#### DOI: 10.5846/stxb201801300241

马明真,高扬,郝卓.亚热带典型流域 C、N 沉降季节变化特征及其耦合输出过程.生态学报,2019,39(2): - . Ma M Z, Gao Y, Hao Z.Seasonal variation characteristics and coupling output process of C and N wet deposition in a typical subtropical watershed in China. Acta Ecologica Sinica,2019,39(2): - .

# 亚热带典型流域 C、N 沉降季节变化特征及其耦合输 出过程

# 马明真<sup>1,2</sup>,高扬<sup>1,2,\*</sup>,郝卓<sup>1,2</sup>

1 中国科学院地理科学与资源研究所,生态系统网络观测与模拟重点实验室,北京 100101 2 中国科学院大学,北京 100049

摘要:大气湿沉降是流域生态系统水体中碳氮的重要来源,对生态系统的健康及稳定性有很大的影响。通过对江西千烟洲典型 亚热带流域降雨过程的碳、氮湿沉降和径流过程的季节性动态特征进行监测分析,探讨流域沉降、径流输出的 C、N 耦合及平衡 关系。结果表明:千烟洲香溪流域降雨径流中碳氮浓度明显低于雨水,流域大气降水中 DOC 浓度和 TN 浓度呈极显著正相关关 系。香溪河流域常规水体 C:N 均值为 2.81,远低于根据 Redfield 比率得出的适宜浮游生物生长的 C:N(6.6 左右),说明外源性 N 输入导致该流域水体环境处于 N 过量的状态,长期输出会提高下游都阳湖水系的营养化程度。降雨过程对流域碳输入输出 平衡影响较小,对氮输入输出平衡的影响较大。流域湿沉降 DOC 年输入量为 69.41 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>,TN 湿沉降通量为 77.23 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>,碳氮沉降水平受区域降雨量及空气污染情况控制。香溪流域生态系统截留的沉降 TN 占当地氮肥年均使用量的 33.13%, 大气降水对亚热带流域生态系统的大量营养物质输入不容忽视。

关键词:亚热带流域;湿沉降;径流输出;C、N耦合及平衡

# Seasonal variation characteristics and coupling output process of C and N wet deposition in a typical subtropical watershed in China

MA Mingzhen 1,2, GAO Yang 1,2,\*, HAO Zhuo 1,2

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

2 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

**Abstract**: Atmospheric wet deposition is an important source of carbon and nitrogen in watershed ecosystems and has a substantial effect on health and stability of ecosystems. In the typical subtropical Xiangxi watershed, seasonal dynamic characteristics of C and N in wet deposition and rainfall-runoff export events were monitored and analyzed to discuss C and N coupling processes and matter equilibrium relationships between deposition and rainfall-runoff export. The results showed that, in the process of rainfall and rainfall-runoff in the Xiangxi watershed, the monthly average concentrations of C and N had obvious seasonal differences. The C and N concentrations in atmospheric wet deposition were higher in the dry season than that in the wet season, and the values in rainfall-runoff were greatly affected by local agricultural activities, such as fertilization. The average concentrations of C and N in rainfall-runoff were significantly lower than that in rainwater. Between DOC and TN concentrations, there were very significant positive correlations in rainwater, no significant correlations in

基金项目:国家自然科学基金项目(31570465);国家自然科学基金中英合作重大项目(41571130043);中国科学院青年创新促进会项目

收稿日期:2018-01-30; 网络出版日期:2018-00-00

<sup>\*</sup> 通讯作者 Corresponding author.E-mail: gaoyang@ igsnrr.ac.cn

rainfall-runoff, and significant negative correlations in conventional water. Nutrient sources in each process were the main factors affecting the relationship between C and N. Because of the erosion to soil by heavy rainfall, C: N in rainfall-runoff was obviously higher than that in conventional water. The ratio in rainwater was similar to that of conventional water, indicating that atmospheric wet deposition was the main source of C and N in the watershed. The main reason was that most of the rainfall events were small and medium rainfall in the Xiangxi watershed, and the annual rainfall had a limited effect on soil erosion. Therefore, C: N in conventional water was almost unaffected by soil. The mean value of C: N in conventional water in the Xiangxi watershed was 2.81, which was much lower than the suitable value (approximately 6.6) for plankton growth according to the Redfield ratio, indicating that exogenous N input had caused the water environment to be in a state of excess N in this watershed, and long-term output would increase the degree of nutrition of the downstream Poyang Lake. Rainfall processes had a small effect on C input-output balance but had a greater impact on N input-output balance in the Xiangxi watershed. The annual wet deposition fluxes of DOC and TN were 69.41 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup> and 77.23 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>, respectively. The level of C and N deposition was controlled by regional rainfall and air pollution. Deposition flux of TN in the Xiangxi watershed ecosystem accounted for 33.13% of the annual average nitrogen fertilizer application in this region. Therefore, the large number of nutrients input into subtropical watershed ecosystems by atmospheric rainfall cannot be neglected.

