

宋大平, 左强, 刘本生, 等. 农业面源污染中氮排放时空变化及其健康风险评估研究: 以淮河流域为例[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(6): 1219–1231.

SONG Da-ping, ZUO Qiang, LIU Ben-sheng, et al. Estimation of spatio-temporal variability and health risks of nitrogen emissions from agricultural non-point source pollution: A case study of the Huaihe River Basin, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2018, 37(6): 1219–1231.

## 农业面源污染中氮排放时空变化及其健康风险评估研究 ——以淮河流域为例

宋大平, 左强, 刘本生, 邹国元, 刘东生\*

(北京市农林科学院植物营养与资源研究所, 北京 100097)

**摘要:**以保护淮河流域环境和居民健康为出发点, 为揭示流域农业面源污染负荷时空分布特征, 采用清单分析法和排污系数法核算了流域 35 个地级市的畜禽养殖、农村生活、农田种植 3 种污染源总氮(TN)的排放量和排放强度。利用 GIS 软件对氮素耕地、水体污染排放强度进行时空变化分析, 分析出流域面源污染的重点污染源、污染类型及其空间分布特征, 并根据健康风险评估模型估算流域内地下水中硝态氮对人体潜在的健康风险。结果表明: 2015 年淮河流域农村生活、化肥使用和畜禽粪便 TN 排放量分别为 42.17 万、644.44 万 t 和 213.86 万 t, 排放比重分别为 3.58%、72.39% 和 24.03%, 化肥的施用仍是氮素污染的主要来源; 耕地氮素污染负荷方面, 农田种植 > 畜禽养殖 > 农村生活; 地表水氮素污染负荷方面, 农田种植 ≈ 畜禽养殖 > 农村生活。流域内不同地区污染物负荷强度受耕地面积和水资源量的影响, 分布存在一定区域空间分异现象, 淮河流域西北部地区负荷强度高于东南部。地下水硝态氮健康风险指数在 0.49~3.18 之间, 健康风险阈值超过“1”的城市数量占整个淮河流域的 82.86%, 应注意饮用水的安全问题。

**关键词:** 淮河流域; 面源污染; 污染负荷; 空间分布; 健康风险

中图分类号: X820.4 文献标志码: A 文章编号: 1672-2043(2018)06-1219-13 doi:10.11654/jaes.2017-1374

### Estimation of spatio-temporal variability and health risks of nitrogen emissions from agricultural non-point source pollution: A case study of the Huaihe River Basin, China

SONG Da-ping, ZUO Qiang, LIU Ben-sheng, ZOU Guo-yuan, LIU Dong-sheng\*

(Institute of Plant Nutrition and Resources, Beijing Academy of Agriculture and Forestry Sciences, Beijing 100097, China)

**Abstract:** For the purposes of protecting the environment, human health of residents, and revealing the watershed agricultural non-point source pollution load distribution over time, this study adopts the inventory method and pollution discharge coefficient. It analyzes three kinds of pollution sources: livestock breeding, rural life and farmland cultivation, and contribution to total nitrogen(TN) emissions and emissions intensity in 35 cities of the Huaihe River Basin. The spatio-temporal variability of non-point pollution sources was presented based on geographic information system analysis. Furthermore, the potential health risks of nitrate/nitrogen in groundwater were estimated according to the health risk assessment model. The results showed that the TN emissions of rural life, farmland cultivation, and livestock breeding were  $4.22 \times 10^5$  t,  $6.44 \times 10^6$  t, and  $2.14 \times 10^6$  t, respectively, in the Huaihe River Basin in 2015. Rural life, farmland cultivation, and livestock breeding measured emissions were correspondingly 3.58%, 72.39%, and 24.03%. Fertilizer use was still the main source of nitrogen pollution. Farmland nitrogen pollution due to field fertilization was the greatest, but livestock and poultry farming also showed greater contributions than that of rural life. Farm field planting mainly contributed to surface water nitrogen pollution loads, but other sources contributed significantly to total loading rates and present significant regional spatial variability. The northwest area of the Huaihe River Basin showed higher nitrogen loading than the southeast. In terms of groundwater, nitrate health risk indexes ranged from 0.49 to 3.18, exceeding the

收稿日期: 2017-10-12 录用日期: 2017-12-25

作者简介: 宋大平(1984—), 男, 河北唐山人, 博士, 助理研究员, 主要从事农业面源污染及环境重金属与健康方面的研究。E-mail: songping\_361@163.com

\* 通信作者: 刘东生 E-mail: llsls@163.com

基金项目: 国家科技支撑计划课题(2015BAL01B04); 国家自然科学基金青年科学基金项目(51708034)

**Project supported:** The National Key Technology Research and Development Program of the Ministry of Science and Technology of China(2015BAL01B04); The National Natural Science Foundation of China(51708034)

health risk threshold "1", which accounts for 82.86% of the entire Huaihe River Basin. We proposed that it was necessary to pay more attention to the safety of drinking water.

**Keywords:** Huaihe River Basin; non-point source pollution; pollution loading; spatio-temporal variability; risk assessment

氮素(N)是地球上生命的必需元素,它作为最主要的限制因子之一控制着很多生态系统的动态平衡,但过多的N排放则会对环境产生不良影响。我国是农业大国,尤其是进入21世纪,为在有限的农田上实现粮食增产和农民增收,高面源污染风险的蔬菜、果园、花卉等农田和畜禽养殖业在各大流域发展迅速。有研究表明,水体污染严重的流域,农用化肥、农村畜禽养殖是造成水体氮、磷富营养化的主要原因<sup>[1-3]</sup>。氮素的大量使用,容易对农田造成氮的大量盈余,而增加耕地氮素负荷<sup>[4-6]</sup>。为了减少硝态氮淋失,许多国家已经建立了关于减少硝态氮淋失的农作措施指导方针,主要包括化肥氮和畜禽有机废弃物氮的施用量及施用时间<sup>[7-8]</sup>。在欧盟,农民必须按照每年盈余量的许可临界值权衡其主要投入和产出,如果盈余量一旦超过规定的最高限量,则被征收环境污染税<sup>[9]</sup>。Kopinski等<sup>[10]</sup>研究结果显示波兰西北部地区耕地氮素负荷最高,主要是集约化生产中投入的大量无机化肥和畜禽粪便很容易造成水体、特别是地下水硝酸盐污染<sup>[11-13]</sup>,严重威胁着环境和人们的身体健康。

目前,国内学者张维理等<sup>[14]</sup>和侯彦林等<sup>[15-16]</sup>从全国范围分析了我国农业面源污染的现状和发展形势。也有许多学者针对我国长江、黄河、滇池、巢湖等流域的不同污染特征做了相关研究<sup>[17-20]</sup>。而针对淮河流域,特别是农业耕地面源污染的报道相对较少,之前笔者也针对淮河流域做了一些初步的研究<sup>[21-22]</sup>,但都只是针对淮河部分地区和样点县进行的,而非针对淮河流域整体污染状况。加之近年来环境污染对人体健康的影响日益受到人们关注,淮河流域环境污染与肿瘤高发问题更成为媒体披露和社会关注的重大问题。氮肥、农药和畜禽粪便有机肥的大量使用以及生活污水的排放是硝态氮的主要源头,饮用水中的硝态氮、农药制剂与癌症的发病率存在着密切关系<sup>[23-25]</sup>。农业面源污染中硝态氮、亚硝态氮对人体健康的影响,大部分是通过耕地淋滤作用进入地下水,从而可通过饮用水中硝态氮、亚硝态氮的浓度进行健康风险评价<sup>[26-28]</sup>。本研究目的是通过估算分析淮河整个流域农业农村面源污染中化肥、畜禽粪便和农村生活污水排放而产生的耕地氮素负荷,以及氮素随地表径流和耕地淋溶进入

地表水和地下水的时空分布变化,分析淮河流域农业农村面源污染中氮素对水土环境以及居民健康风险等的影响。估算1985—2015年间淮河流域重点年份耕地、地表水氮素扩散浓度以及地下水硝态氮素扩散浓度等级的划分与评价;最终根据健康风险评价模型估算淮河流域各地级市饮用地下水的潜在健康风险,从宏观的角度评价农业面源氮素污染对人体健康的风险,为今后健康风险评价提供一个新的思路,同时也为今后农业面源污染的管理提供依据。

