

DOI: 10.5846/stxb201503030415

徐冯迪, 高扬, 董文渊. 我国南方红壤区氮磷湿沉降对森林流域氮磷输出及水质的影响. 生态学报, 2016, 36(20): - .

Xu F D, Gao Y, Dong W Y. Impact of atmospheric nitrogen and phosphorus wet deposition on nitrogen and phosphorus export and associated water quality: a case study of forest watershed in the red soil area, Southern China. Acta Ecologica Sinica, 2016, 36(20): - .

我国南方红壤区氮磷湿沉降对森林流域氮磷输出及水质的影响

徐冯迪^{1,2}, 高扬^{2,*}, 董文渊¹, 郝卓^{2,3}, 徐亚娟^{2,4}

1 西南林业大学环境科学与工程学院, 昆明 650000

2 中国科学院地理科学与资源研究所/生态网络观测与模拟重点实验室, 北京 100101

3 西南大学资源环境学院, 重庆 400716

4 中南林业科技大学林学院, 长沙 410000

摘要:持续高通量的氮、磷输入导致水体富营养化的问题已引起广泛关注。通过对江西省千烟洲香溪流域水样(常规水样, 降雨后的地表径流以及雨水水样)的季节性监测, 研究大气氮、磷湿沉降对森林流域氮、磷输出动态及水质的影响。结果表明: 从 2013 年 6 月至 2014 年 5 月, 香溪流域内氮、磷湿沉降通量分别为 11.86 kg/hm² 和 0.38 kg/hm², 其中氮湿沉降主要集中在夏秋两季, 占全年输入量的 64%, 而磷沉降主要集中在夏季, 占全年输入量的 43%, 表现出明显的季节性差异; 水体 pH 值(6.22—8.89) 的变化范围较大, 而且氮、磷的输出受土地管理(施肥方式)及降雨事件的影响较为明显, 尤其在耕作期, 总氮的输出量占全年氮输出总量的 96.2%, 而总磷的输出量占全年磷输出总量的 61.4%; 对 4 场不同强度降雨(按降雨强度从大到小)的氮、磷输出动态过程分析, 发现不同强度的降雨对水体氮、磷的输出过程影响不同, 在径流未形成前以及降雨强度达到暴雨级别时, 降雨对流域水体氮、磷的稀释作用明显, 而在大雨强度下水体磷的输出量明显高于其他降雨; 研究期间, 香溪流域内氮湿沉降对水体的贡献量为 101.97 kg, 磷湿沉降的贡献量为 0.60 kg, 4 场降雨氮对流域水体的贡献量为 4.46kg, 占流域氮输出负荷的 15.22%, 磷对水体的贡献量为 0.032kg, 占流域磷输出负荷的 0.85%。同时, 根据营养状态指数(EI), 发现流域水体全年处于中至富营养状态, 而且研究期间水体氮、磷浓度均超过水体富营养化阈值(氮 1.5 mg/L, 磷 0.15 mg/L), 存在爆发水体富营养化的威胁。

关键词:千烟洲; 氮、磷湿沉降; 输出负荷; 降雨事件; 土地管理; 水质

Impact of atmospheric nitrogen and phosphorus wet deposition on nitrogen and phosphorus export and associated water quality: a case study of forest watershed in the red soil area, Southern China

XU Fengdi^{1,2}, GAO Yang^{2,*}, DONG Wenyuan¹, HAO Zhuo^{2,3}, XU Yajuan^{2,4}

1 College of Forestry, Southwest University of environmental science and engineering, Kunming 650000, China

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

3 College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400716, China

4 College of Forestry, Central South University of Forestry and Technology, Changsha 410000, China

Abstract: Continuously high flux of nitrogen (N) and phosphorus (P) input into rivers leading to water eutrophication has attracted public concern. The aim of the study was to determine the impact of N and P wet deposition on N and P transport

基金项目:国家自然科学基金项目(31570465); 中国科学院青年创新促进会资助

收稿日期:2015-03-03; **网络出版日期:**2015-00-00

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: gaoyang@igsrr.ac.cn

in the forest watershed in Qianyanzhou, Jiangxi Province, China, based on the monitoring data from long-term sample and analysis. The results showed that from June 2013 to May 2014, the N and P wet deposition flux for the monitored watershed reached 11.86 kg/hm^2 and 0.38 kg/hm^2 , respectively. There was a seasonal difference in deposition rates, wherein the N wet deposition mainly focus on the summer and autumn, accounting for 64% of total N wet deposition, whereas the P deposition mainly occurred in summer, accounting for 43% of total P wet deposition input. The pH fluctuation for watershed was large and the impact of land management (e.g., fertilizing) and rainfall events on N and P output were pronounced. The output of N and P mainly focus on the cultivation period, accounting for 96.2% and 61.4% of the total output from June 2013 to May 2014, respectively, which is because exogenous input of N and P from chemical fertilizers was large in this period. By analyzing the dynamic processes of N and P output during four rainfall events, we found that the impact of different intensities of rain events on the output process was different. The dilution effect on N and P output during rainfall process was significant before becoming runoff or rain intensity reached the storm level. Under heavy rain, P output was higher than that under other rainfall intensities. The contribution of N and P wet deposition to water were 101.97 kg and 0.60 kg, respectively. The N and P wet deposition in four rain events reached 4.46 kg and 0.032 kg, respectively, accounting for 15.22% of total N and 0.85% of total P output. According to the Eutrophication Index for the Xiangxi watershed, the water quality of the Xiangxi watershed is at moderate to severe degree of eutrophication state, especially during the cultivation period. We also analyzed that the N and P concentration in water during study period all exceeded the eutrophication threshold (N 1.5 mg/L, P 0.15 mg/L), which have the potential risk of water eutrophication.

Key Words: Qianyanzhou; N and P wet deposition; output load; rainfall events; land management; water quality

近几十年来,含氮化合物通过大气沉降回到地表对生态系统产生的影响,如导致土壤或水体酸化、水体富营养化等,已引起广泛关注。据文献,全球沉降到各类生物群系和海洋表面的活性氮高达 $70.47 \text{ Tg/a}^{[1]}$,而中国已成为居美国和欧洲之后的第三大氮沉降国^[2]。资料表明,我国活性氮的使用和排放从 1961 年的 14 Tg N/a 增长到 2000 年的 68 Tg N/a ,并预计到 2030 年将达 $105 \text{ Tg N/a}^{[3]}$ 。南方地区氮沉降尤为严重。在森林生长季节,森林对氮素的需求量约为 $0.5\text{—}0.8 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$,但是氮的输入已超过对它的需求,而且过量的氮输入与世界上许多地区森林的衰退有密切的关系^[4]。周国逸^[5]指出,鼎湖山自然保护区 1989—1990 年和 1998—1999 年期间氮湿沉降量分别达到了 $3.6 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 和 $3.8 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$;江西省氮沉降向林地的输入量达 $8.28 \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}^{[6]}$ 。高通量的氮,尤其是连续向生态系统输入高浓度的氮,对生态系统的特征和过程均产生很大的影响^[7],例如,造成生物多样性降低和生产力下降等^[8-10]。