Key Words: subtropical watershed; wet deposition; rainfall-runoff export; C and N coupling and input-output balance

大气沉降主要通过三种形式进行:湿沉降、干沉降和云沉降<sup>[1-2]</sup>。大气湿沉降是指通过大气降水(包括降雨和降雪等)冲刷大气中污染物的过程。雨水中的碳氮主要是来源于陆地工农业和畜牧业生产活动产生的污染物以及植被和人类排放的易挥发有机物等向大气中的排放<sup>[3-4]</sup>。湿沉降是流域生态系统水体中碳氮的重要来源<sup>[5-6]</sup>,除了雨水本身携带的碳氮直接进入水体外,降雨过程对土壤产生的冲刷作用还会使流域土壤碳氮转移到河道中,影响水体碳氮含量以及流域碳氮输移,进而改变碳氮循环过程<sup>[7-9]</sup>。

随着人类活动导致的大气污染情况的加剧,雨水中的溶解性有机碳(DOC)和总氮(TN)浓度有不断上升的趋势,已成为降雨中的主要化学组分<sup>[10]</sup>。DOC 的输送转化过程是森林流域水体碳循环的关键环节<sup>[11]</sup>,是河流有机碳输送的重要形式<sup>[12]</sup>,其主要成分是溶解态腐殖酸类,对水体 pH 值会产生一定的影响,DOC 的增加会降低水体能见度、并有利于重金属污染物的转移<sup>[13-14]</sup>。大气氮沉降对水生生态系统的氮循环有重要影响<sup>[15]</sup>,随着氮沉降的增加,水生生态系统中氢也会增加,使水体酸化,对初级生产者的生长繁殖的刺激作用将导致流域水体的富营养化,过量氮沉降还会对水生动物的生存、生长和繁殖能力产生毒害作用<sup>[8,16]</sup>。水中营养物质的化学计量比可以影响浮游生物的生长和组成<sup>[17]</sup>,在一些研究中,Redfield 比值是定量确定营养限制因子的一个重要依据<sup>[18]</sup>,因此大气沉降中的碳氮耦合关系及降雨过程对水体碳氮的影响过程对流域水生生态系统的健康具有重要意义。

目前,国内关于湿沉降影响流域碳氮循环的研究已经有一些报道<sup>[10,13,19]</sup>,但是大部分都是针对单一的碳 素或者氮素进行,另外,生态系统中的碳氮耦合过程也有不少研究,主要集中在农田生态系统或土壤和植物的 碳氮过程<sup>[20-21]</sup>,从碳氮耦合的角度出发对流域碳氮沉降作用及输出过程关系以及整体碳氮平衡进行的研究 相对较少。因此,本文通过对江西泰和县千烟洲试验站的流域进行研究,分析亚热带森林流域降雨过程的碳、 氮湿沉降和径流过程的季节性动态特征,探讨流域沉降、径流输出的 C、N 耦合及平衡关系,在碳排放和氮沉 降持续增加的背景下,研究分析当地的生态环境问题,为该流域森林生态系统的可持续发展和科学管理提供 科学依据。

# 1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于江西省吉安市泰和县灌溪镇桃源村境内的中国科学院千烟洲红壤丘陵综合开发试验站(115°

3

04'13"E,26°44'48"N)(图1)。地处亚热带季风气候区域,区内为典型亚热带红壤丘陵地貌类型,地势呈西南高东北低趋势,为典型亚热带流域,平均海拔高度为110.8 m,年均气温17.9℃,2010—2015年均降水量1442 mm,降雨量季节分配不均匀,3—9月为流域雨季,降雨量占全年的70%左右,年均相对湿度84%<sup>[22]</sup>。香溪流域总面积为97.38 hm<sup>2</sup>,小流域内土地利用方式主要为林地、农业用地、草地等典型利用方式,其中林地面积最大,植被种类以马尾松和湿地松为主,农业用地以水田、桔园为主。流域内香溪河从A点开始汇集,流经林地、稻田、桔园,以G点为出水口,经H点汇入架竹河,架竹河水系为赣江流域的二级支流,最终汇入鄱阳湖水系。



上游:A、B、C,中游:D、E、F,下游:G、H

# 1.2 采样方法

水样采集:在千烟洲香溪流域综合考虑了空间分布、土地利用类型及采样便利等因素均匀的设立 8 个常规采样点(图1),分别为上游的 A、B、C,中游的 D、E、F,及下游的 G、H,依次流经水塘,稻田,桔园等不同的土 地利用类型。设立的这 8 个常规采样点,2014 年 7 月—2015 年 8 月每月采集常规水体样品 2 次(分别在每月 的 9 号和 19 号进行人工采样)。在试验区屋顶安装雨量计,每次降雨后,雨量计收集雨水,人工采集雨水进行 分析。在流域水文站点处(图 1 G 点)设置一台 ISOC6710 水沙自动采样装置,降雨后进行径流水样的采集。 将降雨触发模块设置为 5 mm(即降雨量超过 5 mm 时,自动采样装置开始采集地表径流),当降雨触发模块运 行后,每隔 30 min 自动采集 200 mL 径流样,直到收集完 24 个样品。该仪器同时实时监测水位,流量以及流速的变化。将收集的水样分装到聚乙烯塑料瓶(100 mL),样品采集后立刻送往实验室,放置于冰箱保存并在一月内取回至中科院地理所进行试验分析。

土壤样品采集:在试验区按桔园、针阔混交林、湿地松和马尾松四种土地利用方式进行土壤样品的采样, 每种林地选取3个样点,按0—10、10—20、20—40 cm 和40—60 cm 用土钻分层取样,土壤放入密封袋中于冰 箱中保存,次日带回至地理所地下室自然风干一周,过2 mm 筛,用球磨仪粉碎后装入密封袋保存待测。 1.3 样品分析