## 1 研究区概况

淮河属于我国七大河流,是污染最严重的河流之一。淮河发源于河南省南部的桐柏山,东流经豫、鄂、皖、苏四省,在三江营入长江,干流全长1000 km。淮河流域介于长江和黄河两流域之间,位于东经111°55′~122°45′、北纬30°55′~38°20′,流域面积26.96万km<sup>2</sup>。流域多年平均降水量约875 mm,降水量空间差异较大,降雨量由流域下游向上游呈弧形递减,多年平均总水资源量约794亿m<sup>3</sup>,人均水资源量仅为全国的1/5。淮河流域耕地面积1266万hm<sup>2</sup>,粮食产量占全国粮食总产量的1/6,是我国重要的粮食主产区。淮河流域总人口为1.78亿(2015年),为同期全国人口密度的4.5倍,居各大江大河流域人口密度之首。由于淮河流域人口集聚,农业集约化程度高,畜禽养殖发展迅速,这也是造成当地农业面源污染的主要原因。

淮河流域包括湖北、河南、安徽、山东、江苏五省40多个地(市),240多个县(市、区),为了便于研究,对淮河流域边缘部分县市进行了取舍(将面积不足该县面积一半的县区去掉),最后得到淮河流域图(图1),包括河南、安徽、山东、江苏四省35个地(市),208个县(市、区),其中地级市并不是完整的行政单位,而是所属淮河流域范围内部分。

## 2 材料与方法

### 2.1 数据获取

本研究数据资料主要来源于淮河流域35个地级市2016年统计年鉴、2015年河南省、安徽省、江苏省、山东省统计年鉴。研究收集处理的数据资料主要分为3大类:①农业基本数据:流域各县(市、区)面



图1 淮河流域图

Figure 1 The Huaihe River Basin

积、耕地面积、年末人口数、乡村人口数等;②污染负荷核算基础数据:各县(市、区)粮食、经济作物、蔬果产量和种植面积,化肥、农药、地膜施用量,猪、牛、羊、家禽出栏和存栏数量,地表水和地下水资源量等;③流域基础地理资料:流域行政区地图、流域地形图、多年降水量分布图、水资源分布图、水系图等。

2.2 数据分析

2.2.1 污染物排污系数

对于畜禽粪便中总氮(TN)的计算,参考笔者之前的研究<sup>[21]</sup>。其中,各畜禽粪便日排泄系数、粪便养分平均含量(以湿基为标准)参考国家环境保护总局公布的数据<sup>[29]</sup>以及第一次全国污染源普查《畜禽养殖业源产排污系数手册》<sup>[30]</sup>中公布的排污系数(表1)。针对化肥使用而产生的TN的计算为化肥施用中氮肥的

用量与复合肥中氮素含量之和(均为折纯量),可以从统计年鉴中直接计算得出。对于生活污染物中TN的计算则参考段华平等<sup>[31]</sup>的研究。

2.2.2 污染物流失系数

根据已有的研究<sup>[31-34]</sup>,各类型污染物的流失率如表2所示。

2.2.3 氮素排放量及污染负荷计算

清单分析法是生命周期评价方法中极重要的环节,是对整个生命周期阶段的资源和能源的使用及环境排放的定量分析过程。本研究采用清单分析法和排污系数法相结合的方式,分别对化肥施用、畜禽养殖以及农村生活3个不同污染源的氮排放量进行计算。化肥施用氮排放来自于氮肥和复合肥两部分,畜禽养殖氮排放包括猪、牛、羊以及家禽等畜禽废物的含氮

表1 淮河流域畜禽粪便产排污系数

Table 1 Pollution production coefficient of livestock and poultry

种类	粪尿量/kg·d <sup>-1</sup>	总产氮量/g·d <sup>-1</sup>
牛粪	20.0	87.4
牛尿	10.0	80.0
猪粪	2.0	11.8
猪尿	3.3	10.9
羊粪	2.6	19.5
禽粪	0.125	1.30
粪便(人)	—	1.61
污水(人)	—	8.38

表2 各污染物流失率(%)

Table 2 Losing rate of pollutants(%)

流失途径	污染物	耕地	地表水	地下水
化肥	N <sub>化肥</sub>	100	11	30
畜禽粪便	N <sub>畜禽</sub>	90	30	20
农村生活	N <sub>生活</sub>	90/0	粪尿(10 <sub>农村</sub> +90 <sub>城镇</sub> ) 污水(85 <sub>农村</sub> +15 <sub>城镇</sub> )	20

注:生活污染物中耕地一栏“/”左侧代表农村粪尿的流失量,“/”右侧代表生活污水的流失量;地表水一栏,农村粪尿、污水的流失率分别为10%、85%,城镇粪尿、污水的流失率分别为90%、15%;地下水中的氮素为农村粪尿施入农田的20%。

量,农村生活氮排放量包括农村居民生活粪污和城镇居民生活粪污氮素的排放量两部分。耕地氮素污染负荷、地表水氮素流失扩散浓度以及地下水硝态氮素扩散浓度的具体计算方法见表3。

### 2.3 水质健康风险评价模型

在本研究中将地下水认为是淮河流域地区主要的饮用水源,通过污染物流失地下水浓度来估算农业农村面源污染中氮素进入地下水硝态氮浓度范围,从宏观角度评价淮河流域地下水的健康风险指数。美国环境保护署(US EPA)官方网站提供的健康风险评价属性数据表明<sup>[35-36]</sup>,硝态氮为非致癌物质,故采用US EPA提供的非致癌风险评价模型进行饮用水的评价研究。

非致癌风险评价模型一般认为<sup>[37]</sup>,非致癌慢性危害以参考剂量为衡量标准,当目标物质暴露剂量超过参考剂量时,有可能产生毒害效应,通常用风险指数(HI)表示,它指目标物质暴露剂量率与参考剂量的比值,数学表达式为:

$$ADD = \frac{C \times IR \times EF \times ED}{BW \times AT} \quad (1)$$

$$HI = \frac{ADD}{R_f D} \quad (2)$$

式(1)中:ADD为暴露剂量,mg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>;C为硝态氮的浓度,mg·L<sup>-1</sup>;IR为每日饮水量,建议成人为2L·d<sup>-1</sup>;EF为暴露频率,采用365d·a<sup>-1</sup>;ED为饮水持续时间,表示人体终生摄入该物质的年数,平均寿命70a;BW为人的平均体重,采用70kg;AT为暴露发生的平均时间,非致癌物为30a×365d·a<sup>-1</sup>。式(2)中:HI为健康风险指数;R<sub>f</sub>D为地下水中目标物质的参考剂量,参考US EPA的饮用水健康标准,R<sub>f</sub>D取值为1.6mg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup><sup>[38]</sup>。评价标准:非致癌风险以“1”为评价标准,风险指数大于1,表明人体所承受的非致癌风险度较高,在不可接受范围内;反之,人体所承受的总非致癌

风险较低,可以接受。

## 3 结果与讨论

### 3.1 淮河流域耕地污染物时空分布

#### 3.1.1 淮河流域耕地污染总体状况

淮河流域1985年耕地数量、人口数量、化肥使用量和畜禽粪便量分别为1473.9万hm<sup>2</sup>、1.33亿人、462.8万t和2.04亿t。2015年,耕地、人口、化肥和畜禽粪便数量分别增加至1796.1万hm<sup>2</sup>、1.78亿人、1280.9万t和3.67亿t,相比1985年分别增加了21.8%、33.8%、178.3%和79.9%,其中农村生活、化肥施用和畜禽粪便TN排放量分别为42.17万、644.44万t和213.86万t。从图2中可以看出,耕地面积、人口数量和化肥使用量1985、1995、2005、2015年4个时间段呈现增加的趋势,而畜禽粪便量的最高值则出现在了2005年,表明近十年来淮河流域畜禽粪便量有减少的趋势。同时从《统计年鉴》中的数据能看出,近30年来,淮河流域畜禽养殖结构也出现了明显的变化,2000年左右大牲畜养殖所占比例较大,又因为

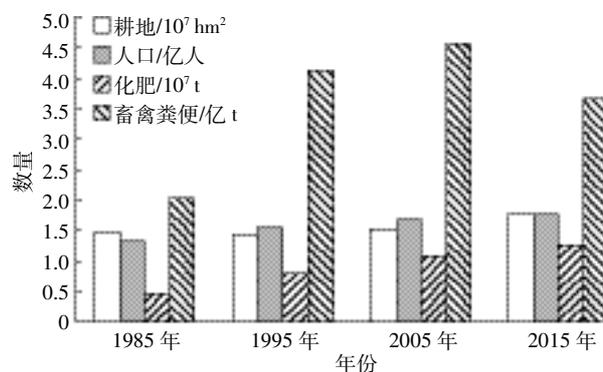


图2 淮河流域1985—2015年耕地、人口、化肥和畜禽粪便数量  
Figure 2 The number of cultivated land, population, fertilizer and livestock and poultry droppings of Huaihe River Basin during 1985 to 2015

表3 淮河流域农业面源氮排放量及污染负荷计算

Table 3 Estimating method of nitrogen emission and pollution load of agricultural surface