我国水体中总氮和总磷的含量随经纬度的升高而显著升高,说明在南方地区磷素富集可能是造成水体富营养化程度高的主要原因^[11],而通过大气沉降输入的磷是磷循环中不可或缺的一环。目前对大气沉降的研究主要集中在氮沉降,磷沉降研究的提出以及开展起步相对比较晚^[12],已在我国太湖地区^[13]、珠江口^[14-15]等区域进行相关研究,但到目前为止,关于磷沉降对森林生态系统的影响国内外报道仍比较薄弱^[16]。

我国近年来关于大气氮沉降对水体氮的贡献受到关注,研究主要集中在实际监测和模型模拟两方面^[17]。在莱茵河,Caraco 等人发现大气氮沉降的氮入河量输送比为 27%,北卡罗莱纳州 Neuse 河口地区氮湿沉降量占外源氮输入总量的 50%^[18];而关于大气磷沉降对水体磷的贡献的研究很少。本研究以南方红壤区千烟洲森林生态试验站的流域为研究对象,探讨南方红壤区森林流域氮、磷湿沉降季节性动态特征,并揭示氮、磷湿沉降对流域氮、磷输出的影响,为进一步加强流域管理,降低氮、磷酸沉降对南方森林流域危害研究提供科学依据。

1 材料和方法

1.1 试验地的概况和监测样点的设置

中国科学院千烟洲试验站位于江西省泰和县 ($115^{\circ}04'E, 26^{\circ}44'N$),为典型红壤丘陵地貌,具典型亚热带

季风气候特征。海拔多在 100 m 左右;年均气温为 17.9℃,年均地表温度为 17.4℃,日照时数 1406 h,太阳年总辐射量 4349 MJ kg/m²,≥0℃活动积温 6523℃,无霜期 323 d;年均降雨量为 1491 mm,年均相对湿度 88.8%,降雨主要集中在 3—6 月份,且夏季炎热少雨。土地利用类型主要是人工林,造林时间为 1984 年,主要造林树种是湿地松(*Pinus elliotii*)、马尾松(*Pinus massoniana*)以及杉木(*Cunninghamia lanceolata*)等。经过二十多年的努力,当地的生态环境已经得到明显的改善。本实验的试验点位于试验站 3 条初级小流域之一的香溪流域,流经林地、稻田、桔园,汇入架竹河,最终汇入鄱阳湖水系,流域总面积约为 97.2 hm²。依据试验区不同的土地利用方式以及空间分布特点设置固定监测点,具体位置如图 1 所示:

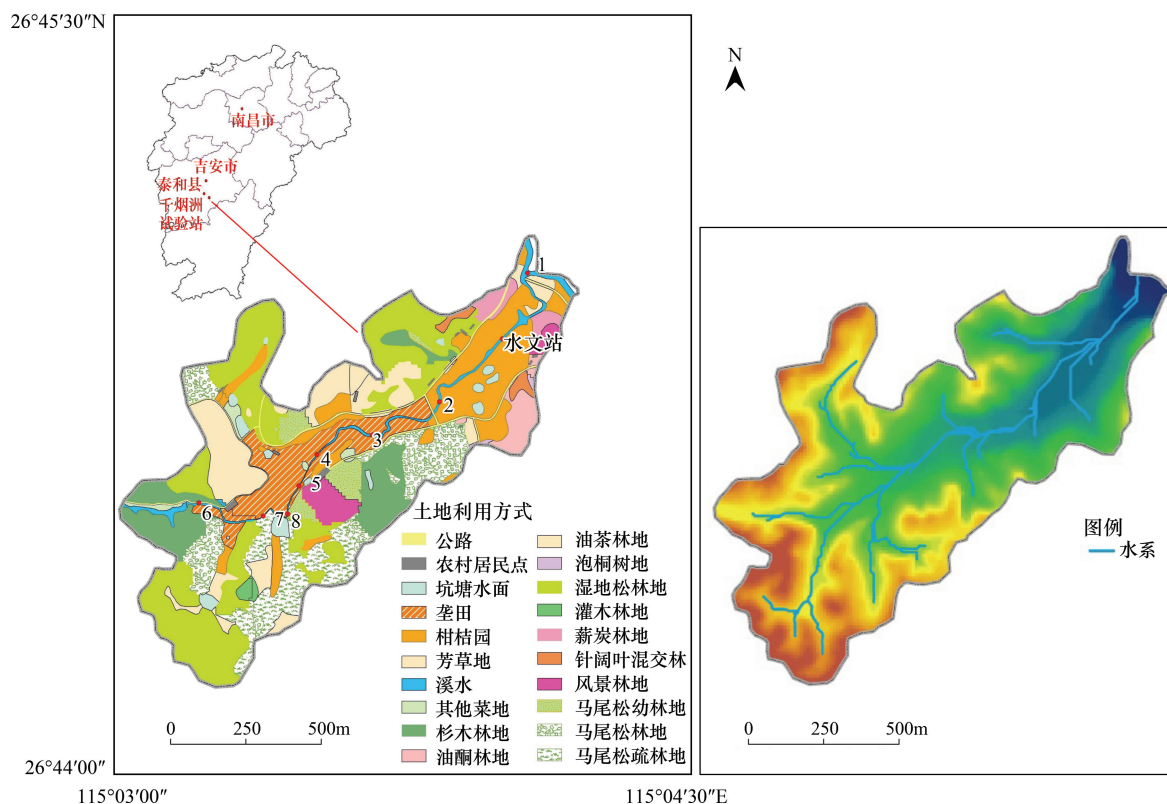


图 1 香溪流域土地利用方式图(a)和水系图(b)

Fig.1 Land use and land cover (a) and drainage (b) in Xiangxi

1.2 样品采集与分析

试验采集了自 2013 年 6 月至 2014 年 5 月的常规水样、降雨后地表径流及雨水水样。采样方法和频率如下:常规采样用 100 mL 的聚乙烯塑料瓶收集 8 个固定监测点的水样,采样频率为 2013 年 6 月至 11 月每月一次采样,采样日期为每月 19 日,而从 2013 年 11 月份开始为了对水样变化进行连续监测,将采样次数增加到每月两次,采样时间分别为每月的 9 号和 19 号,中间大概有 1—2 天的波动;在水文站处设置一台 ISOC6710 水沙自动采样装置,用于采集降雨后的地表径流。采样装置的触发模块设置为 5 mm(即降雨量达到 5 mm 时,开始采集地表径流),频率为每间隔 30 min 采样一次,每次采样量为 200 mL,共持续 12h,同时实时监测水位,流量以及流速的变化;雨水通过试验区屋顶上的雨量计采集,每月采集一次。