实验测定的指标主要包括水样 pH、硝态氮(NO<sub>3</sub>)、铵态氮(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)、总氮(Total Nitrogen,TN)、溶解性总氮 (Dissolved Total Nitrogen,DTN)和溶解性有机碳(Dissolved Organic Carbon, DOC),以及土壤样品中总碳(TC) 和 TN 含量。将水样通过水质检测仪(美国 6PFCE 型号)检测 pH 后分为两部分,一部分通过国家标准碱性过 硫酸钾-紫外分光光度法(GB 11894-89)的消解方法处理水样,用流动分析仪(法国 Futura 型号)测定 TN;另 一部分经 0.45  $\mu$ m 有机微孔滤膜(经过 80℃水浴 8 h 处理)抽滤后用流动分析仪测定 DTN、NO<sub>3</sub> 及 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>,总有 机碳分析仪(德国 vario TOC 型号)测定 DOC。用元素分析仪(德国 vario MAX 型号)测定土壤样品 TC 和 TN 含量。

# 1.4 数据分析

1.4.1 沉降通量计算方法<sup>[23]</sup>

采用式(1)对碳氮湿沉降通量进行计算:

$$F = \sum \left(\frac{P \times c}{100}\right) \tag{1}$$

式中,F代表沉降通量( $kg/hm^2$ ),P代表逐月降雨量(mm),c代表雨水中物质的浓度(mg/L)。

1.4.2 径流量及碳氮排放负荷的计算方法<sup>[24]</sup>

地表径流量的计算公式:

$$x = \int_{0}^{t} q_{t}(t) dt \approx \sum_{i=1}^{n-1} \frac{q_{i} + q_{i+1}}{2}$$
(2)

碳氮排放负荷计算公式:

$$y_j = \int_0^t c_i(t) \times q_i(t) \, dt \approx \sum_{i=1}^{n-1} ? t \frac{c_i + c_{i+1}}{2} \times \frac{q_i + q_{i+1}}{2}$$
(3)

式中,x为径流量(m<sup>3</sup>); $q_i$ 为t时刻的流量(m<sup>3</sup>/s); $q_i$ 为样本i在监测时的流量(m<sup>3</sup>/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); $c_i$ 为第j种污染物在样本i监测时的浓度(mg/L);  $\Delta t$ 为样本i和i+1的时间间隔(s)。

# 2 结果与分析

2.1 流域湿沉降季节变化

2.1.1 流域年降雨变化特征

由图 2 中可以看出,千烟洲香溪流域降雨季节差异较为明显,3—9 月雨水丰沛,占全年降雨量的 60%—80%,年际变化较大。流域降雨事件以中小雨为主(日降雨量小于 10 mm 为小雨,10—25 mm 为中雨,25—50 mm 为大雨,50 mm 以上为暴雨),2014 年和 2015 年降雨天数共 336 d,大雨及以上天数仅为 34 d。另外,2015 年极端降雨事件发生频次高于 2014 年。2014 年共出现 4 次日降雨量 50 mm 以上的暴雨事件,全年没有出现超过 100 mm 的大暴雨事件;2015 年共出现 4 次暴雨事件和 2 次大暴雨事件。

#### 2.1.2 流域 C、N 湿沉降季节变化

本研究共收集了 2014 年 7 月—2015 年 8 月 67 场降雨(其中有 2 场暴雨,3 场大雨,21 场中雨,41 场小



Fig.2 Variations of monthly rainfall in the watershed from 2014 to 2015

雨)进行室内雨水化学特征分析。如图 3 所示,雨水中各形态碳氮浓度表现出明显的季节性差异。7 月份到 2 月份的 31 场降雨中的 NO<sub>3</sub>、NH<sub>4</sub>、TN、DTN 和 DOC 浓度整体较高,这段时间酸雨(pH<5.6)事件频繁发生(16 次),3 月份到 6 月份氮碳沉降均维持在较低的浓度水平,而 pH 值相对较高,酸雨次数明显减少,其原因可能 是 3 月份开始降雨增多,对大气污染物的冲刷作用较强,导致雨水中碳氮浓度较低。图 3 中 TN、DTN、NO<sub>3</sub>、 NH<sub>4</sub> 浓度的变化具有较好的一致性。11 月份到 4 月,TN 的浓度远高于 DTN,说明这段时间大气中存在较多 的颗粒态氮素,5 月份到 10 月份雨水中的氮沉降以溶解性无机氮(NO<sub>3</sub> 和 NH<sub>4</sub>)为主。整体来看,NO<sub>3</sub> 和 NH<sub>4</sub> 的浓度相差不大(图 3)。另外,雨水中 DOC 与 TN 浓度变化大体上呈同步的态势(图 3)。

# 2.2 流域径流 C、N 变化特征

### 2.2.1 季节变化特征

本次实验共采集了 2014 年 8 月—2015 年 8 月 19 场降雨径流过程样品。流域降雨径流过程中各形态碳 氮月平均浓度表现出明显的季节性差异。4 月和 5 月降雨径流中氮含量相对较高,其中 4 月 28 日降雨产生 的径流中各形态氮浓度均为观测结果中的最大值,其对应的径流 pH(图 4)为观测期间的最低值。2014 年 8 月份流域径流过程中的 DOC 浓度最高,2015 年 3 月、4 月和 5 月径流过程中的 DOC 浓度较低(图 4)。DOC 浓度最大值出现在 2014 年 8 月 14 日(12.06 mg/L)。图 4 可以看出,降雨径流样品中的 TN 浓度远大于 DTN 浓度,说明流域径流中氮素以颗粒态氮为主。由图 4 可以看出,降雨径流中 NH<sup>4</sup> 的浓度明显小于 NO<sup>5</sup>,并且 随季节的变化无明显规律,不同场降雨径流之间差异非常大,这可能是由于铵态氮容易受温度、pH 等环境的 影响而挥发到空气中导致;NO<sup>5</sup> 随时间的推移呈渐变的趋势,有两个明显的高峰时间段,分别为 4 月 28 日和 8 月 10 日前后,可以推测出这两个时间节点为当地施肥期,另外 DTN 与 NO<sup>5</sup> 的变化情况基本一致,说明溶解 性总氮的主要成分是硝态氮。与雨水样品相比,降雨径流中各指标浓度明显较低,并且变化幅度较小,其原因 应该是植物和土壤截留了一部分雨水中的营养物质,而流域水体对降雨有一定的缓冲稀释作用。