项目	计算公式
化肥施用	化肥氮施用量=氮肥施用量(折纯量)+复合肥施用量(折纯量)×氮素含氮系数
畜禽养殖	畜禽废物还田氮量=畜禽养殖量×废物产生系数×废物含氮系数×畜禽废物还田比例
农村生活	农村粪污还田氮量=农村人口数量×农村人粪尿产生系数×农村人粪尿含氮系数×农村人粪尿还田比例
	城镇粪污还田氮量=城镇人口数量×城镇人粪尿产生系数×城镇人粪尿含氮系数×城镇人粪尿还田比例
氮素污染负荷	耕地氮素负荷量=(化肥施氮量+畜禽粪污还田氮量+农村生活还田氮量+城镇粪污还田氮量)/耕地面积
	地表水流失氮扩散浓度=(畜禽粪污还田氮量×流失率+化肥氮素总量×流失率+农村生活排放氮量×流失率)/地表水资源量
	地下水流失硝态氮扩散浓度=(畜禽粪污还田氮量×流失率+化肥氮素总量×流失率+农村生活排放氮量×流失率)×硝态氮转化系数/地下水资源量

其单体的排污量远大于猪、羊和家禽等畜禽的排污量(表1),故1995—2005年畜禽的排污量处在较高水平。相比畜禽排污量,耕地、人口和化肥使用量的增速在逐渐放缓,说明随着国家相关政策法规的出台,特别是针对种养结合和化肥减施政策的执行起到显著作用。但由于淮河流域耕地和人口的基数较大,总体农业农村面源污染物排放总量仍处在一个较大的范围,需要引起人们重视。

### 3.1.2 淮河流域耕地 TN 污染负荷情况

研究结果表明,1985年淮河流域农业面源污染中,农村生活、化肥和畜禽粪便中氮素耕地污染负荷的平均值分别为13.59、117.93 kg·hm<sup>-2</sup>和69.97 kg·hm<sup>-2</sup>(由于1985年各省市统计年鉴中数据部分缺失,用1986—1990年各省相应数据均值分别代替乡村人口数量、氮肥使用量和畜禽养殖量的缺失部分进行估算);2015年(表4),农村生活、化肥和畜禽粪便氮素的耕地负荷分别达到了17.74、358.79 kg·hm<sup>-2</sup>和119.07 kg·hm<sup>-2</sup>,相比1985年,分别增加了44.36%、230.7%和151.9%。其中化肥中氮素的增速最为明显,而畜禽粪便中氮素的总量虽然不是近30年来最高的,但仍然增加了1.5倍多,表明淮河流域种植业和养殖业的发展十分迅速。分析比较氮素污染物来源发现,2015年淮河流域氮素污染物中,化肥、畜禽粪便

和农村生活三者氮素排放量分别占到TN的72.39%、24.03%和3.58%,表明化肥的施用仍是氮素污染的主要来源,畜禽粪便的排放次之,居民生活的排放所占比例最低。耕地氮素污染负荷量分析表明,农田种植>畜禽养殖>农村生活,因此,流域环境治理的重点应是农田种植与畜禽养殖。

根据朱兆良<sup>[39]</sup>的研究,为了控制化肥污染,每年大面积耕地的施氮量应控制在150~180 kg·hm<sup>-2</sup>的水平。如图3所示,1985年淮河流域大部分城市氮素的使用水平基本满足这一水平,只有部分城市的施氮量在200~300 kg·hm<sup>-2</sup>,可以认为整个淮河流域未对农田产生污染或基本处在一个较低污染的水平。而到了2015年,淮河流域所有的35个地级市耕地的氮素施用负荷均超过180 kg·hm<sup>-2</sup>,即便不使用畜禽粪便作为肥料,化肥施氮负荷量最低的亳州也达到208 kg·hm<sup>-2</sup>,最高的连云港市达到669.80 kg·hm<sup>-2</sup>,整个淮河流域化肥氮的平均负荷已经达到了358.79 kg·hm<sup>-2</sup>,几乎是控制水平上限的2倍,当再使用畜禽粪便作为肥料时,使得农田氮负荷更加严重,其中有15个城市的TN耕地负荷量超过了500 kg·hm<sup>-2</sup>,其中江苏的徐州、连云港,河南的平顶山3个城市的TN负荷超过700 kg·hm<sup>-2</sup>,使得耕地中的氮素超过承载量,更容易流失和下渗,造成周边地表水与地下水氮素浓度大量

表4 2015年淮河流域农业面源污染中氮素耕地污染负荷(kg·hm<sup>-2</sup>)

Table 4 TN carrying capacity of non-point source pollution on farmland of the Huaihe River Basin of 2015(kg·hm<sup>-2</sup>)

地市名称	农村生活	化肥	畜禽粪便	地市名称	农村生活	化肥	畜禽粪便
徐州	15.82	570.86	139.57	枣庄	20.90	462.53	149.09
南通	16.53	302.71	104.44	济宁	17.72	332.26	147.73
连云港	31.63	669.80	83.32	泰安	18.13	250.68	187.40
淮安	23.04	548.71	60.22	日照	14.87	218.99	107.38
盐城	19.37	414.35	87.86	临沂	15.55	208.14	99.93
扬州	30.60	394.75	43.41	菏泽	15.43	332.91	143.33
泰州	35.76	340.24	67.38	郑州	22.49	331.24	130.77
宿迁	28.10	523.40	74.95	开封	17.92	377.11	196.80
合肥	11.70	244.74	77.55	洛阳	20.74	260.25	157.63
蚌埠	11.69	417.05	108.96	平顶山	22.74	557.28	231.37
淮南	6.17	469.19	74.53	许昌	17.63	401.17	174.87
淮北	14.23	302.66	51.98	漯河	20.79	441.73	177.70
滁州	8.05	241.19	51.32	南阳	16.29	378.54	154.34
阜阳	20.73	263.25	103.67	商丘	18.57	504.84	162.98
宿州	16.54	268.91	104.06	信阳	14.77	362.03	105.65
六安	17.74	219.24	67.31	周口	18.72	449.16	147.16
亳州	14.78	207.60	59.80	驻马店	15.82	302.48	170.68
淄博	19.89	224.87	117.10	平均	17.74	358.79	119.07

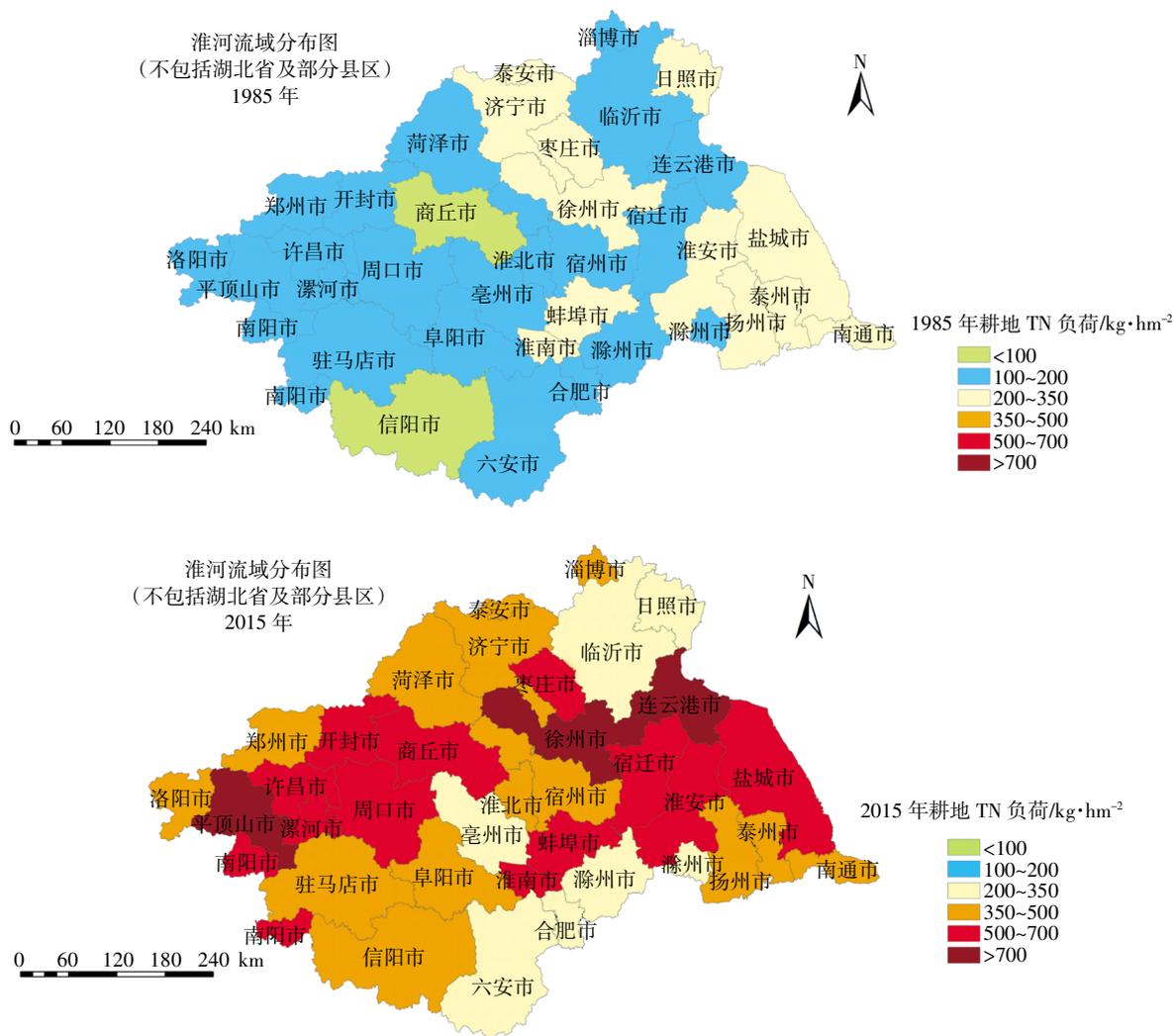


图3 淮河流域面源污染物 TN 耕地污染负荷空间分布  
Figure 3 Spatial variation on pollution load of TN of 1985 and 2015