样品采集后,于 4℃ 冰箱内保存并在一个月内送至中科院地理所进行分析。实验测定的指标主要包括总氮(TN)、可溶性总氮(DTN)、硝态氮(NO₃⁻-N)、氨氮(NH₄⁺-N)、总磷(TP)、可溶性总磷(DTP)、磷酸根(PO₄⁻-P)和 pH。具体分析如下:总氮(TN)通过碱性过硫酸钾-紫外分光光度法进行消解后通过流动分析仪(法国 Futura 型号)测定,硝态氮(NO₃⁻-N)、氨氮(NH₄⁺-N)以及可溶性总氮(DTN)将水样用 0.45μm 有机微孔滤膜抽滤,在 80℃ 水浴处理 12 h 后,通过流动分析仪测定;总磷(TP)根据过钼酸铵分光光度法进行消解

后用流动分析仪测定,可溶性总磷(DTP)和磷酸根($\text{PO}_4\text{-P}$)是将水样用 $0.45\mu\text{m}$ 有机微孔滤膜抽滤,通过流动分析仪测定;pH 通过水质检测仪(美国 6PFCE 型号)测定。

统计分析采用 SPSS 10.0 软件,采用 SigmaPlot 10.0 和 Origin 8.0 软件进行绘图。

1.3 数据分析

1.3.1 湿沉降通量的计算方法

2013 年 6 月至 2014 年 5 月年降雨量为 1393.1 mm,共 141 场次,其中小雨、中雨、大雨和暴雨(日降雨量小于 10 mm 为小雨,10—25 mm 为中雨,25—50 mm 为大雨,50mm 以上为暴雨)分别为 104 场次、23 场次、9 场次和 4 场次。湿沉降通量公式如下^[19]:

$$F_{N,P} = \frac{P_R \times \rho_{N,P}}{100}$$

式中, $F_{N,P}$ 代表氮/磷的湿沉降通量(kg/hm^2), P_R 代表降雨量(mm), $\rho_{N,P}$ 代表雨水氮/磷素的质量浓度(mg/L), 100 为单位换算系数。

1.3.2 地表径流量及输出负荷的计算方法^[20]

地表径流量的计算公式:

$$x = \int_0^t q_t(t) dt \approx \sum_{i=1}^{i=n-1} \frac{q_i + q_{i+1}}{2}$$

输出负荷计算方法:

$$y_i = \int_0^t c_i(t) q_t(t) dt \approx \sum_{i=1}^{i=n-1} \Delta t_i \frac{c_i + c_{i+1}}{2} \times \frac{q_i + q_{i+1}}{2}$$

式中, x 为径流量, q_t 为样本 i 在监测时的流量(m^3/s), Δt_i 为样本 i 和 $i+1$ 的时间间隔(s); y_i 为第 j 种污染物的排放负荷(g); c_i 为 t 时刻径流中第 j 种污染物的浓度(mg/L); q_t 为 t 时刻的流量(m^3/s); c_i 为第 j 种污染物在样本 i 监测时的浓度(mg/L); q_i 为样本 i 在监测时的流量(m^3/s)。

1.3.3 监测点流域输出负荷^[21]

监测点流域输出量的计算公式为:

$$P = C_{N,P} \cdot Q$$

式中, P 为监测点氮、磷的输出量(mg), $C_{N,P}$ 为流域氮、磷的平均浓度(mg/L), Q 为流域总流量(m^3)。

1.3.4 水体富营养化评价^[22]

n 项富营养指标的湖泊营养状态综合指数(EI)公式如下:

$$EI = \sum_{j=1}^n W_j \times EI_j = 10.77 \times \sum_{j=1}^n W_j \times (\ln x_j)^{1.1826}$$

式中, EI_j 为指标 j 的营养状态指数; W_j 为指标 j 的归一化权重值; x_j 为各指标的“规范值”。1.3.5 氮、磷湿沉降对流域水体氮、磷的贡献^[23-24]

本研究我们利用径流输出系数计算氮、磷湿沉降对流域水体氮、磷的贡献,其具体的计算公式为:

$$P = C.A.Q$$

式中, P 为降雨输入的营养物量; C 为雨水中营养物浓度(g/m^3); A 为降雨量(m^3); Q 为年总降雨量与形成的径流量的百分数。

2 结果与分析

对每月的采样结果取平均值,开展香溪流域水体的氮磷动态变化过程的分析。

2.1 流域氮、磷湿沉降季节变化特征

2013 年 6 月至 2014 年 5 月,千烟洲全年总降雨量为 1393.1 mm,其中夏季(6 至 8 月)519.9 mm、秋季(9

至 11 月) 173.6 mm、冬季(12 月至次年 2 月) 185.1 mm、春季(3 至 5 月) 514.5 mm, 分别占全年总降雨量的 37.32%、12.46%、13.29%、36.93%。从降雨量的变化可以看出(图 2), 试验期间香溪流域的降雨主要集中在春、夏两季, 约占全年总降雨量的 74.25%, 而秋、冬两季降雨较少。实验收集到的降雨水样 pH 值的范围在 4.18—6.23 之间, pH 值的变化范围较大, 说明该地区人为活动所产生的污染物对大气湿沉降有影响。在采集到的 43 个降雨水样中(以 pH 值 5.00 作为判断酸雨标准^[25]), 酸雨发生的频率高达 74.42%, 表明该地区酸雨现象严重。

表 1 径流输出系数^[24]

Table 1 Export coefficient of runoff

土地利用 Land use	径流系数 Runoff coefficient	土地利用 Land use	径流系数 Runoff coefficient
农田 farm land	0.084—0.091	旱地 Dry land	0.549—0.729
果园 Orchard land	0.591—0.709	草地 Grass land	0.240—0.465
林地 Wood land	0.088—0.091		

降雨中各形态氮浓度及总磷浓度的变化如图 3 所示。从图中可以看出, 雨水中氮浓度的变化趋势与降雨量不存在明显的关系, 而磷的变化趋势与降雨量总体相同。1 月份降雨仅为 4.5 mm, 没有采集到雨水的水样, 但在总体上对整个实验变化趋势的影响很小。从图中可以看出, 在试验区 6、7 月份及次年 4、5 月份雨水中氨氮浓度高于硝态氮, 引起该现象的原因可能是施基肥和追肥中的氨氮挥发所导致; 2、3 月份两者浓度接近, 根据耕作习惯, 该期间试验区的农田大都处于休耕状态, 因此氮的人为输入较少。推测出现该现象可能是由于该期间气温总体较低, 从而导致雨水中硝化细菌的活性较弱, 故将氨氮转化成硝态氮的能力小于其他时期, 结果导致两者浓度接近; 9 至 12 月份硝态氮浓度高于氨氮, 符合正常水体中硝态氮浓度高于氨氮浓度的实际。9 月份雨水中总氮浓度明显偏高, 浓度达 2.41 mg/L, 据了解, 该月试验区大气污染严重, 推测可能是大气中含高浓度的含氮污染物。