# 2.2.2 次降雨事件流域径流 C、N 动态变化

从观测到的 19场降雨径流中选取 4场不同降雨强度的典型降雨事件对碳氮输出动态特征进行分析,



图 3 流域 NO<sub>3</sub>、NH<sup>1</sup>、TN、DTN 和 DOC 湿沉降和雨水 pH 变化特征

Fig.3 Variations of  $NO_3^-$ ,  $NH_4^+$ , TN, DTN and DOC wet deposition and pH in rainwater

TN:Total Nitrogen,总氮;DTN: Dissolved Total Nitrogen,溶解性总氮;DOC: Dissolved Organic Carbon,溶解性有机碳

2015年3月15日、3月16日、5月19日和8月9日的降雨量分别为12.0 mm(中雨)、7.0 mm(小雨)、100.0 mm(暴雨)、46.9 mm(大雨)。4场降雨均出现了不同程度的径流峰值(图5),暴雨条件下的径流量在整场降雨事件中均处于较高的状态,降雨初期的径流峰值非常明显,高达0.866 m<sup>3</sup>/s,达到峰值后,径流量快速下降,后期径流量一直处于下降状态;大雨条件下的初期径流峰值也较为明显,为0.131 m<sup>3</sup>/s,达到峰值后径流量快速下降至平稳水平;中雨和小雨条件下径流过程也有一定的峰值,但不太明显,分别为0.026 m<sup>3</sup>/s 和 0.035 m<sup>3</sup>/s,整体径流量波动较小。

对比降雨径流量与碳氮浓度动态变化过程可以看出,碳氮浓度与径流量之间没有明显的关系,不同指标的变化情况差异较大。TN 随降雨历时的增加波动较大,且无明显规律,暴雨条件下的 TN 浓度整体上高于其他雨强(图6)。在4场降雨径流过程中,除小雨条件下的 NH<sup>4</sup> 和 DTN 浓度在降雨前期稍有波动外,NO<sup>5</sup><sub>3</sub>、NH<sup>4</sup> 和 DTN 浓度均处于较平稳的状态,在各场降雨中,NO<sup>5</sup><sub>3</sub> 浓度均明显高于 NH<sup>4</sup><sub>4</sub>,8月9日大雨条件下的 NO<sup>5</sup><sub>3</sub> 浓度明显高于其他强度的降雨(图6)。而暴雨条件下的 DOC 浓度明显小于其他降雨条件,在降雨刚开始时出现了峰值,8.29 mg/L,其后一直处于较低水平(1.79 mg/L 左右),且变化较小。4场降雨径流的 DOC 最大值出现在 8月9日(大雨)的降雨初期,为15.06 mg/L。另外,单因素方差分析显示,不同降雨强度之间的 TN 浓度、DOC 浓度以及 C:N 均存在显著差异(P<0.05)。

# 3 讨论

# 3.1 流域 C、N 耦合特征

雨水 DOC 是世界上大部分地区降雨中溶解物质的一个主要组成部分<sup>[5]</sup>,研究表明降雨中的 DOC 主要是 来源于陆地有机污染物向大气中的排放,比如化石燃料燃烧后的废气排放、工业废气排放以及植被和动物排 放的易挥发有机物等<sup>[3,10,25-26]</sup>;雨水中的氮主要来自于工农业和畜牧业生产活动<sup>[7,27]</sup>。本研究中大气降水中 6

4

2

NO<sub>3</sub>-浓度







的 DOC 浓度平均为 5.28 mg/L.高于吕茂奎等<sup>[28]</sup>在福 建三明地区的研究(1.90 mg/L)和罗艳等<sup>[29]</sup>在鼎湖山 地区的研究(3.70 mg/L),说明观测期间香溪流域的空 气污染情况较为严重[5],考虑到采样地区位于农村,人 口和机动车辆较少,也无工厂等污染源,其污染可能来 自附近城市的大气转移。香溪流域大气降水中的 TN 浓度平均为 5.91 mg/L,回归分析表明,雨水中 DOC 浓 度和 TN 浓度呈极显著正相关关系(P<0.01)(图 7),说 明香溪河流域上空大气中的 DOC 和 TN 可能存在相近 的污染来源,比如化石燃料燃烧释放的废气(含大量的 有机碳氮)等,且这种来源可能是导致香溪河流域空气 污染的主要因素,并引起了雨水中碳氮的耦合效应。

降雨径流过程中 DOC 和 TN 浓度与流域的土壤侵



蚀过程相关,随着降雨等水文过程变化[9]。不同降雨强度下的雨水对土壤产生的冲击侵蚀进程差异较大,径 流中的碳、氮浓度变化对不同强度降水的响应明显不同(图6),中、小雨条件下径流输出的碳氮比与大、暴雨 有极显著差异(P<0.01),Gao 等<sup>[8]</sup>的研究表明,不同的降雨事件引起的土壤侵蚀过程可能会导致氮素的吸附 或解吸。图 7 中的径流样品来自不同的降雨事件,尽管雨水和土壤中的碳氮都有极显著的正相关关系(P<0. 01)(图7),但是由于每次降雨事件对土壤的冲刷力度以及对土壤中有机质和氮素的作用不同,降雨径流输出 的 DOC 和 TN 浓度无显著相关性(P=0.38)(图7),即径流过程中的不同降雨强度对土壤的冲刷力度不同导 致了径流中碳氮耦合现象的消失。



