Zhao-wei, ZHENG Hua (5768)

Dynamic of Net Anthropogenic Nitrogen Inputs and Riverine Nitrogen Export in the Yangtze River Basin in 1980-2015 ····· YAO Meng-ya, HU Min-peng, CHEN Ding-jiang (5777)

Characteristics of Water Environment and Spatial-temporal Distribution of Nitrogen and Phosphorus Load in the Yellow River ····· HAN Xu, PAN Bao-zhu, CHEN Yue, *et al.* (5786)

Analysis of Nitrate Pollution Sources Under Different Rainfall Conditions Based on $\delta^{15}N$ and $\delta^{18}O$ Values ····· XING Zi-kang, YU Zhong-bo, YI Peng, *et al.* (5796)

Seasonal Variation Characteristics of Eukaryotic Microbial Community Composition in the Source Water Reservoir ····· ZHANG Hai-han, HUANG Xin, HUANG Ting-lin, *et al.* (5804)

Characteristics of Planktonic Bacteria Community Between Summer and Winter Surface Water in Dali Lake ····· LI Wen-bao, GUO Xin, ZHANG Bo-yao, *et al.* (5814)

Impacts of Wastewater Effluent Discharge on Bacteria Community and Water-soluble Organic Matter in Benthic Biofilm in Receiving River ····· WANG Yu-tao, FAN Chen-yang, ZHU Jin-xin, *et al.* (5826)

Pollution Characteristics and Risk Assessment of Typical POPs in Typical Drinking Water Sources in Wuhan ····· ZHANG Kun-feng, FU Qing, TU Xiang, *et al.* (5836)

Investigation on Fluoroquinolone Resistance Genes in the Intensive Aquaculture Area of Shatianhu Intensive Aquiculture Farm and Surrounding Waterbodies in Shanghai, China ····· XU Mu, LI Shi-hao, MA Jin, *et al.* (5848)

Influencing Factors of Nitrogen Removal from Low-Pollution Water by Aerated Constructed Wetland ····· LI Lin-lin, LI Rong-tao, KONG Wei-jing, *et al.* (5857)

Removal of Characteristic Pollutants in Livestock Wastewater by Horizontal Subsurface Flow Constructed Wetlands ····· ZHAO Wei, FAN Zeng-zeng, YANG Xin-ping (5865)

Improvement of Nitrogen and Phosphorus Adsorption and Stormwater Retention Capacity by Hardwood Biochar as an Additive Material in Filler Soil ····· MENG Yi-ke, WANG Yuan, WANG Chuan-yue, *et al.* (5876)

Removal of Ammonia Nitrogen from Polyvinyl Alcohol/Sodium Alginate Fixed Micron Zeolite Powder in Black and Smelly Rivers ····· WEI Chao, CHEN Tao, JIANG Qiao, *et al.* (5884)

Effect of Corn Stalk Biochar on the Adsorption of Aureomycin from Sierozem ····· NAN Zhi-jiang, JIANG Yu-feng, MAO Huan-huan, *et al.* (5896)

Microbial Degradation Potential and Transformation Pathway of Micropollutants in Sand Filters of Drinking Water Treatment Plants ····· ZHOU Jie, WANG Dong-lin, LIN Hui, *et al.* (5905)

Long-term Trends in Illicit Drugs Abuse in the City Assessed by Wastewater Analysis ····· CAO Yu, DONG Xiao-tang, SHAO Xue-ting, *et al.* (5912)

Stress and Post Effects of Azithromycin and Copper on Archaeal Community and ARGs in Activated Sludge ····· GAO Yu-xi, LI Xing, ZHAO Jun-ru, *et al.* (5921)

Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Soil Heavy Metals at Typical Smelting Industry Sites ····· LI Qiang, CAO Ying, HE Lian-sheng, *et al.* (5930)

Distribution and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Heavy Metals in Coking Sites in China ··· WANG Yao-feng, HE Lian-sheng, JIANG Deng-ling, *et al.* (5938)

Spatial Variation and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils of Main *Torreya grandis* Plantation Region in Zhejiang Province ····· WANG Min, DONG Jia-qi, BAI Long-long, *et al.* (5949)

Investigations on the Derivation of Safe Maize-Producing Threshold of Soil Cd Content and on Classification of Cd Contaminated Maize-Producing Areas in Northern China ····· GUAN Wei-dou, GUO Di, WANG Ping, *et al.* (5958)

Relationship Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metal Contents in Soil Aggregates and in Crops Around a Typical Pb-Zn Mining Area ····· QIANG Yu, LI Ying-ju, LUO Qian, *et al.* (5967)

Heavy Metal Pollution and Cumulative Effect of Soil-crop Systems Around Typical Enterprises in Xiong'an New District ····· ZHOU Ya-long, WANG Qiao-lin, WANG Cheng-wen, *et al.* (5977)

Heavy Metal Accumulation Effect and Safe Planting Zoning of Soil and Rice in Tongren ····· ZHU Liang-liang, WU Yong, ZHOU Lang, *et al.* (5988)

Effect of Dry-Wet Alternation on the Immobilization of Arsenic in Red Soil by Cerium Manganese Modified Biochar ····· HUANG Xiao-ya, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, *et al.* (5997)

Ammonium Nitrogen Fertilizer and Humic Acid Synergically Promote the Removal of Cd from Soil by *Tagetes patula* L. ····· WANG Bing-qing, YANG Qin, LI Hong-ying, *et al.* (6006)

Characteristics and Influencing Factors of the Dissolved Methane and Nitrous Oxide Concentrations and Emissions from a Rice Paddy Drainage River in China ····· WU Shuang, YANG Wei-tong, SHENG Yang-yue, *et al.* (6014)

Coupling Effects of Water-saving Irrigation and Controlled-release Fertilizer (CRF) Application on CH_4 and N_2O Emission in Single Cropping Paddy Field ····· WANG Yong-ming, XU Yong-ji, JI Yang, *et al.* (6025)

Effects of Manure Combined Chemical Fertilizers on Soil N_2O Emission and Microbial Characteristics of Wheat Crop System in Northwest Arid ····· WANG Kai, SHI Lei, MA Long, *et al.* (6038)

Effects of Different Types of Straw Returning on the Bacterial Community, Organic Carbon Mineralization and Maize Yield in Upland Red Soil ····· KONG Pei-jun, ZHENG Jie, LUAN Lu, *et al.* (6047)

Effects of Nitrogen and Phosphorus Additions on Soil Microorganisms in Saline-alkaline Grassland ····· YANG Jian-qiang, DIAO Hua-jie, HU Shu-ya, *et al.* (6058)

Effects of Combined Application of Biochar with Chemical Fertilizers and Organic Fertilizers on Nutrients and Phosphorus Forms in Purple Soils ····· XIANG Shu-jiang, YU Luo, XIONG Zi-yi, *et al.* (6067)

Effects of *Enteromorpha prolifera* Biochar and Wood Vinegar Co-application on Takyric Solonetz Improvement and Yield of Oil Sunflower ····· WANG Zheng, SUN Zhao-jun, Sameh El-Sawy, *et al.* (6078)