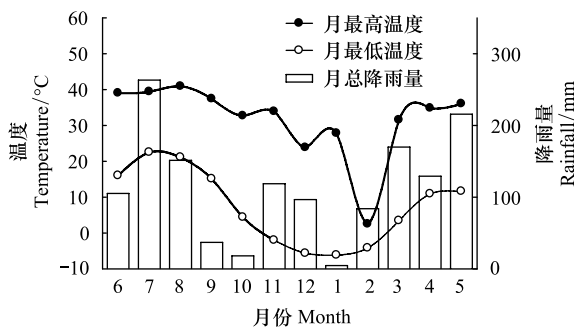


图 2 研究期间温度与降雨量

Fig.2 Temperature and rainfall during studying period

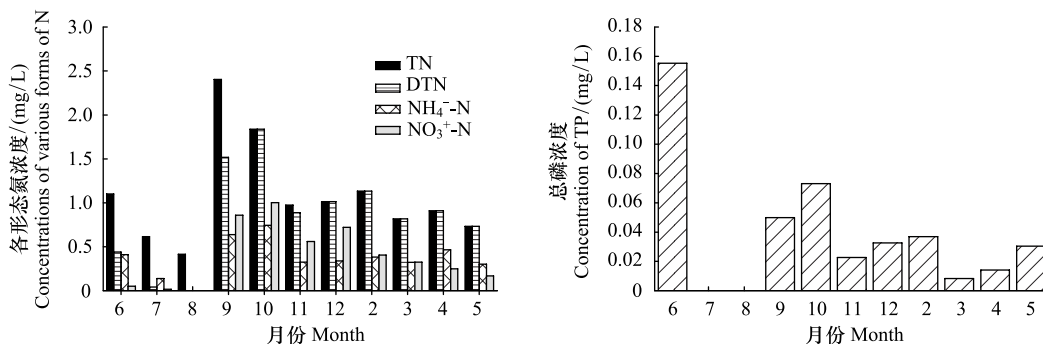


图 3 各形态氮以及总磷浓度的逐月变化

Fig.3 Monthly changes of concentration of various forms of N and TP

6 月份雨水中总磷浓度高达 0.16 mg/L, 明显高于其他月份, 根据干烟洲气象观测站的数据(6 月份以中雨为主, 且中雨降雨强度较弱, 小雨占总降雨场次的 2/3) 推测, 磷浓度偏高可能是受降雨少且温度高的气候特点的影响; 而 7、8 月份雨水中总磷的浓度几乎为零, 出现该现象的原因可能为: 经过集中降雨的冲刷作

用,大气中颗粒态总磷含量大大降低,从而导致雨水水样中总磷浓度极低,可见磷浓度受降雨量影响较大。根据湿沉降通量计算方法,氮湿沉降的输入通量为 $11.86 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$,磷为 $0.38 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 。从表 2 可以看出,全流域氮湿沉降负荷达 1152.79 kg ,且主要集中在春、夏两季,分别占全年总输入量的 35% 和 29%;而全年磷湿沉降负荷达 37.28 kg ,主要集中在夏季,沉降负荷达占全年总负荷的 43%。香溪流域内氮、磷湿沉降均表现出明显的季节性差异。

表 2 氮、磷沉降通量及沉降负荷的季节变化

Table 2 Seasonal changes of N and P deposition fluxes, and loads

季节 Season	降雨量 Rainfall/mm	氮湿沉降通量 N wet deposition flux/(kg/hm^2)	磷湿沉降通量 P wet deposition flux/(kg/hm^2)	氮湿沉降负荷 N wet deposition load/kg	磷湿沉降负荷 P wet deposition load/kg
春季 Spring	514.5	4.15	0.098	402.97	9.63
夏季 Summer	519.9	3.41	0.16	331.34	15.88
秋季 Autumn	173.6	2.37	0.06	230.75	5.7
冬季 Winter	185.1	1.93	0.062	187.73	6.07
总计 Total	1393.1	11.86	0.38	1152.79	37.28

2.2 流域氮、磷输出的季节性变化

对每个月的采样结果取平均值,开展香溪水体的氮磷动态变化过程分析。试验所选取的固定监测点(图 1a)总括了流域所有的土地利用方式,其监测结果可在一定程度上代表整条流域的水质变化。6 月份由于仪器故障未采集到径流数据,但由于该月份流域土地管理方式与 7 月相似,故推断出该对研究香溪流域水体年际氮、磷输出变化的整体规律影响较小。

2.2.1 水体 pH 变化性

pH 值的季节性变化如图 4 所示。从图中可以看出,水体 pH 值的变化趋势与降雨量不存在明显的关系。研究表明,不同的 pH 不仅会影响氮、磷在水体中的存在状态,而且和总氮与氨氮、总磷与可溶性磷的累积释放量有显著的相关性^[26]。各监测点的 pH 值的变化范围在 6.22—8.89 之间,变化范围很大,说明由于人类活动产生的污染物对流域水体有一定的影响。9 月、次年 1 月、4 月以及 5 月 pH 的空间异质性较高,这可能与样点的分布不同而导致的污染物输入量的差异。1 至 3 月 pH 总体偏高,可能是该期间香溪流域温度较低且气候干燥,空气中含有大量的 CaCO_3 等碱性颗粒,再加上土壤中化肥容易挥发,而挥发的氨气是一种碱性气体中和了空气中的酸性气体,在降雨和颗粒物沉降的作用下,最终导致了水体 pH 值升高。

2.2.2 氮输出的动态变化性

各样点水体不同形态氮的逐月变化曲线如图 5。从图中可以看出,总氮、可溶性总氮以及硝态氮浓度的变化规律相似,均呈现出明显的单峰特性;而氨氮除了 7 号样点水体外,其他样点水体浓度波动较小。6 至 10 月及次年 3 至 5 月水体中氮浓度高于 11 至次年 2 月,其中 8 月份氮浓度明显偏高且以硝态氮为主,总氮浓度达 17.88 mg/L ,硝态氮浓度高达 10.61 mg/L 。结合土地管理方式及降雨事件,3 至 5 月和 6 至 10 月是当地水稻的主要种植期,水体受到外源含氮污染物影响较大;而 8 月份采样前期有降雨且正处晚稻追肥期,因此将刚撒施的氮肥冲刷进入水体引起水体氮浓度升高,而且氮肥中的铵根容易硝化成硝酸根,故水体中硝态氮浓度