图 6 流域不同降雨强度下产生的径流中碳氮浓度随降雨历时变化 Fig.6 Variation of C and N concentration with rainfall duration in rainfall-runoff produced by different rainfall intensities

流域水体 DOC 的外源和内源分别是降雨径流输入以及对土壤的侵蚀冲刷输入和河流内浮游植物的生长释放<sup>[30-31]</sup>。香溪流域常规水体中的 DOC 浓度均值为 8.51 mg/L,高于全球河流平均水平 5.75 mg/L<sup>[30]</sup>。研究表明,温度、降水以及地表径流量对流域水体 DOC 含量有显著影响<sup>[32-34]</sup>,香溪河流域全年 70%左右的降雨集中在雨季高温时期,此时植被生产力较高,地表及土壤中有机物质含量较高,极易被雨水冲刷流失,导致水体DOC 含量偏高。回归分析表明,流域常规水体中的 DOC 和 TN 浓度呈显著负相关(*P*<0.05),河流氮素的输入增加会刺激微生物的生长,影响微生物的数量和组成,进而影响微生物种群之间的竞争关系,最终影响 DOC 的分解和吸收<sup>[35]</sup>,另外,DOC 在生物反硝化脱氮进程中有重要作用<sup>[36]</sup>,有机碳源既作为反硝化菌合成细胞的能源,又作为反硝化反应中的电子供体,能促进水体氮素转化为 N<sub>2</sub>O 和 N<sub>2</sub>从水体释放到大气中,从而降低水体 TN 含量,所以,微生物可能是引起流域常规水体中碳氮耦合现象的主要因素。

水体中 pH 对 DOC 的影响存在很大的不确定性<sup>[37-38]</sup>。Schindler 等<sup>[39]</sup>的研究发现水体酸化会导致 DOC 含量的大幅下降,Hessen 等<sup>[40]</sup>在挪威进行的流域尺度的酸化实验则表明水体 DOC 浓度没有明显变化。本研 究对香溪河流域常规水体的监测结果发现,水体 DOC 浓度与 pH 无显著相关性(*P*=0.201),TN 浓度与 pH 有 一定的相关性(*P*=0.054),水体碳氮比(DOC:TN)与 pH 相关性不显著(*P*=0.09),另外,大气降水和降雨径流 中碳氮比和 pH 之间也不存在显著相关性(*P*=0.64,*P*=0.37)(图 7)。水体 pH 与碳氮比的关系复杂,一方面, NO<sub>3</sub> 和 NH<sup>4</sup> 的相对含量对水体 pH 有直接调节作用,河流 C:N 会对水中浮游生物的生长繁殖有重要影 响<sup>[41-42]</sup>,这一过程必然会引起水体 pH 的变化<sup>[43-44]</sup>;另一方面,水体 pH 的变化会对微生物及藻类的生长活动 产生显著影响<sup>[45-46]</sup>,进而影响 DOC 和 TN 的分解释放。暴雨事件导致的碳氮输入会使流域水体中的碳氮关 系发生明显变化<sup>[8]</sup>。本研究表明部分降雨径流中的 C:N 明显高于流域常规水体(图 8),这应该是由于降雨 的强度不同导致,高强度降水对土壤的强力侵蚀冲刷作用使得径流中的 C:N 位于土壤 C:N 区间,在强度较小 的降雨事件中,较弱的冲刷作用导致径流中的碳氮比落在雨水 C:N 区间内。雨水 C:N 与常规水体相近,说明



图 7 流域雨水沉降、降雨径流和常规水体输出的碳氮线性拟合及 pH 对其的影响和土壤中碳氮线性拟合关系 Fig.7 Fitting linear relationship of C and N in wet deposition, rainfall-runoff and conventional water body; effect of pH on it; and fitting linear relationship of C and N contents in soil

大气湿沉降是流域水体碳氮的主要来源,其主要原因是 由于流域降水以中小雨为主,全年雨水对土壤产生的冲 刷作用有限,所以流域常规水体 C:N 几乎未受土壤的 影响。根据 Redfield<sup>[47]</sup>提出的植物性浮游生物体内的 营养物质化学计量比关系,C:N:P=106:16:1,可以看 出,流域水体适宜浮游生物生长的 C:N 应在 6.6 左右, 香溪河流域常规水体 C:N 范围为 0.17—6.23,均值为 2. 81,远低于适宜水平,说明外源性 N 输入导致该流域水 体环境处于 N 过量的状态,长期输出会提高下游鄱阳 湖水系的营养化程度,由于水体碳氮的主要来源是大气 沉降,且沉降来源可能是来自附近城市的大气转移,应 考虑控制附近大型工厂以及城市生活废气排放,以改善 该地区的水质状况。





**3.2** 评估流域 C、N 输入输出平衡森林流域的碳氮收支平衡在维持生态系统功能及稳定性方面具有重要意义<sup>[48-49]</sup>。降雨过程驱动的碳氮输移是流域生态系统碳氮循环及平衡中的一个重要组成部分<sup>[23,50]</sup>。千烟洲香溪流域湿沉降 DOC 年输入量为 69.41 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>(图 9),远高于 Pan<sup>[13]</sup>在中国北方的研究(19 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>)以及徐彩丽等<sup>[10]</sup>在山东的研究(15.1 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>),与 Williams 等在巴西亚马逊流域地区的研究结果接近(48 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>)<sup>[51]</sup>,丰沛的降雨量应该是香溪河流域 DOC 沉降通量高于我国北部地区的主要因素之一,另外,国内空气污染状况较为严重可能是造成本研究与 Williams 等<sup>[51]</sup>的研究结果出现差异的重要原因。香溪流域 TN