增加。

以产粮区为例,在化肥习惯施用量为  $225 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$  纯氮的基础上,猪粪当量以  $15 \sim 30 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$  为宜,最大施用量以  $45 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$  为上限<sup>[32]</sup>,笔者认为在此基础上,将猪粪当量转化为和化肥统一的纯氮量更为直观,即化肥习惯施用量为  $225 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$  纯氮的基础上,氮当量以每年  $88.2 \sim 176.4 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$  为宜,最大施用量以  $264.6 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$  为上限。当化肥使用量超过一定范围时,若仍然按照习惯化肥使用量的情况,单独检验畜禽粪便氮的污染风险是不全面的。在本研究中,参考沈根祥等<sup>[32]</sup>提出的畜禽粪便负荷警报值模型  $r=Q/P$  (畜禽粪便猪粪当量负荷与当地农田以猪粪当量计的有机肥最大适宜施用量的比值),将其模型进行扩展,以化肥和畜禽粪便 TN 负荷量建立污染负荷风险模型:

$$r_N = (Q_1/P_1 + Q_2/P_2) / 2$$

式中:  $Q_1$  为化肥氮负荷;  $Q_2$  为畜禽粪便与农村生活负荷之和;  $P_1$  为化肥习惯施用量  $225 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ ;  $P_2$  为畜禽粪便最大施用量  $264.6 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$ 。

如表5所示,1985年各市 TN 的农田负荷风险指数均值为 0.49,属于 II 级稍有污染级别,只有江苏的徐州和河南的商丘、信阳风险指数超过 0.7,达到 III 级水平,认为对环境存在污染的风险。而到 2015 年,35 个市的 TN 污染负荷风险指数均值为 1.06,表明淮河整体处于 IV 级预警级别,对环境污染较为严重。在整个流域中,农田 TN 负荷对环境没有或轻微有污染的城市仅有 4 个,其他 31 个城市均不同程度对环境造成污染。其中江苏的徐州、连云港,河南的平顶山 3 个城市的预警级别达到最高的 V,在淮河流域中属于污染风险严重的地区,应当引起当地的注意,控制化肥

表5 1985年和2015年耕地TN污染负荷风险指数和预警级别

Table 5 Environmental risk value and risk level of TN load of farmland in 1985 and 2015

地市名称	风险指数 $r$		预警级别		地市名称	风险指数 $r$		预警级别	
	1985	2015	1985	2015		1985	2015	1985	2015
徐州	0.72	1.56	Ⅲ	V	枣庄	0.56	1.35	Ⅱ	Ⅳ
南通	0.43	0.90	Ⅱ	Ⅲ	济宁	0.49	1.05	Ⅱ	Ⅳ
连云港	0.54	1.71	Ⅱ	V	泰安	0.44	0.95	Ⅱ	Ⅲ
淮安	0.47	1.38	Ⅱ	Ⅳ	日照	0.38	0.72	Ⅰ	Ⅲ
盐城	0.38	1.12	Ⅰ	Ⅳ	临沂	0.33	0.68	Ⅰ	Ⅱ
扬州	0.51	1.02	Ⅱ	Ⅳ	菏泽	0.53	1.04	Ⅱ	Ⅳ
泰州	0.41	0.95	Ⅱ	Ⅲ	郑州	0.58	1.03	Ⅱ	Ⅳ
宿迁	0.37	1.36	Ⅰ	Ⅳ	开封	0.66	1.24	Ⅱ	Ⅳ
合肥	0.44	0.71	Ⅱ	Ⅲ	洛阳	0.45	0.92	Ⅱ	Ⅲ
蚌埠	0.57	1.15	Ⅱ	Ⅳ	平顶山	0.59	1.72	Ⅱ	V
淮南	0.49	1.20	Ⅱ	Ⅳ	许昌	0.52	1.26	Ⅱ	Ⅳ
淮北	0.34	0.80	Ⅰ	Ⅲ	漯河	0.68	1.36	Ⅱ	Ⅳ
滁州	0.29	0.65	Ⅰ	Ⅱ	南阳	0.57	1.16	Ⅱ	Ⅳ
阜阳	0.41	0.82	Ⅱ	Ⅲ	商丘	0.78	1.46	Ⅲ	Ⅳ
宿州	0.46	0.83	Ⅱ	Ⅲ	信阳	0.75	1.03	Ⅲ	Ⅳ
六安	0.28	0.65	Ⅰ	Ⅱ	周口	0.68	1.31	Ⅱ	Ⅳ
亳州	0.25	0.60	Ⅰ	Ⅱ	驻马店	0.53	1.02	Ⅱ	Ⅳ
淄博	0.40	0.76	Ⅰ	Ⅲ	平均	0.49	1.06	Ⅱ	Ⅳ

注: $r \leq 0.4$ ,为Ⅰ级,无污染; $0.4 < r \leq 0.7$ ,为Ⅱ级,稍有污染; $0.7 < r \leq 1.0$ ,为Ⅲ级,有污染; $1.0 < r \leq 1.5$ ,为Ⅳ级,污染较严重; $r > 1.5$ ,为Ⅴ级,污染严重<sup>[9]</sup>。

及畜禽粪便的使用。

依据3种污染源在流域空间内的污染排放强度贡献大小,对流域35个地级市耕地排放强度数据进行聚类分析,将污染源聚类分成5种污染类型(由于农村生活污染贡献比例很小,在此只考虑化肥型、畜禽粪便型和化肥畜禽粪便复合污染型,分类依据见表6),即:畜禽污染型、化肥污染型、复合高污染区、复合中污染区以及复合低污染区,分布如图4所示。化肥型是流域污染物来源中施用化肥产生的污染量最大、贡献比例最高的类型,集中分布在淮河中下游的河南、安徽以及江苏省的苏北大部分城市,污染平均贡献率为60%。该类型地市多地处国家粮食主产区,粮食增产压力大,农业高度集约化生产中化肥过量施用是主要因素。畜禽污染型是流域污染物的另一个主要

表6 污染类型分类依据

Table 6 Classification standard of pollution types

污染类型	化肥施用/ $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$	畜禽粪便排放/ $\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$
复合高污染区	$>400$	$>170$
复合中污染区	300~400	100~170
复合低污染区	$<300$	$<100$
化肥型污染区	$>400$	$<170$
畜禽型污染区	$<400$	$>170$

来源。集中分布在河南省中南部、淮河上游的颍河、北汝河、沙河、贾鲁河及清溪河流域,面积为54 907  $\text{km}^2$ ,畜禽养殖污染平均贡献率为35%,包括驻马店、开封和泰安市等3个市区。该区域农作物产量高,农村劳动力和饲料供给充足,畜禽养殖量大。值得注意的是位于淮河上游河南省境内的平顶山、许昌和漯河3个地市属于负荷高污染型地区,化肥和畜禽粪便TN污染物单位耕地排放量均处在较高水平。故针对耕地污染负荷方面,对化肥型、畜禽型和复合高污染型区域应加强种养结合、资源化和产业化循环利用等方法控制污染物总量的排放。

### 3.2 淮河流域水体面源污染氮素污染情况

#### 3.2.1 淮河流域地表水TN污染物扩散情况

农业面源污染中对地表水造成污染的主要污染物以TN、TP、COD等为主,由于淮河流域所处的地理位置特殊,水系比较发达,近10年降雨量在1100 mm以上,使得农业面源中的农村生活、化肥和畜禽粪便等污染物很容易随地表径流流失到周边水体当中去。根据计算,2015年淮河流域通过农村生活、化肥、畜禽粪便流失到周边地表水体的TN分别达到9.28万、70.88万t和64.15万t,总量达到144.33万t。由于各地市地表水资源量差别较大,从而使各地市污染物的