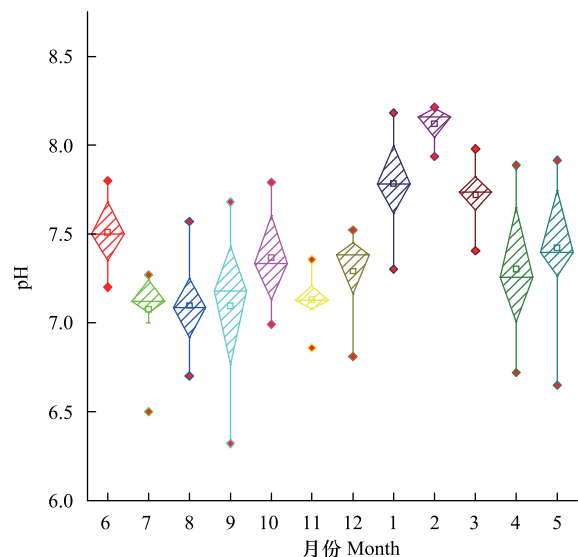


图 4 常规水样 pH 的变化动态

Fig.4 The change of pH in water samples

明显高于其他时期。

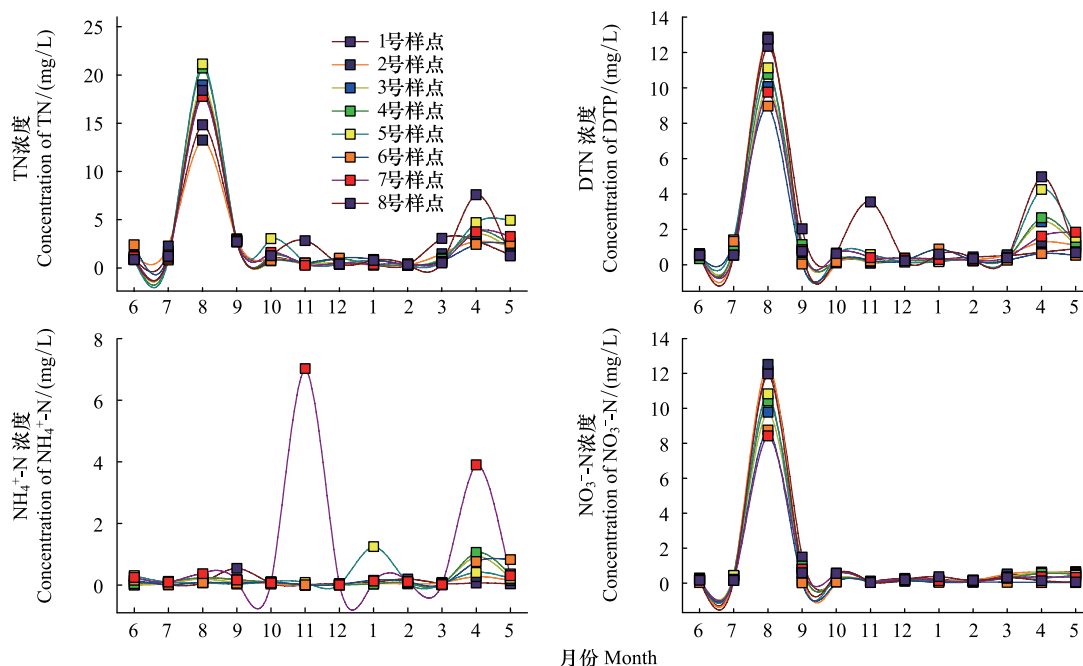


图5 不同形态氮的逐月变化过程

Fig.5 Monthly changes of concentration of different forms of N

2.2.3 磷输出的动态变化性

TP、DTP 和 $\text{PO}_4\text{-P}$ 的逐月变化情况如图 6 所示。从图中不难看出,水体中各形态磷浓度变化未出现明显的规律。TP 的平均浓度为 0.51 mg/L,而且从总体来看,水体 TP 浓度变化较小;10 至次年 5 月,水体中 DTP 和 $\text{PO}_4\text{-P}$ 的浓度变化呈现明显的“M”型变化特征,两个峰值分别出现在 11 月及次年 3 月,最低值则出现在次年 2 月;DTP 浓度在 6、7 月份明显偏高,但在 8 月迅速下降,而 $\text{PO}_4\text{-P}$ 浓度在 6 至 10 月趋于稳定。该现象可能是 6、7 月份外源磷的输入导致水体磷浓度偏高,但是 7、8 月降雨集中,大气中含磷物质稀少,此时降雨的输入对水体可溶性磷起到了明显的稀释作用,而且受降雨强度的影响,土壤中颗粒态的磷大量被冲刷进入水体,故导致水体中总磷浓度未出现大的下降过程,而 DTP 浓度明显下降。

根据监测点流域输出量计算公式得到,2013 年 7 月至 2014 年 5 月,香溪流域总氮的输出量达 692.68 g,总磷的输出量达 110.15g,其中 8 月份流域总氮输出量最大,高达 363.98 g,占年总输出量的 52.5%,而 3、4、5 和 7 月总氮的输出量明显偏高,分别为 46.79 g,32.46 g,172.20 g 和 51.48 g,占总输出量的 43.7%;总磷输出主要集中在 3、4、5 和 7 月份,分别为 19.30 g,17.69 g,28.18 g 和 20.12 g,占总输出量的 61.4%。由此可见,香溪流域水体氮、磷的输出主要集中在耕作期,且该期间降雨频繁而且降雨量大,故认为土地管理方式对流域氮、磷输出有一定的影响,但是氮、磷的输出量受降雨频次以及降雨量大小的影响更为明显。

2.3 自然降雨下流域氮、磷输出的动态过程

降雨形成地表径流汇入香溪最终引起水体氮、磷浓度变化。香溪总面积 1.47 hm^2 ,实验将采样装置设于水文站处,以间隔 30 min/次的频率收集地表水样,共持续 12 h,其检测结果可代表整条流域水质的变化情况。通过 4 场不同强度的降雨(小雨:2013/5/17,日降雨量 2.4 mm;中雨:2013/4/25,日降雨量 18.6 mm;大雨:2013/5/4,日降雨量 30.1 mm;暴雨:2013/5/22,日降雨量 54.7 mm,平均 pH 为 4.88),观测不同降雨强度下流域氮、磷浓度变化。

不同强度降雨条件下,地表径流在 12 h 内的变化曲线如图 7,而水体各形态氮、磷浓度在 12 h 内的变化曲线如图 8。由于停电,5 月 17 号仪器取样仅持续 10 h,但是对了解整个降雨过程中氮、磷浓度变化规律不产