湿沉降通量为 77.23 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>,同样高于国内相关研究的报道<sup>[19,52-53]</sup>,有研究指出亚洲地区尿素化肥的使用 是雨水中尿素的重要来源<sup>[54]</sup>,香溪河流域表现出的高氮湿沉降量可能是由于该地区过量施肥导致;另外,本 研究中无机氮湿沉降量(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)为 30.82 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>,占总氮沉降量的 39.9%,即一半以上的氮沉降由有 机氮贡献,流域周边城市的生活、工业产生的空气污染问题可能是造成这一结果的原因,应予以高度重视并进 行相关调查以进一步分析。



图 9 基于降雨驱动的流域 C、N 输入输出平衡示意图/(kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>) Fig.9 Schematic diagram of C, N input and output balance based on rainfall-driven

香溪河流域降雨径流输出 DOC 和 TN 通量为 10.21 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>和 14.29 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>,分别占湿沉降通量的 14.7%和 18.5%。说明流域内植物和土壤截留了大部分降雨沉降的营养物质。有研究表明降雨带入的氮是农 田生态系统氮素补给的重要来源,为辽宁省氮肥施用量的 11.3%<sup>[55]</sup>。资料显示,香溪流域内氮肥年均使用量 约为 189.98 kg hm<sup>-2</sup>,生态系统截留的沉降氮素占其 33.13%,可见大气降水对亚热带流域生态系统的营养物 质输入量非常之大,其影响不容忽视。

查阅千烟洲相关文献,可以得到土壤  $N_2O$  排放通量为 0.6 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1[56]</sup>, 生态系统净交换 CO<sub>2</sub>(Net Ecosystem Exchange, NEE)通量为-3872 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1[57]</sup>。在不考虑人类农业活动(施肥、收获、耕种固氮作物等)等过程对流域生态系统碳氮平衡影响的情况下,得出碳收支情况为+ 3931.20 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>, 氮收支为+ 62. 34 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>, 即流域在自然情况下既为碳汇, 又为氮汇, 由于植物光合作用驱动的碳吸收通量远高于沉降及 径流输出通量, 降雨过程对流域碳输入输出平衡影响较小, 对氮的输入输出平衡的影响较大。

# 4 结论

通过本研究发现亚热带流域大气降水中的 DOC 浓度平均为 5.28 mg/L, TN 浓度平均为 5.91 mg/L, 雨水 中 DOC 浓度和 TN 浓度呈极显著正相关关系。各水体中营养物质来源是影响碳氮关系的主要因素, 香溪河 流域常规水体 C:N 均值为 2.81, 远低于根据 Redfield 比率得出的适宜浮游生物生长的 C:N(6.6 左右), 说明 外源性 N 输入导致该流域水体环境处于 N 过量的状态, 长期输出会提高下游鄱阳湖水系的营养化程度。流 域湿沉降 DOC 年输入量为 69.41 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>, TN 湿沉降通量为 77.23 kg hm<sup>-2</sup> a<sup>-1</sup>, 碳氮沉降水平受区域降雨

量及空气污染情况控制。大气营养物质对亚热带流域生态系统的营养输入不容忽视,在不考虑人类活动(施肥、收获、耕种固氮作物等)干扰情况下,流域既为碳汇,又为氮汇,降雨过程对流域碳输入输出平衡影响较小,对氮的输入输出平衡的影响较大。