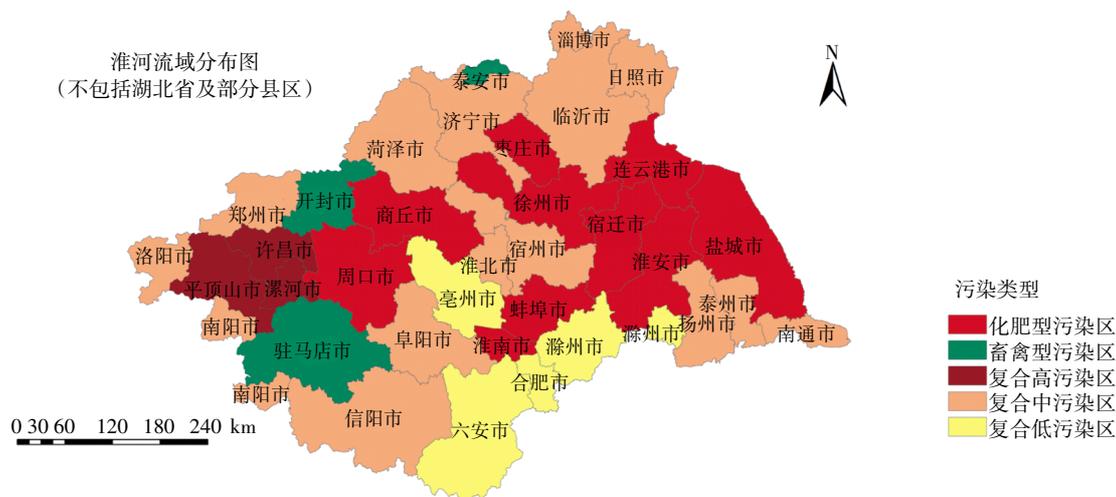


图4 2015年淮河流域5种污染类型空间分布

Figure 4 Spatial variation of 5 kinds of pollution in the Huaihe River Basin

扩散浓度相差很大。根据2015年地表水资源量计算得出各地市TN的扩散浓度范围为 $2.88\sim 155.92\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,平均值为 $35.86\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (表7)。其中农村生活、化肥和畜禽粪便污染物的平均扩散浓度为 $2.11$ 、 $16.89\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $16.85\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,分别占总扩散浓度的 $5.89\%$ 、 $47.10\%$ 和 $46.99\%$ ,相比耕地污染负荷,农村生活所占比例略有增加,畜禽粪便污染物所占比例显著增加,基本与化肥污染物扩散浓度持平,说明畜禽粪便污染

物和农村生活污染物相比化肥氮素更容易流失进入水体造成水体污染。

图5为淮河流域面源污染物TN地表水扩散浓度的空间分布图。从总体上看,由于受土壤、地形、气候、水文、土地利用和管理方式等众多复杂因素的影响,淮河流域面源污染物TN的地表水扩散浓度空间差异明显,但存在一定的空间变化趋势。据估算,其中TN扩散浓度最高的商丘、开封和菏泽3个城市的扩

表7 2015年淮河流域面源污染氮素地表水扩散浓度( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )Table 7 The surface water diffusion concentration of nitrogen pollutants of the Huaihe River Basin in 2015( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )

地市名称	农村生活	化肥	畜禽粪便	总量	地市名称	农村生活	化肥	畜禽粪便	总量
徐州	1.29	17.52	11.68	30.48	枣庄	2.09	17.49	15.38	34.96
南通	0.75	5.17	4.86	10.77	济宁	3.52	24.92	30.22	58.66
连云港	1.44	11.54	3.92	16.90	泰安	2.64	13.80	28.13	44.57
淮安	0.84	7.58	2.27	10.69	日照	1.10	6.12	8.18	15.40
盐城	0.94	7.59	4.39	12.92	临沂	0.97	4.92	6.44	12.33
扬州	1.13	5.52	1.66	8.31	菏泽	7.04	57.33	67.32	131.68
泰州	1.67	6.01	3.24	10.92	郑州	4.31	23.95	25.78	54.04
宿迁	1.55	10.92	4.26	16.73	开封	5.05	40.11	57.08	102.24
合肥	0.90	7.07	6.11	14.07	洛阳	1.21	5.75	9.49	16.45
蚌埠	0.78	10.46	7.45	18.69	平顶山	1.67	15.44	17.48	34.59
淮南	0.95	27.23	11.80	39.97	许昌	4.68	40.21	47.80	92.70
淮北	1.26	10.14	4.75	16.15	漯河	4.74	38.04	41.74	84.53
滁州	0.42	4.79	2.78	8.00	南阳	0.81	7.09	7.89	15.79
阜阳	1.37	6.56	7.05	14.98	商丘	7.68	78.83	69.41	155.92
宿州	1.47	9.03	9.52	20.02	信阳	0.59	5.44	4.33	10.35
六安	0.30	1.40	1.17	2.88	周口	4.26	38.59	34.48	77.32
亳州	1.33	7.04	5.53	13.91	驻马店	1.38	9.93	15.29	26.60
淄博	1.82	7.77	11.03	20.61	平均	2.11	16.89	16.85	35.86

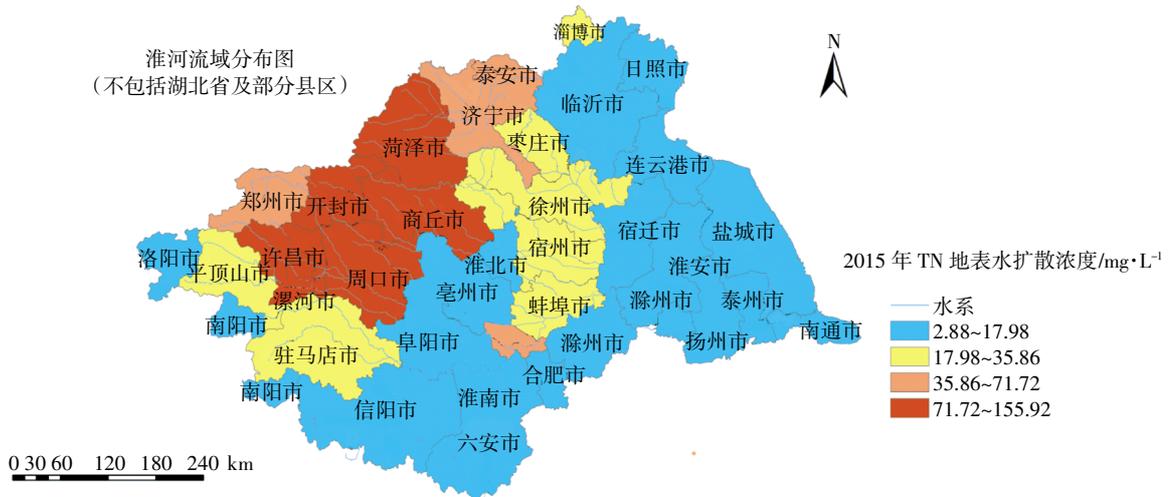


图5 淮河流域面源污染物 TN 地表水扩散浓度空间分布

Figure 5 Spatial variation of nitrogen pollutant diffusion concentration in surface water in the Huaihe River Basin

散浓度超过了  $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 主要与这些地区种植业和养殖业发达有关, 同时由于这些地区地表水资源量相对较小, 从而造成污染物扩散浓度偏高。污染物扩散浓度最高的商丘市 TN 扩散浓度为  $155.92 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 最低的六安市仅为  $2.88 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 相差 50 多倍, 说明流域内不同地区污染物扩散浓度分布存在一定区域空间分异现象。污染物扩散浓度总体空间分布情况为: 淮河流域西北部地区扩散浓度高于东南部, 淮河干流北部高于干流南部。污染浓度最高的地区主要分布在淮河上游河南的许昌、漯河、开封、周口、商丘以及山东的菏泽等地区, 扩散浓度较高的地区分布在与接壤的河南境内的郑州和山东境内的济宁、泰安以及安徽境内的淮南地区, 西部河南的平顶山和驻马店、山东的淄博和枣庄、安徽的宿州和蚌埠以及江苏的徐州污染物扩散浓度较低, 主要在高浓度扩散区的最外围, 围绕较低浓度区分布, 淮河干流及以南地区、山东临沂、日照以及江苏省等绝大部分区域污染物扩散浓度最低。流域污染物扩散浓度分布总体上呈现出以商丘、开封和菏泽 3 个城市为中心向四周辐射形成一个由里向外的污染物扩散浓度逐渐减少的圈层结构。

