

陈能汪, 洪华生, 张珞平. 2009 九龙江流域氮的源汇时空模式与机理初探 [J]. 环境科学学报, 29 (4): 830– 839

Chen N W, Hong H S, Zhang L P. 2009. Preliminary results concerning the spatio-temporal pattern and mechanism of nitrogen sources and exports in the Jiulong River watershed [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 29 (4): 830– 839

九龙江流域氮的源汇时空模式与机理初探

陈能汪, 洪华生*, 张珞平

近海海洋环境科学国家重点实验室, 厦门大学环境科学研究中心, 厦门 361005
收稿日期: 2008-06-12 修回日期: 2008-10-21 录用日期: 2009-02-24

摘要: 综合运用定位监测、野外试验、模型模拟与 GIS 技术等手段和方法, 定量研究了亚热带地区九龙江流域和五川小流域氮的大气沉降、河流输送 (地表径流)、淋失、反硝化和氨挥发等输入输出 (源汇) 时空模式与机理。结果表明, 九龙江流域氮“源”以化肥与饲料输入为主 (占总输入 125.6 kg hm⁻² 的 86%), 氮“汇”以氨挥发和河流输送为主 (占总输出 72.9 kg hm⁻² 的 82%)。氮输入后 50% 以上进入大气和水环境, 14.3% 通过河流输送至河口与近海。大气氮沉降通量为 14.9 kg hm⁻², 其中干沉降占 34%, 湿沉降占 66%, 形成 1:2 的干湿沉降结构; 源于化肥施用与畜禽养殖引起的强烈氨挥发, 氮沉降集中在春夏两季 (占全年 80%), 且以铵态氮为主 (39% 以上)。氮的径流输出及河流输送受人为氮输入与水文条件的双重控制, 2004 年九龙江向厦门海域输送无机氮 11.5 kg hm⁻², 其中 90% 发生在春夏秋季 (同期流量占全年 89%); 五川小流域总氮径流输出负荷为 67.1 kg hm⁻², 其中 83% 发生在施肥量大、降雨集中的春夏两季 (作物生长期); 基流与降雨径流分别贡献 25% 和 73%。总氮淋失负荷为 27.5 kg hm⁻², 占总输入的 9%; pH < 5 的酸性土壤带正电荷导致氮淋失以铵态氮为主 (约占 40%)。九龙江流域反硝化通量为 7.7 kg hm⁻², 而氨挥发高达 42.1 kg hm⁻², 氨挥发主要来自化肥施用与畜禽养殖 (分别贡献 50% 和 39%)。减少春夏时期肥料氮的输入 (养分管理), 有效截留雨季的降雨径流 (水文控制) 是该流域氮素管理的关键。

关键词: 氮; 源汇; 时空分布; 氮收支; 九龙江流域

文章编号: 0253-2468 (2009) 04-830-10 中图分类号: X 171 文献标识码: A

Preliminary results concerning the spatio-temporal pattern and mechanism of nitrogen sources and exports in the Jiulong River watershed

CHEN Nengwang, HONG Huasheng*, ZHANG Luoping

State Key Laboratory of Marine Environmental Science, Environmental Science Research Center, Xiamen University, Xiamen 361005
Received 12 June 2008 **received in revised form** 21 October 2008 **accepted** 24 February 2009