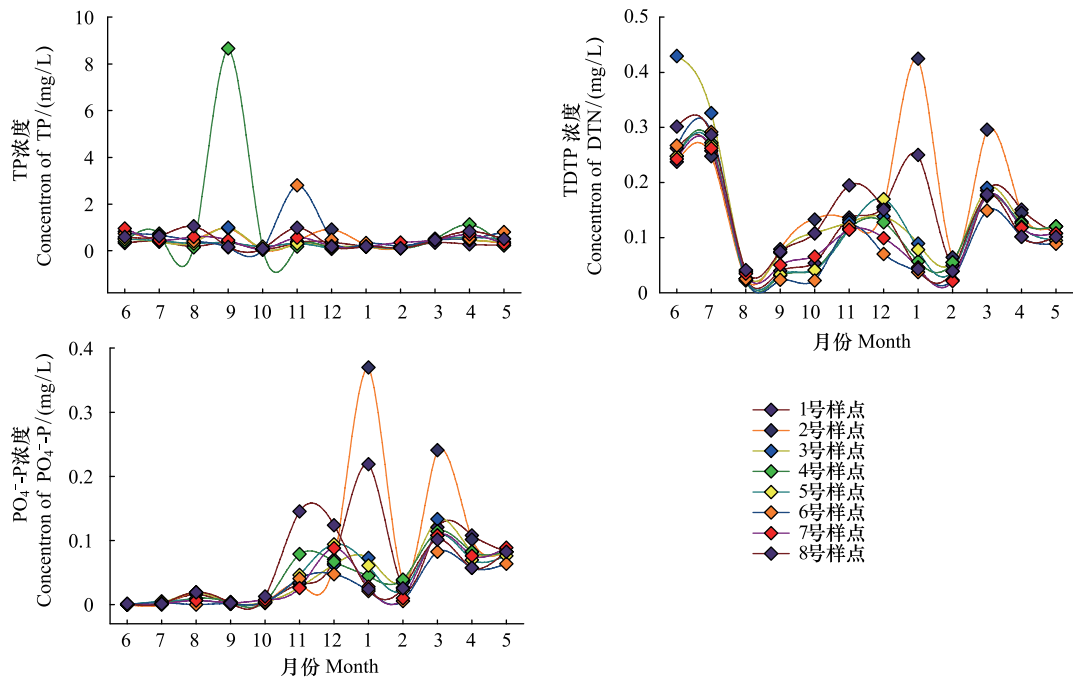


图6 不同形态磷的逐月变化过程

Fig.6 Monthly changes of concentration of different forms of P

生明显的影响。不难看出,除小雨外,水体氮、磷浓度均出现明显的峰值,且与径流峰值出现的时间一致;水体中氮、磷浓度大小均为: $TN > DTN > NO_3^- - N > NH_4^+ - N$; $TP > DTP \approx PO_4 - P$ 。从水体氮浓度变化来看,降雨强度与 TN 、 DTN 以及 $NO_3^- - N$ 浓度成正比,但当降雨达到暴雨级别时,浓度均有所下降; $NO_3^- - N$ 与 DTN 浓度的变化趋势基本一致;水体中 TP 浓度的变化趋势与 TN 类似,且 DTP 与 $PO_4 - P$ 具有基本一致的变化。导致该现象的原因可能有:1) 雨水中氮、磷浓度低于水体氮、磷浓度,故在降雨强度较大时,对水体的稀释作用明显;2) 径流能将土壤中部分氮、磷通过地表径流和壤中流带入水体,引起浓度波动;3) 不同强度降雨对大气中所含的氮、磷悬浮物质以及土壤表面植物上的氮磷物质冲刷强度不同。

根据地表径流净通量计算方法,4场不同强度降雨 TN 的地表径流净通量分别为(按降雨强度从小到大): 5.11 kg/hm^2 、 38.97 kg/hm^2 、 31.99 kg/hm^2 和 120.30 kg/hm^2 , TP 分别为 $3.17 \times 10^{-8} \text{ kg/hm}^2$ 、 $7.90 \times 10^{-6} \text{ kg/hm}^2$ 、 $1.73 \times 10^{-5} \text{ kg/hm}^2$ 和 $1.86 \times 10^{-5} \text{ kg/hm}^2$ 。其中,暴雨条件下, TN 的地表径流净通量高达 120.30 kg/hm^2 ,分析其原因可能是由于暴雨的降雨强度过大,从而将土壤中的氮素大量冲刷进入水体而造成的。对各形态的氮、磷浓度和降雨量作相关性分析,结果如表3。从表3可以看出,水体中氨氮和硝态氮浓度与可溶性总氮浓度相关性较高,其中,可溶性总氮与硝态氮的相关性高达0.997,水体中氨氮和硝态氮的浓度也存在较高的相关性;各状态磷之间相关性高。推测水体中可溶性氮的主要成分为硝态氮,而且氨氮和硝态相互转化能力较强,水体中输出的磷主要是可溶性总磷且以离子形式存在。

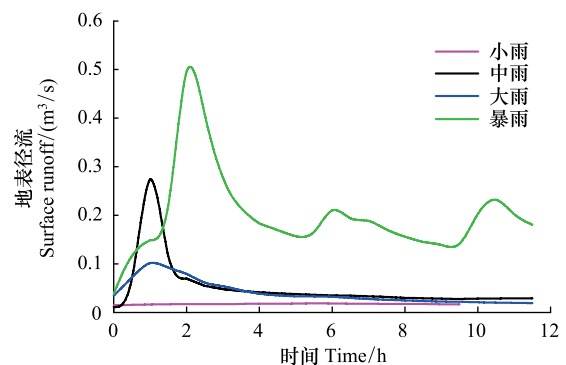


图7 地表径流的变化过程

Fig.7 The process of surface runoff in 12 hours

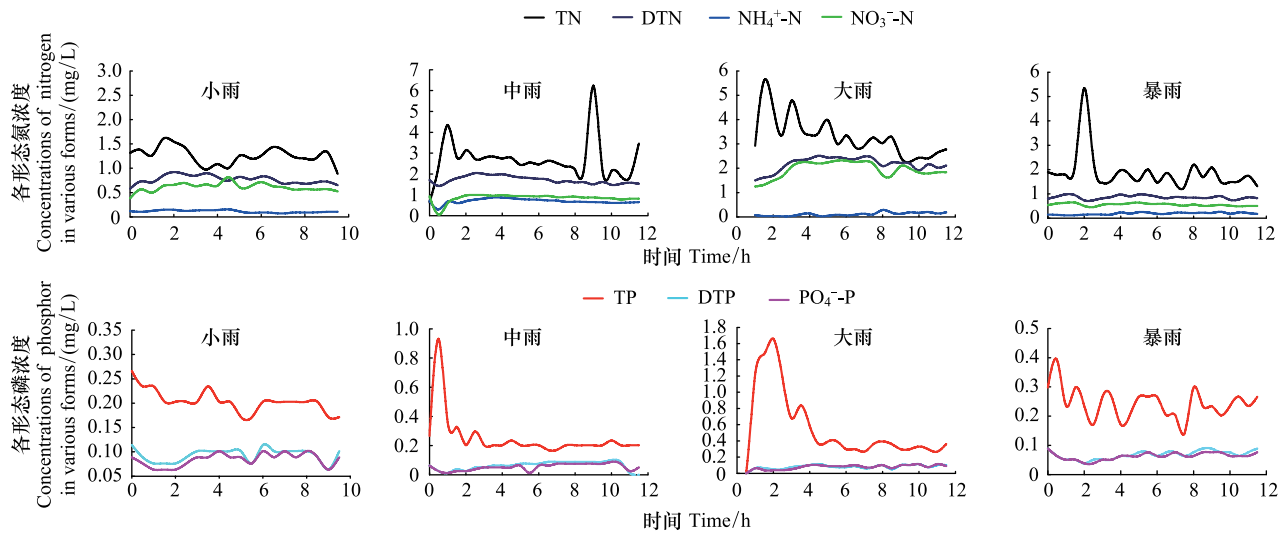


图 8 12h 内不同降雨强度下氮、磷浓度动态变化
Fig.8 Dynamic of flow, N and P output in 12 hours

表 3 湿沉降中氮、磷浓度的相关性检验

Table 3 Correlation between nitrogen and phosphorus concentration in the wet deposition

指标 Index	降雨量/mm Rainfall	TN	DTN	NH ₄ ⁺ -N	NO ₃ ⁻ -N	TP	DTP	PO ₄ ⁻ -P
降雨量 Rainfall/mm	1.000							
TN	0.455	1.000						
DTN	-0.184	0.111	1.000					
NH ₄ -N	-0.198	0.295	0.974 *	1.000				
NO ₃ -N	-0.217	0.154	0.997 **	0.987 *	1.000			
TP	0.028	-0.849	0.025	-0.202	-0.045	1.000		
DTP	0.042	-0.828	0.077	-0.151	0.006	0.998 **	1.000	
PO ₄ -P	0.056	-0.837	0.011	-0.216	-0.060	1.000 **	0.998 **	1.000