### 3.2.2 淮河流域地下水硝态氮污染物扩散情况

进入耕地土壤中的氮素, 在降雨和灌溉水作用下, 小部分直接以化合物形式进入土壤下层, 大部分以可溶性  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NO}_2^-$  和  $\text{NH}_4^+$  形式淋洗到土壤下层。由于土壤颗粒对  $\text{NH}_4^+$  的吸附能力强, 对硝酸根离子的吸附能力很弱, 造成农田土壤中氮素的淋溶形态以硝态氮为主, 导致硝态氮在深层土壤中大量累积甚至进入浅层地下水, 而铵态氮则主要集中分布在土壤表层。

此外, 对于作为硝化和反硝化过程中间产物的  $\text{NO}_2^-$ , 由于其存在时间短, 淋洗过程并不重要<sup>[40]</sup>。硝酸盐在地下水中的含量通常很低, 当地下水中硝态氮 ( $\text{NO}_3^-$ -N) 含量超过  $3.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  时, 通常认为是由人类活动污染所致<sup>[41]</sup>。由于人们为了追求粮食的高产, 不断地增加农田化肥和有机肥的用量, 以及农村生活污水的随意排放, 使得农业活动和生活污水成为地下水污染的主要原因。

如表 8 所示, 据估算 2015 年淮河流域农业面源污染中 TN 进入地下水的总量约为 216.49 万 t, 各地市由此而产生的地下水硝态氮的浓度范围在  $9.16 \sim 61.29 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  之间, 整个淮河流域的平均值为  $32.44 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。在不考虑其他条件对地下水中硝态氮影响的情况下, 已然超过了世界卫生组织规定的饮用水中硝酸盐氮含量  $11.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 美国规定的  $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 我国规定的  $20 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  的限量标准。其中安徽省的淮北、阜阳、宿州、六安和亳州市估算浓度小于我国的限量标准。硝态氮浓度最高的地区主要分布在安徽省的合肥、淮南, 山东省的枣庄、泰安、日照、临沂等 6 个城市, 地下水硝态氮估算浓度均达到我国限量标准的 2.5 倍多, 虽然这些地区耕地和地表水的污染负荷不高, 但我们发现这些地区地下水资源量相对匮乏, 导致地下水硝态氮的浓度呈现较高的水平。从空间分布上看(图 6), 淮河流域地下水氮素扩散浓度与地表水相似, 淮河流域西北部地区地下水硝态氮估算浓度整体高于东南地区。淮河流域西部河南省北部的大部分城市浓度也处在一个较高水平, 与当地种植和养殖业规模较大有关。河南省南部城市虽然污染物排放总量

表8 2015年淮河流域面源污染氮素地下水扩散浓度和健康风险指数

Table 8 Diffusion concentration of nitrogen in surface water and underground water of the Huaihe River Basin in 2015

地市名称	地下水/ mg·L <sup>-1</sup>	风险指数	地市名称	地下水/ mg·L <sup>-1</sup>	风险指数
徐州	24.98	1.33	枣庄	49.61	2.65
南通	24.39	1.30	济宁	38.67	1.96
连云港	31.88	1.70	泰安	61.29	3.18
淮安	20.59	1.10	日照	53.22	2.84
盐城	29.51	1.57	临沂	55.35	2.95
扬州	27.57	1.47	菏泽	31.28	1.67
泰州	28.60	1.53	郑州	23.18	1.24
宿迁	23.85	1.27	开封	44.34	2.36
合肥	49.15	2.62	洛阳	20.50	1.09
蚌埠	22.48	1.20	平顶山	48.05	2.56
淮南	54.56	2.91	许昌	41.50	2.21
淮北	14.52	0.77	漯河	41.88	2.23
滁州	26.78	1.43	南阳	32.96	1.76
阜阳	17.16	0.92	商丘	44.35	2.37
宿州	17.49	0.93	信阳	21.59	0.99
六安	9.16	0.49	周口	35.01	1.87
亳州	13.59	0.72	驻马店	32.36	1.73
淄博	27.40	1.46	平均	32.44	1.73

较高,但由于地下水资源极其丰富,使得地下水硝态氮估算浓度处在一个相对较低水平;安徽省和江苏省大部分城市污染物总量相对较低,以及地下水资源量处在淮河流域的中等水平,最终使得安徽省和江苏省大部分城市的地下水硝态氮估算浓度相对较低。但从总体水平来看,硝态氮的浓度水平要高于国家限量标

准。通常土壤中不同形态氮素的淋溶损失强度由大到小依次为硝态氮、亚硝态氮、铵态氮、有机氮,同时渗漏水中氮素的浓度与土壤中氮素的淋失量随施肥量的增加而增加。由此可见,淮河流域在农村生活、化肥和畜禽粪便有机肥氮素污染物的排放方面对地下水硝态氮的浓度升高存在较大风险。

### 3.2.3 淮河流域地下水硝态氮健康风险评价

本研究根据国家《生活饮用水卫生标准》(GB 5749—2006)<sup>[42]</sup>中硝酸盐的最大允许摄入量及《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002)<sup>[43]</sup>中硝酸盐浓度的分级标准,根据健康风险指数数值的均值、最大值和最小值以及统计频率进行5级分区: $HI \leq 0.5$ 为I级水平,没有风险; $0.5 < HI \leq 1$ 为II级水平,存在潜在风险; $1 < HI \leq 1.5$ 为III级水平,风险较轻; $1.5 < HI \leq 2.5$ 为IV级水平,风险较重; $HI > 2.5$ 为V级水平,污染严重。经非致癌风险评价模型[公式(1)和公式(2)]计算得出,淮河流域各地级市地下水硝态氮健康风险指数HI范围在0.49~3.18之间,整个流域健康风险指数的平均值为1.73,达到IV级风险水平,地下水硝态氮潜在健康风险较为严重,I~V级各风险级别所占百分比情况为2.86%、14.29%、31.43%、31.43%和20%,健康风险阈值超过“1”的城市数量占整个淮河流域的82.86%,说明淮河流域范围内从估算地下水硝态氮的结果来看其对人体存在健康风险。

如图7所示,整个流域的空间分布情况是西北部地区整体高于东南部地区,风险指数最低的为安徽省的六安市,位于淮河流域的最南部,也是整个淮河流域唯一的健康风险级别为I级水平的城市。以六安市为

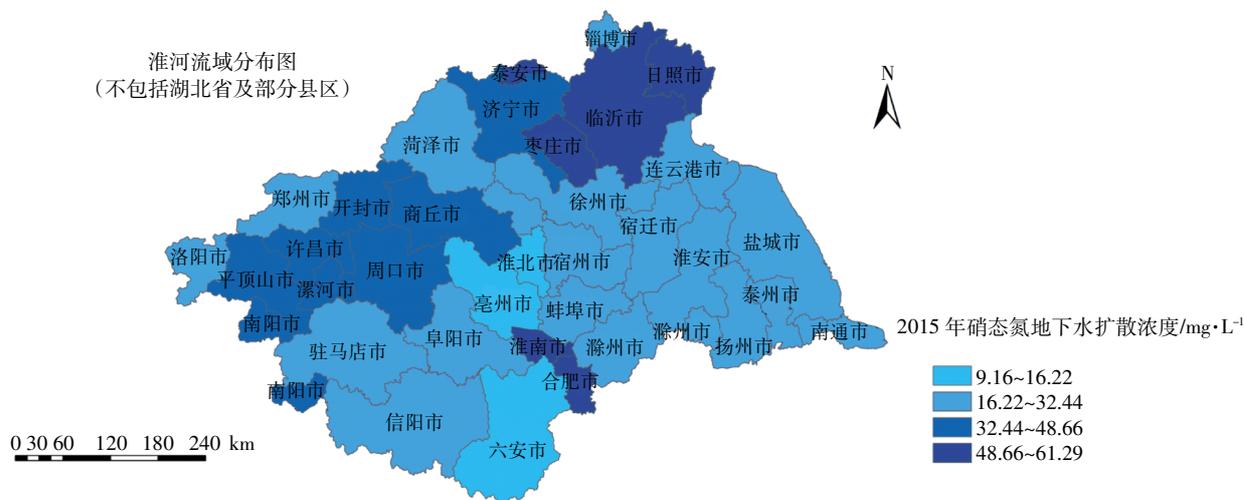


图6 淮河流域面源污染物硝态氮地下水扩散浓度空间分布

Figure 6 Spatial variation of nitrate nitrogen pollutant diffusion concentration in ground water in the Huaihe River Basin in 2015