#### 参考文献(References):

- [1] Kudrevatykh I Y. Assessment of the relationship between atmospheric deposition of mineral nitrogen and vegetation in forest ecosystems. Biology Bulletin, 2017, 44(2): 210-217.
- [2] 常运华, 刘学军, 李凯辉, 吕金岭, 宋韦. 大气氮沉降研究进展. 干旱区研究, 2012, 29(6): 972-979.
- [3] Avery Jr. G B, Brown J L D, Willey J D, Kieber R J. Assessment of rainwater volatile organic carbon in southeastern North Carolina, USA. Atmospheric Environment, 2009, 43(16): 2678-2681.
- [4] Kudrevatykh I Y, Ivashchenko K V, Ananyeva N D, Ivanishcheva E A. Atmospheric Nitrogen Deposition and the Properties of Soils in Forests of Vologda Region. Eurasian Soil Science, 2018, 51(2): 153-162.
- [5] Willey J D, Kieber R J, Eyman M S, Avery Jr G B. Rainwater dissolved organic carbon: Concentrations and global flux. Global Biogeochemical Cycles, 2000, 14(1): 139-148.
- [6] Bourgeois I, Savarino J, Némery J, Caillon N, Albertin S, Delbart F, Voisin D, Clément J-C. Atmospheric nitrate export in streams along a montane to urban gradient. Science of the Total Environment, 2018, 633; 329-340.
- [7] Gao Q, Chen S, Kimirei I A, Zhang L, Mgana H, Mziray P, Wang Z D, Yu C, Shen Q S. Wet deposition of atmospheric nitrogen contributes to nitrogen loading in the surface waters of Lake Tanganyika, East Africa: a case study of the Kigoma region. Environmental Science and Pollution Research, 2018, 25(12): 11646-11660.
- [8] Gao Y, Zhu B, Yu G R, Chen W L, He N P, Wang T, Miao C Y. Coupled effects of biogeochemical and hydrological processes on C, N, and P export during extreme rainfall events in a purple soil watershed in southwestern China. Journal of Hydrology, 2014, 511: 692-702.
- [9] 鄂馨卉, 汪亚峰, 高扬, 陈利顶, 陈世博, 陈维梁. 黄土高原降雨驱动下流域碳输移特征及其碳流失评估: 以羊圈沟坝系流域为例. 环境 科学, 2017, 38(8): 3264-3272.
- [10] 徐彩丽,罗春乐,薛跃君,葛田田,王旭晨.山东省降雨和降雪中溶解有机碳、溶解无机碳和总氮的浓度变化及来源分析.环境科学学报,2016,36(2):658-666.
- [11] Ma X L, Liu G M, Wu X D, Smoak J M, Ye L L, Xu H Y, Zhao L, Ding Y J. Influence of land cover on riverine dissolved organic carbon concentrations and export in the Three Rivers Headwater Region of the Qinghai-Tibetan Plateau. Science of the Total Environment, 2018, 630: 314-322.
- [12] Raymond P A, Bauer J E. Riverine export of aged terrestrial organic matter to the North Atlantic Ocean. Nature, 2001, 409(6819): 497-500.
- [13] Pan Y P, Wang Y S, Xin J Y, Tang G Q, Song T, Wang Y H, Li X R, Wu F K. Study on dissolved organic carbon in precipitation in Northern China. Atmospheric Environment, 2010, 44(19): 2350-2357.
- [14] Evans C D, Monteith D T, Cooper D M. Long-term increases in surface water dissolved organic carbon: observations, possible causes and environmental impacts. Environmental Pollution, 2005, 137(1): 55-71.
- [15] Zhan X, Bo Y, Zhou F, Liu X J, Paerl H W, Shen J L, Wang R, Li F R, Tao S, Dong Y J, Tang X Y. Evidence for the importance of atmospheric nitrogen deposition to eutrophic Lake Dianchi, China. Environmental Science & Technology, 2017, 51(12): 6699-6708.
- [16] Camargo J A, Alonso A. Ecological and toxicological effects of inorganic nitrogen pollution in aquatic ecosystems: A global assessment. Environment International, 2006, 32(6): 831-849.
- [17] Diez B, Nieuwerburgh L V, Snoeijs P. Water nutrient stoichiometry modifies the nutritional quality of phytoplankton and somatic growth of crustacean mesozooplankton. Marine Ecology Progress Series, 2013, 489: 93-105.
- [18] Hao Z, Gao Y, Yang T T. Seasonal variation of DOM and associated stoichiometry for freshwater ecosystem in the subtropical watershed: Indicating the optimal C:N:P ratio. Ecological Indicators, 2017, 78: 37-47.
- [19] 王小治,朱建国,高人,宝川靖和.太湖地区氮素湿沉降动态及生态学意义:以常熟生态站为例.应用生态学报,2004,15(9): 1616-1620.
- [20] 刘畅,唐国勇,童成立,夏海鳌,蒋平,林蕴华.不同施肥措施下亚热带稻田土壤碳、氮演变特征及其耦合关系.应用生态学报,2008,19
  (7):1489-1493.
- [21] 江叶枫, 郭熙, 孙凯, 饶磊, 李婕, 王澜珂, 叶英聪, 李伟峰. 江西省耕地土壤碳氮比空间变异特征及其影响因素. 环境科学, 2017, 38 (9): 3840-3850.
- [22] 韩宁,陈维梁,高扬,郝卓,于贵瑞. 基于 SWAT 与 DNDC 模型对比研究亚热带流域氮淋溶与输出过程. 环境科学, 2017, 38(6):

39卷

2317-2325.