Abstract Excessive reactive nitrogen (N) additions from human activities have resulted in serious and long-term environmental consequences for large regions of the Earth. An understanding of N sources and their export pattern is important for selecting the proper remedial strategies to control nutrient losses from the watershed. In this study, the N sources and exports were determined for the Jiulong River Watershed (JRW), a coastal watershed with an area of 1.47 × 10⁴ km² in the southeast of China, and the Wuchuan subwatershed (1.88 km²), a small agricultural watershed in the up-stream Jiulong River. Water quality monitoring, field measurements, mechanism models and GIS techniques were linked to estimate the N flux of atmospheric deposition, stream flow discharge, leaching, denitrification, and ammonia volatilization. Two scale watershed N budgets based on 2004 data were used to identify N sources and the primary path of N losses. The N budget for JRW showed that fertilizer and animal feedstuffs contributed 86% of the total N input (125.6 kg hm⁻²); while stream flow discharge and ammonia volatilization contributed 82% of the total N output (72.9 kg hm⁻²). More than half of the anthropogenic N input was lost to the air and water. About 14.3% of the N input was discharged to rivers and subsequently delivered to the estuary. The annual deposition flux of atmospheric N amounted to 14.9 kg hm⁻², of which dry deposition and wet deposition accounted for 34% and 66%, respectively. About 80% of atmospheric deposition occurred in spring and summer, indicating that higher ammonia volatilization from fertilizer application in the growing season, and animal feeding together provided the largest N source. The Jiulong River provided dissolved inorganic N transport of 11.5 kg hm⁻² to the estuary, of which more than 90% occurred from March through November (wet season) resulting from 89% of the total flow. Compared with the baseflow, storm flow contributed about 73% of the annual N export (67.1 kg hm⁻²) in the Wuchuan subwatershed. There, stream flow export was greater in spring (43%) and summer (42%) when more fertilizer was used for growing crops. Annual N leaching (averaged 27.5 kg hm⁻²),

基金项目: 国家自然科学基金国际 (地区) 合作交流项目 (No. 40810069004); 福建省“十五”重大科技资助项目 (No. 2002H1009)
Supported by the Projects of International Cooperation and Exchanges NSFC (No. 40810069004) and the Department of Science and Technology of Fujian Province, P. R. China (No. 2002H1009)
作者简介: 陈能汪 (1976—), 男, 副教授; * 通讯作者 (责任作者), E-mail: hshong@xmu.edu.cn
Biography: CHEN Nengwang (1976—), male, associate professor. * **Corresponding author**, E-mail: hshong@xmu.edu.cn
© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. <http://www.cnki.net>

accounting for 9% of the total N input was dominated by ammonium (40%) rather than the nitrate form (20%), as a result of the acidic soil being positively charged at $\text{pH} < 5$. The annual flux of denitrification in JRW was 7.7 kg hm^{-2} . However, commercial fertilizer use and animal feeding contributed 50% and 39%, respectively, to the high volatilization rate of 42.1 kg hm^{-2} . Reducing the N input by a more efficient use of fertilizers during the growing season (nutrient management), and trapping storm runoff during the wet season (hydrological control) offer the keys to eliminating N pollution in this region.

Keywords nitrogen sources and exports; spatio-temporal pattern; nitrogen budget; Jialong River watershed

1 引言 (Introduction)

人类活动正以惊人的速度改变陆地生态系统氮循环 (Galbway *et al.*, 2004). 活化氮的大量输入使得生态系统氮“超载”, 并引发系列生态环境问题 (Vitousek *et al.*, 1997). 世界各国正致力于减少氮的排放以缓解环境压力, 研究学者更倾向把河流-流域-河口-海湾系统作为整体, 研究营养盐的输入 (源)、输出 (汇) 规律和循环 (收支) 模式 (Henriksen *et al.*, 1997; Alexander *et al.*, 2008). 全球范围内开展的大量氮收支研究表明, 氮输入主要来源于农业生产和能源使用 (Van Breemen *et al.*, 2002; Xing and Zhu, 2002). 氮素输出受到土壤地形等流域特征、气象水文、土地利用与管理措施的综合影响 (Howarth *et al.*, 1996). 全球营养盐从陆地向海洋输出具有不均匀的时空变化特征, 北美、欧洲和东亚 (特别是中国) 等区域营养盐的循环对全球营养盐的循环有特别重要的贡献和影响 (晏维金, 2006). 本研究针对地处亚热带季风区且以农业开发为主的九龙江流域, 综合运用定位监测、野外试验、模型模拟与 GIS 技术等手段和方法, 在九龙江流域与五川小流域两个尺度上定量研究氮的大气沉降、河流输送 (地表径流)、淋失、反硝化和氨挥发等输入输出过程, 并基于 2004 年氮收支数据初步探讨氮的源汇机制, 以期为氮素流失“源头控制”、“过程控制”以及流域与海岸带管理提供科学基础.