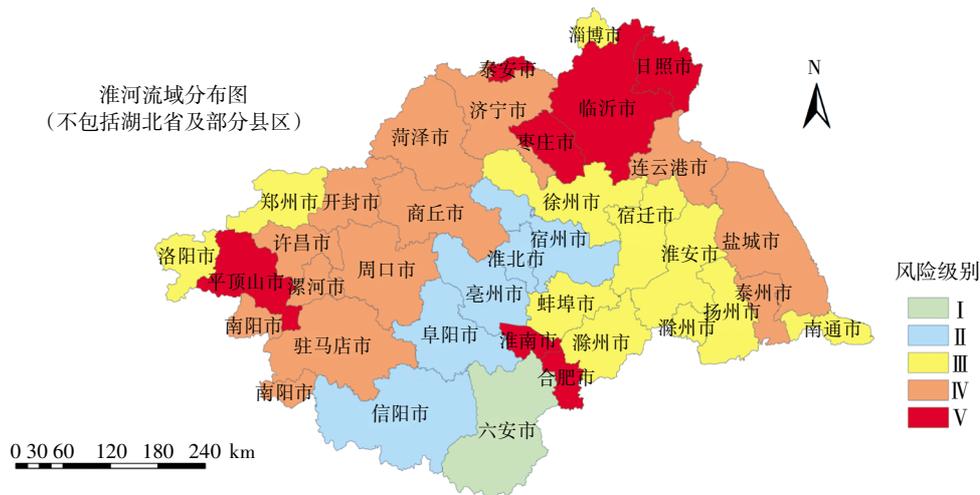


图7 淮河流域地下水健康风险指数空间分布

Figure 7 Spatial variation of groundwater health risk index in the Huaihe River Basin, in 2015

顶点向北延伸,健康风险指数有逐渐增加的趋势,并且呈现一定的聚集性,淮河流域最北部山东省境内的泰安、枣庄、临沂和日照等城市,健康风险级别最高。但也存在个别情况,淮河流域南部安徽省的合肥市和淮南市,健康风险等级达到V级水平,我们发现主要原因是相对其他淮河流域城市来说,健康风险级别较高的城市地下水资源总量相对匮乏,再加之此类地区农业面源污染物TN排放量处在较高水平,使得对地下水硝态氮的影响尤为显著,应注意饮用水中硝酸盐的污染问题。

#### 4 结论

(1)2015年,淮河流域农村生活、化肥使用和畜禽粪便TN排放量分别为42.17万、644.44万t和213.86万t,化肥、畜禽粪便和农村生活三者氮素排放量分别占到TN的72.39%、24.03%和3.58%,化肥的施用仍是氮素污染的主要来源。耕地氮素污染负荷方面,农田种植>畜禽养殖>农村生活。地表水氮素污染负荷方面,农田种植≈畜禽养殖>农村生活。

(2)淮河流域内不同地区由于受耕地数量和水资源量的影响,污染物负荷强度空间分布存在一定区域空间分异现象,流域总体污染负荷强度呈现西北部地区高于东南部地区,流域西北部地区应作为淮河流域面源污染优先控制区。

(3)淮河流域各地级市地下水硝态氮估算浓度范围为9.16~61.29 mg·L<sup>-1</sup>,健康风险指数HI范围在0.49~3.18之间,健康风险阈值超过“1”的城市数量占整个淮河流域的82.86%,应注意饮用水中硝酸盐的污染问题。

#### 参考文献:

- [1] Haregeweyn N, Yohannes F. Testing and evaluation of the agricultural non-point source pollution model (AGNPS) on Augucho catchment, western Hararghe, Ethiopia[J]. *Agriculture Ecosystems & Environment*, 2003, 99(1/2/3):201-212.
- [2] 陈效民,吴华山,孙静红.太湖地区农田土壤中硝态氮和铵态氮的时空变异[J]. *环境科学*, 2006, 27(6):1217-1222.  
CHEN Xiao-min, WU Hua-shan, SUN Jing-hong. The Taihu Lake region of farmland soil nitrate nitrogen and ammonium nitrogen in space and time variation[J]. *Environmental Science*, 2006, 27(6):1217-1222.
- [3] Villamizar M L, Brown C D. Modelling triazines in the valley of the River Cauca, Colombia, using the annualized agricultural non-point source pollution model[J]. *Agricultural Water Management*, 2016, 177:24-36.
- [4] 陈敏鹏,陈吉宁.中国种养系统的氮流动及其环境影响[J]. *环境科学*, 2007, 28(10):2342-2349.  
CHEN Min-peng, CHEN Ji-ning. Nitrogen flow in farming-feeding system and its environmental impact in China[J]. *Environmental Science*, 2007, 28(10):2342-2349.
- [5] Amaya F L, Gonzales T A, Hernandez E C, et al. Estimating point and non-point sources of pollution in Biñan River Basin, the Philippines[J]. *APCBEE Procedia*, 2012, 1:233-238.
- [6] 龙军,张黎明,沈金泉,等.福建省耕地土壤全氮密度和储量动态变化[J]. *生态学报*, 2015, 35(12):3959-3969.  
LONG Jun, ZHANG Li-ming, SHEN Jin-quan, et al. Dynamic change of soil total nitrogen density and storage in cropland of Fujian Province, China[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2015, 35(12):3959-3969.
- [7] Di H J, Cameron K C. Nitrate leaching in temperate agroecosystems: Sources, factors and mitigating strategies[J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 2002, 64(3):237-256.
- [8] Schroder J J, Aarts H F M, Ten Berge H F M, et al. An evaluation of whole-farm nitrogen balances and related indices for efficient nitrogen use[J]. *European Journal of Agronomy*, 2003, 20(1/2):33-44.
- [9] D'haene K, Magyar M, De Neve S, et al. Nitrogen and phosphorus bal-