- [23] Huang Y L, Lu X X, Chen K. Wet atmospheric deposition of nitrogen: 20 years measurement in Shenzhen City, China. Environmental Monitoring and Assessment, 2013, 185(1): 113-122.
- [24] 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.
- [25] Hu Z Y, Wang G X, Sun X Y. Precipitation and air temperature control the variations of dissolved organic matter along an altitudinal forest gradient, Gongga Mountains, China. Environmental Science and Pollution Research, 2017, 24(11): 10391-10400.
- [26] 邹宇,邓雪娇,李菲,王伯光,谭浩波,邓涛,麦博儒,刘显通.广州大气中异戊二烯浓度变化特征、化学活性和来源分析.环境科学学报,2015,35(3):647-655.
- [27] Nanus L, McMurray J A, Clow D W, Saros J E, Blett T, Gurdak J J. Spatial variation of atmospheric nitrogen deposition and critical loads for aquatic ecosystems in the Greater Yellowstone Area. Environmental Pollution, 2017, 223: 644-656.
- [28] 吕茂奎,谢锦升,江森华,罗水金,曾少娟,纪淑蓉,万菁娟,杨玉盛.米槠常绿阔叶次生林和杉木人工林穿透雨和树干径流可溶性有机 质浓度和质量的比较.应用生态学报,2014,25(8);2201-2208.
- [29] 罗艳,周国逸,张德强,官丽莉,欧阳学军,褚国伟. 鼎湖山三种主要林型水文学过程中总有机碳浓度对比. 生态学报, 2004, 24(12): 2973-2978.
- [30] Bayarsaikhan U, Ruhl A S, Jekel M. Characterization and quantification of dissolved organic carbon releases from suspended and sedimented leaf fragments and of residual particulate organic matter. Science of the Total Environment, 2016, 571: 269-274.
- [31] 石国华. 陆地生态系统溶解性有机碳的时空分布格局与通量估算[D]. 咸阳:西北农林科技大学, 2017.
- [32] Tian Y Q, Yu Q, Feig A D, Ye C J, Blunden A. Effects of climate and land-surface processes on terrestrial dissolved organic carbon export to major U. S. coastal rivers. Ecological Engineering, 2013, 54: 192-201.
- [33] Hruška J, Krám P, McDowell W H, Oulehle F. Increased dissolved organic carbon (DOC) in Central European streams is driven by reductions in ionic strength rather than climate change or decreasing acidity. Environmental Science & Technology, 2009, 43(12): 4320-4326.
- [34] Singh N K, Reyes W M, Bernhardt E S, Bhattacharya, R, Meyer J L, Knoepp J D, Emanuel R E. Hydro-Climatological Influences on Long-Term Dissolved Organic Carbon in a Mountain Stream of the Southeastern United States. Journal of Environmental Quality, 2016, 45(4): 1286-1295.
- [35] Brunet F, Potot C, Probst A, Probst J-L. Stable carbon isotope evidence for nitrogenous fertilizer impact on carbonate weathering in a small agricultural watershed. Rapid Communications in Mass Spectrometry, 2011, 25(19): 2682-2690.
- [36] 芮艳兰. 滇池湖滨带浅层地下水脱氮技术中试研究[D]. 昆明: 云南大学, 2016.
- [37] Stoddard J L, Karl J S, Deviney F A, DeWalle D R, Driscoll C T, Herlihy A T. Response of surface water chemistry to the Clean Air Act Amendments of 1990. Report EPA 620/R-03/001. North Carolina: United States Environmental Protection Agency, 2003.
- [38] David M, Vance G, Kahl J. Chemistry of dissolved organic carbon at bear brook watershed, Maine: stream water response to (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> additions. Environmental Monitoring and Assessment, 1999, 55(1): 149-163.
- [39] Schindler D W, Bayley S E, Curtis P J, Parker B R, Stainton M P, Kelly C A. Natural and man-caused factors affecting the abundance and cycling of dissolved organic substances in precambrian shield lakes. Hydrobiologia, 1992, 229(1): 1-21.
- [40] Hessen D O, Gjessing E T, Knulst J, Fjeld E. TOC fluctuations in a humic lake as related to catchment acidification, season and climate. Biogeochemistry, 1997, 36(1): 139-151.
- [41] Satoh H, Okabe S, Norimatsu N, Watanabe Y. Significance of Substrate C/N Ratio on structure and activity of nitrifying biofilms determined by in situ hybridization and the use of microelectrodes. Journal of Japan Society on Water Environment, 2000, 41(4/5): 317-321.
- [42] 施沁璇,王俊,盛鹏程,罗毅志,吴琦芳,黄小红,叶雪平.淡水养殖池塘中水体碳氮比对养殖环境的影响.江苏农业科学,2017,45 (21):186-189.
- [43] 袁元, 钟鸿雁. 水生植物对水体 pH 值影响的原因探究. 江西化工, 2008, (2): 62-64.
- [44] 梁喜珍,李畅游,李兴,杨志岩.乌梁素海富营养化水体 pH 值与其他指标的相关性初探.中国农村水利水电,2009,(12):1-3,6-6.
- [45] Oliver R L, Ganf G G. Freshwater blooms//Whitton B A, Potts M, eds. The Ecology of Cyanobacteria. Dordrecht: Springer, 2000: 149-194.
- [46] 赵联芳,朱伟,莫妙兴. 沉水植物对水体 pH 值的影响及其脱氮作用. 水资源保护, 2008, 24(6): 64-67.
- [47] Redfield A C, Ketchum B H, Richards F A. The influence of organisms on the composition of sea-water. The Sea, 1963, 40(6): 640-644.
- [48] Rapport D J, Whitford W G. How ecosystems respond to stress: Common properties of arid and aquatic systems. Bioscience, 1999, 49(3): 193-203.
- [49] 王茜,吴胜军,肖飞,薛怀平,任宪友.洪湖湿地生态系统稳定性评价研究.中国生态农业学报,2005,13(4):178-180.
- [50] Raymond P A. The composition and transport of organic carbon in rainfall: Insights from the natural (<sup>13</sup>C and <sup>14</sup>C) isotopes of carbon. Geophysical Research Letters, 2005, 32(14): L14402.

- [51] Williams M R, Fisher T R, Melack J M. Chemical composition and deposition of rain in the central Amazon, Brazil. Atmospheric Environment, 1997, 31(2): 207-217.
- [52] 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测研究. 中国环境科学, 2007, 27(1): 7-9.
- [53] 宋欢欢, 姜春明, 宇万太. 大气氮沉降的基本特征与监测方法. 应用生态学报, 2014, 25(2): 599-610.
- [54] Cornell S, Mace K, Coeppicus S, Duce R, Huebert B, Jickells T, Zhuang L Z. Organic nitrogen in Hawaiian rain and aerosol. Journal of Geophysical Research, 2001, 106(D8): 7973-7983.
- [55] 宇万太,马强,张璐,周桦.下辽河平原降雨中氮素的动态变化.生态学杂志,2008,27(1):33-37.
- [56] 王磊,程淑兰,方华军,于贵瑞,党旭升,李晓玉,司高月,耿静,何舜.外源性 NH<sub>4</sub> 和 NO<sub>3</sub> 输入对亚热带人工林土壤 N<sub>2</sub>O 排放的影响. 土壤学报, 2016, 53(3): 724-734.
- [57] 刘允芬,于贵瑞,温学发,王迎红,宋霞,李菊,孙晓敏,杨风亭,陈永瑞,刘琪璟.千烟洲中亚热带人工林生态系统 CO<sub>2</sub>通量的季节变 异特征.中国科学 D 辑:地球科学,2006,36(S1):91-102.