双侧检验; * 表示相关性显著 ($P<0.05$); * * 表示相关性极显著 ($P<0.01$)

3 讨论

3.1 氮、磷湿沉降对流域氮、磷输出的贡献

将流域内的土地划分为 6 大类(《土地利用现状分类标准 GB / T 21010—2007》)(见表 1)。根据公式得出,在香溪流域内,氮湿沉降对水体的贡献量为 101.97 kg,与郝卓估算的结果 88.24—117.1 kg 接近^[27],磷湿沉降的贡献量为 0.60 kg;氮的总输出负荷为 692.68 kg,磷的总输出负荷达 110.15 kg,因此氮、磷湿沉降对流域水体氮、磷贡献量分别占输出负荷的 14.7%和 0.54%。据了解,试验地区农田管理是影响流域氮、磷人为输入的主要因素,故推测流域内水体中湿沉降输入的氮、磷量相对于化肥的输入量而言其贡献很小。这与王金杰对汉江上游金水河研究结果相同,流域氮沉降对金水河氮贡献率很小,只占氮肥贡献量的 5.05%—6.78%。4 场不同强度的降雨,氮湿沉降通量(按降雨强度从小到大)分别为 0.03 kg/hm²、0.32 kg/hm²、0.73 kg/hm²和 1.05 kg/hm²;磷湿沉降通量分别为 1.83 g/hm²、14.15 g/hm²、22.90 g/hm²和 24.27 g/hm²;氮湿沉降总负荷为 207.31 kg,磷湿沉降的总负荷为 6.14 kg;氮对流域水体的贡献量分别为 0.066 kg、0.67 kg、1.54 kg 和 2.18 kg;磷的贡献量分别为 0.66 g、5.60 g、13.71 g 和 12.60 g。对 4 场不同强度降雨进行分析,结果如表 4 所示。从表中可知,4 场降雨的总径流量为 13370.18 m³,总氮的输出负荷为 29.30 kg,其中,可溶性总氮输出负荷占总氮输出量的 53.21%,氨氮和硝态氮的输出负荷分别为 3.36 kg 和 10.07 kg,分别占可溶性总氮的 21.55%和 68.63%;

总磷的输出负荷为 3.84 kg, 可溶性总磷输出负荷与磷酸根输出负荷接近, 分别为 0.94 kg 和 0.87 kg; 4 场降雨对流域水体氮的贡献量占流域氮输出负荷的 15.22%, 磷对水体的贡献量占流域磷输出负荷的 0.85%。因此, 香溪流域湿沉降对水体氮、磷的贡献比化肥小, 而且水体中氮主要以硝态氮的形式输出, 磷在水体中主要以颗粒态的不可溶的形式存在。

表 4 不同降雨强度下各形态氮、磷的输出负荷

Table 4 Output load of different N and P under different rainfall intensity

日期 Date	总径流量 Total runoff	TN/kg	DTN/kg	NH_4^+ -N/kg	NO_3^- -N/kg	TP/kg	DTP/kg	PO_4^{3-} -P/kg
5 月 17 日	866.45	1.15	0.70	0.12	0.54	0.18	0.08	0.07
4 月 25 日	2005.64	5.38	3.44	1.40	1.72	0.50	0.13	0.11
5 月 4 日	2113.07	6.96	4.21	0.22	3.77	1.11	0.16	0.16
5 月 22 日	8385.02	15.81	7.23	1.61	4.67	2.04	0.57	0.53
总计 Total	13370.18	29.30	15.59	3.36	10.70	3.84	0.94	0.87

3.2 氮、磷湿沉降对水质的影响

酸沉降进入水体对水体造成一定的危害, 如造成生物多样性降低和生产力下降等, 严重威胁当地的生态系统。试验期间采集到的降雨水样 pH 值平均为 4.92, 低于 Seinfeld 等人认为洁净大气中降雨的 pH 值 (pH 值 5.00—5.60)^[28], 而且在采集到的水样中, 酸雨发生的频率高达 74.42%, 远高于长江口水域酸雨频率的 16.1%^[29], 说明香溪流域酸雨发生频率虽然高, 但是雨水酸度偏低。未受降雨影响下香溪水体的 pH 值的变化范围在 6.22—8.89 之间, 平均为 7.41, 而降雨影响下香溪水体 pH 值平均为 7.36, 略低于未受降雨影响下的香溪水体, 由此推测, 香溪流域大气中含浓度较低的氮、磷污染物。香溪流域内氮湿沉降通量为 $11.86 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$, 低于鼎湖山 TN 的输入量 $38.4 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ ^[5], 但与盛文平 (2010) 的研究结果 $11.75 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 接近^[30]; 磷湿沉降通量为 $0.38 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$, 低于鼎湖山 $0.21 \text{ kg hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ ^[30], 处于国内报道的较低水平。

试验期间流域内常规水样, 降雨后的地表径流以及雨水的氮、磷浓度均超出河流水体富营养化阈值 (氮 1.5 mg/L , 磷 0.15 mg/L)^[31]。由营养状态综合指数 (EI) 得出 (表 5), 全年流域水体处于中至富营养状态, 其中耕作期水体营养化程度比较严重, 而 6、7 月份由于降雨量较大以及温度较高, 水体富营养状态得到缓解, 由此可见, 该地区土地管理方式以及降雨事件共同作用于水体的富营养化状态。虽然该流域至今未发生水体富营养化事件, 但仍要高度重视氮、磷湿沉降对生态环境的影响, 并根据气候特征以及农田管理方式, 合理制定防治措施, 进一步加强流域管理, 降低氮、磷湿沉降对南方森林流域危害。

表 5 不同时期流域水体的营养等级

Table 5 Nutrition levels for water in different periods

日期 Date	6/17	7/17	8/17	9/12	10/15	11/10	11/20	12/10	12/20	1/10
EI Eutrophication Index	37.01	35.63	58.00	40.84	29.96	29.71	49.58	34.95	34.30	29.70
营养等级 Nutrient lever	中	中	富	富	中	中	富	中	中	中
日期 Date	1/20	2/10	2/20	3/9	3/19	4/9	4/19	5/9	5/19	
EI Eutrophication Index	44.99	22.98	30.89	43.76	41.95	47.47	62.17	52.58	47.81	
营养等级 Nutrient lever	富	中	中	富	富	富	重度富	富	富	

4 结论

1) 香溪流域内总氮和总磷的沉降通量分别为 11.86 kg/hm^2 和 0.38 kg/hm^2 , 且表现出明显的季节性差异。其中夏、秋两季的氮湿沉降严重, 占全年氮沉降负荷的 64%; 夏季磷湿沉降严重, 占全年磷沉降负荷的 43%。