- ances of Hungarian farms[J]. *European Journal of Agronomy*, 2007, 26(3):224-234.
- [10] Kopinski J, Tujaka A, Igras J. Nitrogen and phosphorus budgets in Poland as a tool for sustainable nutrients management[J]. *Acta Agriculturae Slovenica*, 2006, 87(1):173-181.
- [11] 董章杭, 李季, 孙丽梅. 集约化蔬菜种植区化肥施用对地下水硝酸盐污染影响的研究——以“中国蔬菜之乡”山东省寿光市为例[J]. *农业环境科学学报*, 2005, 24(6):1139-1144.  
DONG Zhang-hang, LI Ji, SUN Li-mei. Nitrate contamination in the ground water of intensive vegetable cultivation areas in Shouguang City, Shandong Province, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2005, 24(6):1139-1144.
- [12] 刘宏斌, 李志宏, 张云贵, 等. 北京平原农区地下水硝态氮污染状况及其影响因素研究[J]. *土壤学报*, 2006, 43(3):405-413.  
LIU Hong-bin, LI Zhi-hong, ZHANG Yun-gui, et al. Nitrate contamination of groundwater and its affecting factors in rural areas of Beijing plain[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2006, 43(3):405-413.
- [13] Vrzelj J, Vukovićgačić B, Kolarević S, et al. Determination of the sources of nitrate and the microbiological sources of pollution in the Sava River Basin[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 573:1460-1471.
- [14] 张维理, 武淑霞, 冀宏杰, 等. 中国农业面源污染形势估计及控制对策 I. 21 世纪初期中国农业面源污染的形势估计[J]. *中国农业科学*, 2004, 37(7):1008-1017.  
ZHANG Wei-li, WU Shu-xia, JI Hong-jie, et al. Estimation of agricultural non-point source pollution in China and the alleviating strategies I. Estimation of agricultural non-point source pollution in China in early 21 Century[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2004, 37(7):1008-1017.
- [15] 侯彦林, 周永娟, 李红英, 等. 中国农田氮面源污染研究: I 污染类型区划和分省污染现状分析[J]. *农业环境科学学报*, 2008, 27(4):1271-1276.  
HOU Yan-lin, ZHOU Yong-juan, LI Hong-ying, et al. Nitrogen non-point field pollution in China: I regionalization of pollution types and pollution analysis in different provinces[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2008, 27(4):1271-1276.
- [16] 侯彦林, 李红英, 赵慧明. 中国农田氮肥面源污染估算方法及其实证: IV 各类型区污染程度和趋势[J]. *农业环境科学学报*, 2009, 28(7):1341-1345.  
HOU Yan-lin, LI Hong-ying, ZHAO Hui-ming. Estimation and empirical analysis of non-point field pollution in China: IV trend and pollution extent of different types areas[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2009, 28(7):1341-1345.
- [17] 陆轶峰, 李宗逊, 雷宝坤. 滇池流域农田氮、磷肥施用现状与评价[J]. *云南环境科学*, 2003, 22(1):34-37.  
LU Yi-feng, LI Zong-xun, LEI Bao-kun. Status and assessment of fertilizing the nitrogen fertilizer and phosphatic fertilizer to the field in Dianchi watershed[J]. *Yunnan Environmental Science*, 2003, 22(1):34-37.
- [18] 李如忠, 洪天求. 巢湖流域农业非点源污染控制对策研究[J]. *合肥工业大学学报(社会科学版)*, 2006, 20(1):105-110.  
LI Ru-zhong, HONG Tian-qiu. On countermeasures for agricultural non-point source pollution control in Chaohu Lake Basin[J]. *Journal of Hefei University of Technology(Social Sciences)*, 2006, 20(1):105-110.
- [19] 孟伟, 于涛, 张丙辉, 等. 黄河流域氮磷营养盐动态特征及主要影响因素[J]. *环境科学学报*, 2007, 27(12):2046-2051.  
MENG Wei, YU Tao, ZHANG Bing-hui, et al. Variation and influence factors of nitrogen and phosphorus transportation by the Yellow River[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2007, 27(12):2046-2051.
- [20] 赖敏, 王伟力, 郭灵辉. 长江中下游城市群农业面源污染氮排放评价及调控[J]. *中国农业资源与区划*, 2016, 37(8):1-11.  
LAI Min, WANG Wei-li, GUO Ling-hui. Assessment and control of nitrogen emission from agricultural non-point source in the urban agglomeration in the middle-lower Yangtze River belt[J]. *Chinese Journal of Agricultural Resources and Regional Planning*, 2016, 37(8):1-11.
- [21] 宋大平, 庄大方, 陈巍. 安徽省畜禽粪便污染耕地、水体现状及其风险评价[J]. *环境科学*, 2012, 33(1):110-116.  
SONG Da-ping, ZHUANG Da-fang, CHEN Wei. Risk assessment of the farmland and water contamination with the livestock manure in Anhui Province[J]. *Environmental Science*, 2012, 33(1):110-116.
- [22] 宋大平, 陈巍, 高彦征. 淮河流域氮肥农药施用的合理性及其环境影响[J]. *农业环境科学学报*, 2011, 30(6):1144-1151.  
SONG Da-ping, CHEN Wei, GAO Yan-zheng. The usage rationality and environmental impacts of chemical nitrogen fertilizer and pesticide in the Huaihe River basin, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2011, 30(6):1144-1151.
- [23] Knekt P, Järvinen R, Dich J, et al. Risk of colorectal and other gastrointestinal cancers after exposure to nitrate, nitrite and N-nitroso compounds: A follow-up study[J]. *Publication of the International Union Against Cancer*, 1999, 80(6):852-856.
- [24] McElroy J A, Trentham-Dietz A, Gangnon R E, et al. Nitrogen-nitrate exposure from drinking water and colorectal cancer risk for rural women in Wisconsin, USA[J]. *Journal of Water and Health*, 2008, 6(3):399-409.
- [25] 张庆乐, 王浩, 张丽青, 等. 饮水中硝态氮污染对人体健康的影响[J]. *地下水*, 2008, 30(1):57-60.  
ZHANG Qing-le, WANG Hao, ZHANG Li-qing, et al. Influence on nitrate nitrogen pollution to health in the drinkable water[J]. *Ground Water*, 2008, 30(1):57-60.
- [26] Gao Y, Yu G R, Luo C Y, et al. Groundwater nitrogen pollution and assessment of its health risks: A case study of a typical village in rural-urban continuum, China[J]. *Groundwater Nitrogen Pollution Risk*, 2012, 7(4):1-8.
- [27] 杨莉霞, 王琳, 姜朴, 等. 淮河流域某地区地下水污染健康风险评估[J]. *环境化学*, 2011, 30(9):1599-1603.  
YANG Li-xia, WANG Lin, JIANG Pu, et al. Health risk assessment of pollution in groundwater of Huaihe River basin[J]. *Environmental Chemistry*, 2011, 30(9):1599-1603.
- [28] Jacobsen B H, Hansen A L. Economic gains from targeted measures related to non-point pollution in agriculture based on detailed nitrate reduction maps[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 556:264-275.

- [29] 国家环境保护总局自然生态保护司. 全国规模化畜禽养殖业污染情况调查及防治对策[M]. 北京:中国环境科学出版社, 2002.  
The State Environmental Protection Administration Nature Conservation Department. The scale of livestock and poultry breeding pollution investigation and prevention countermeasures[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2002.
- [30] 中国农业科学院农业环境与可持续发展研究所, 环境保护部南京环境科学研究所. 第一次全国污染源普查畜禽养殖业源产排污系数手册[G]. 2009: 7-10.  
Institute of Environment and Sustainable Development in Agriculture, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Nanjing Institute of Environmental Sciences, MEP. The pollution discharge coefficient and emission coefficient manual of livestock and poultry breeding industry in China[G]. 2009: 7-10.
- [31] 段华平, 朱琳, 孙勤芳, 等. 农村环境污染控制区划方法与应用研究[J]. 中国环境科学, 2010, 30(3): 426-432.  
DUAN Hua-ping, ZHU Lin, SUN Qin-fang, et al. Regionalization method and its application of rural environmental pollution control[J]. *China Environmental Science*, 2010, 30(3): 426-432.
- [32] 沈根祥, 汪雅谷, 袁大伟. 上海市郊农田畜禽粪便负荷量及其警报与分级[J]. 上海农业学报, 1994, 10(增刊): 6-11.  
SHEN Gen-xiang, WANG Ya-gu, YUAN Da-wei. Loading amounts of animal feces and their alarming values and classification grades in Shanghai suburbs[J]. *Acta Agricultural Shanghai*, 1994, 10(Suppl): 6-11.
- [33] Kraft G J, Stites W. Nitrate impacts on groundwater from irrigated-vegetable systems in a humid north-central US sand plain[J]. *Agriculture Ecosystems & Environment*, 2003, 95(1): 63-74.
- [34] 陈淑峰, 吴文良, 胡克林, 等. 华北平原高产粮区不同水氮管理下农田氮素的淋失特征[J]. 农业工程学报, 2011, 27(2): 65-73.  
CHEN Shu-feng, WU Wen-liang, HU Ke-lin, et al. Characteristics of nitrate leaching in high yield farmland under different irrigation and fertilization managements in North China Plain[J]. *Transactions of the CSAE*, 2011, 27(2): 65-73.
- [35] US EPA. Risk assessment guidance for superfund; Human health evaluation manual[EB/OL]. <http://www.epa.gov/oswer/risk/assessment/ragsa/>. 2008[2014-03-05].
- [36] US EPA. Guidelines for exposure assessment[R/OL]. (1992-05-29) [2017-10-12]. [https://www.epa.gov/sites/production/files/2014-11/documents/guidelines\\_exp\\_assessment.pdf](https://www.epa.gov/sites/production/files/2014-11/documents/guidelines_exp_assessment.pdf).
- [37] Kentel E, Aral M M. 2D Monte Carlo versus 2D Fuzzy Monte Carlo health risk assessment[J]. *Stochastic Environmental Research and Risk Assessment*, 2005, 19(1): 86-96.
- [38] US EPA. Edition of the drinking water standards and health advisories; EPA 822-R-04-005[S]. Office of Water U S Environmental Protection Agency, 2004.
- [39] 朱兆良. 农田中氮肥的损失与对策[J]. 土壤与环境, 2000, 9(1): 1-6.  
ZHU Zhao-liang. Loss of fertilizer N from plants-soil system and the strategies and techniques for its reduction[J]. *Soil Environment Sciences*, 2000, 9(1): 1-6.
- [40] 左海军, 张奇, 徐力刚. 农田氮素淋溶损失影响因素及防治对策研究[J]. 环境污染与防治, 2008, 30(12): 83-89.  
ZUO Hai-jun, ZHANG Qi, XU Li-gang. Farmland nitrogen leaching losses affecting factors and countermeasures research[J]. *Environment Pollution & Control*, 2008, 30(12): 83-89.
- [41] 朴春香, 金东日, 刘发现. 延边蔬菜种植区地下水中硝酸盐污染分析[J]. 延边大学农学报, 2007, 29(3): 201-203.  
PIAO Chun-xiang, JIN Dong-ri, LIU Fa-xian. Analysis of the nitrate pollution of groundwater in vegetable planting area of Yanbian[J]. *Journal of Agricultural Science Yanbian University*, 2007, 29(3): 201-203.
- [42] 中华人民共和国卫生部, 国家标准化管理委员会. 生活饮用水卫生标准: GB 5749—2006[S]. 北京: 中国标准出版社, 2007.  
Ministry of Health of the People's Republic of China, National Standardization Administration Commission. Standards for drinking water quality: GB 5749—2006[S]. Beijing: Standards Press of China, 2007.
- [43] 中华人民共和国环境保护部, 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. 地表水环境质量标准: GB 3838—2002[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2002.  
State Environmental Protection Administration of the People's Republic of China, General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Environmental quality standard of surface water: GB 3838—2002[S]. Beijing: China Environmental Science Press, 2002.