2) 香溪流域总氮的年输出量为 692.68g, 总磷为 110.15g, 其中 3、4、5 和 7 月总氮的输出量占全年总输出

量的 43.7%,而总磷输出量占总输出量的 61.4%。由此可见,土地管理方式和降雨事件对氮、磷的输出产生一定的影响,其中受降雨频次以及降雨量大小的影响更为明显,而且水体中可溶性氮的主要成分为硝态氮,氨氮和硝态相互转化能力较强,磷主要是可溶性总磷且以离子形式存在。

3) 在香溪流域内,氮湿沉降对水体的贡献量为 101.97 kg,磷湿沉降的贡献量为 0.60 kg,贡献量分别占输出量的 14.7%和 0.54%。4 场降雨对水体氮的贡献量氮输出总量的 15.22%,磷占磷输出总量的 0.85%。

参考文献 (References):

- [1] Paerl H W. Coastal eutrophication in relation to atmospheric nitrogen deposition: Current perspectives. *Ophelia*, 1995, 41(1): 237-259.
- [2] Kim J Y, Ghim Y S, Lee S B, Moon K C, Shim S G, Bae G N, Yoon S C. Atmospheric deposition of nitrogen and sulfur in the yellow sea region: significance of long-range transport in East Asia. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2010, 205(1/4): 259-272.
- [3] Zheng X H, Fu C B, Xu X K, Yan X D, Huang Y, Han S H, Hu F, Chen G X. The Asian nitrogen cycle case study. *AMBIO: A Journal of the Human Environment*, 2002, 31(2): 79-87.
- [4] 方运霆,莫江明, Gundersen P, 周国逸,李德军. 森林土壤氮素转换及其对氮沉降的响应. *生态学报*, 2004, 24(7): 1523-1531.
- [5] 周国逸, 闫俊华. 鼎湖山区域大气降水特征和物质元素输入对森林生态系统存在和发育的影响. *生态学报*, 2001, 21(12): 2002-2012.
- [6] 樊建凌, 胡正义, 庄舜尧, 周静, 王体健, 刘翠英. 林地大气氮沉降的观察研究. *中国环境科学*, 2007, 27(1): 7-9.
- [7] Matson P, Lohse K A, Hall S J, 闵庆文. 氮沉降的全球化: 对于陆地生态系统的意义. *AMBIO-人类环境杂志*, 2002, 31(2): 113-119, 199-199.
- [8] 李德军, 莫江明, 方运霆, 彭少麟, Gundersen P E R. 氮沉降对森林植物的影响. *生态学报*, 2003, 23(9): 1891-1900.
- [9] 鲁显楷, 莫江明, 董少峰. 氮沉降对森林生物多样性的影响. *生态学报*, 2008, 28(11): 5532-5548.
- [10] 张云海, 何念鹏, 张光明, 黄建辉, 韩兴国. 氮沉降强度和频率对羊草叶绿素含量的影响. *生态学报*, 2013, 33(21): 6786-6794.
- [11] 蔡龙炎, 李颖, 郑子航. 我国湖泊系统氮磷时空变化及对富营养化影响研究. *地球与环境*, 2010, 38(2): 235-241.
- [12] 陈立新, 乔璐, 段文标, 黄兰英, 马海娟. 温带森林磷沉降-水系统输出-迁移动态特征及对土壤磷影响. *土壤学报*, 2012, 49(3): 454-464.
- [13] 王小治, 尹微琴, 单玉华, 封克, 朱建国. 太湖地区湿沉降中氮磷输入量——以常熟生态站为例. *应用生态学报*, 2009, 20(10): 2487-2492.
- [14] 樊敏玲, 王雪梅, 王茜, 林文实, 金辉. 珠江口横门大气氮、磷干湿沉降的初步研究. *热带海洋学报*, 2010, 29(1): 51-56.
- [15] 陈中颖, 李开明, 林文实, 刘爱萍. 珠江口大气氮磷干湿沉降通量及其污染特征. *环境污染与防治*, 2010, 32(11): 53-57.
- [16] 曹裕松, 傅声雷, 旷远文, 胡文杰. 氮和磷增加对华南两种人工林土壤甲烷通量的影响(英文). *井冈山大学学报: 自然科学版*, 2010, 31(5): 53-58.
- [17] 刘文竹, 王晓燕, 樊彦波. 大气氮沉降及其对水体氮负荷估算的研究进展. *环境污染与防治*, 2014, 36(5): 88-93, 101-101.
- [18] Caraco N F, Cole J J. Human impact on nitrate export: an analysis using major world rivers. *Ambio*, 1999, 28(2): 167-170.
- [19] 崔键, 周静, 杨浩. 农田生态系统大气氮、硫湿沉降通量的观测研究. *生态环境学报*, 2009, 18(6): 2243-2248.
- [20] 许其功, 刘鸿亮, 沈珍瑶, 席北斗. 三峡库区典型小流域氮磷流失特征. *环境科学学报*, 2007, 27(2): 326-331.
- [21] 韩震, 罗熹轲, 王中根, Dahlgren R A. 土地利用方式对流域氮输入输出关系的影响——以加州 San Joaquin 流域为例. *地理科学进展*, 2010, 29(9): 1081-1086.
- [22] 李祚泳, 汪嘉杨, 郭淳. 富营养化评价的对数型幂函数普适指数公式. *环境科学学报*, 2010, 30(3): 664-672.
- [23] 蔡明, 李怀恩, 庄咏涛, 王清华. 改进的输出系数法在流域非点源污染负荷估算中的应用. *水利学报*, 2004, (7): 40-45.
- [24] 田日昌, 陈洪松, 王克林, 谢小立. 红壤坡地不同覆被类型地表径流对降水特征的响应. *自然资源学报*, 2009, 24(6): 1058-1068.
- [25] 刘嘉麒. 降水背景值与酸雨定义研究. *中国环境监测*, 1996, 12(5): 5-9.
- [26] 梁淑轩, 贾艳乐, 闫信, 李洪波, 秦哲, 孙汉文. pH 值对白洋淀沉积物氮磷释放的影响. *安徽农业科学*, 2010, 38(36): 20859-20862.
- [27] 郝卓, 高扬, 张进忠, 徐亚娟, 于贵瑞. 南方红壤区氮湿沉降特征及其对流域氮输出的影响. *环境科学*, 2015, 36(5): 1630-1638.
- [28] Seinfeld J H, Pandis S N. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. New York: John Wiley & Sons, 1998: 10-30.
- [29] 付敏, 赵卫红, 王江涛, 苗辉. 大气湿沉降对长江口水域营养盐的贡献. *环境科学*, 2008, 29(10): 2703-2709.
- [30] 盛文萍, 于贵瑞, 方华军, 刘允芬, 胡中民. 离子树脂法测定森林穿透雨氮素湿沉降通量——以千烟洲人工针叶林为例. *生态学报*, 2010, 30(24): 6872-6880.
- [31] Dodds W K, Jones J R, Welch E B. Suggested classification of stream trophic state; distributions of temperate stream types by chlorophyll, total nitrogen, and phosphorus. *Water Research*, 1998, 32(5): 1455-1462.