2 材料与方法 (Materials and method)

2.1 研究区概况

九龙江流域面积 14700 km^2 , 地处亚热带季风区 (图 1), 年均降水 $1400 \sim 1800 \text{ mm}$, 4~9 月的降雨量占全年 75%. 九龙江由北溪与西溪两大支流汇成, 由西北向东南流经农业集约化水平较高的龙岩山区 (生猪养殖为主, 2004 年生猪存栏 300 万头) 和漳州平原 (蔬菜水果种植为主) 在厦门入海. 北溪与西溪多年平均径流量分别为 $8.22 \times 10^9 \text{ m}^3$ 、 $3.68 \times 10^9 \text{ m}^3$. 流域内林地占 66%, 农业用地占 18%, 城

镇用地占 0.3%. 土壤类型分布有红壤 (62%)、赤红壤 (16%)、黄壤 (8%) 和水稻土 (9%), 具有“粘、酸、瘦”的特点. 流域主要涉及 9 个县市区, 共有人口 329.7 万人 (2004 年末). 1999 年起建立的非点源污染研究区 (曹文志等, 2002b)——五川小流域位于九龙江西溪中上游, 集水面积为 1.88 km^2 ; 流域内无工业, 属于典型农业耕作区, 除林地外, 主要分布有坡地果园 (40.2%) 和谷地 (7.5%), 种植香蕉、甘蔗、荔枝、蔬菜、瓜果等经济类作物为主; 耕作土壤主要是潜育性水稻土中的灰沙泥田, 有机质含量在 1%~2% 左右, $\text{pH} = 4.0 \sim 4.8$. 土壤质地主要是沙质土、壤质沙土或沙质壤土, 易漏水漏肥, 土壤肥力较低.

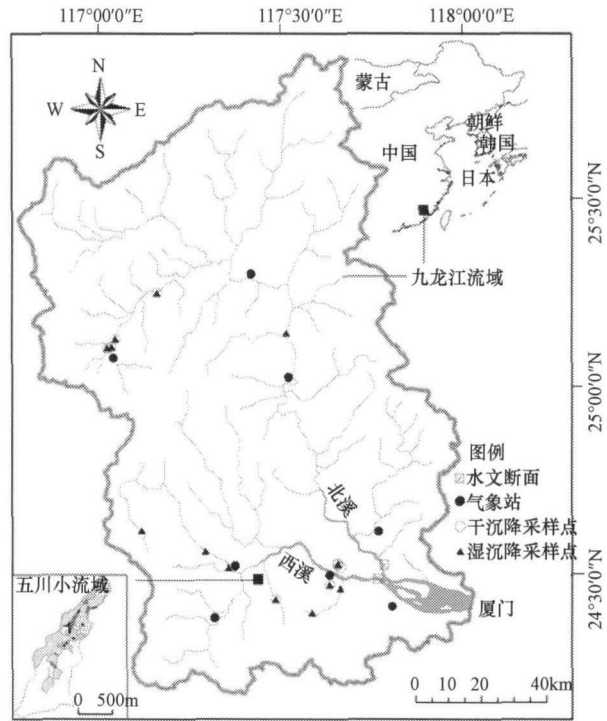


图 1 九龙江流域位置与采样点分布图
Fig 1 Location of Jialong River watershed and the sampling sites for atmospheric nitrogen

2.2 实验设计与方法

2.2.1 样点布置与采样 监测大气沉降、地表径流、淋失、反硝化与氨挥发等氮循环关键过程. 在九

龙江流域及河口地区布置大气氮沉降观测站点(图1),其中干沉降10个,湿沉降17个.干沉降样品借鉴 Baletfin 等(2000)的方法收集,湿沉降采样参照《大气降水采样和分析方法总则(GB13580 1-92)》的规定进行,详见文献(陈能汪等,2006 2008).在五川小流域出口进行地表径流定位监测,包括每月1次的基流(7日内无明显降雨)采样和16场次降雨全过程采样,同步测定水质水量.在五川小流域典型地块(包括香蕉地、蔬菜地、甘蔗地、水稻田、休耕地、坡地果园等),安装PVC渗漏试验装置,每月1次监测分析地下水(渗漏水)水质.在典型地块上,采用 Ryden 等(1987)建立的乙炔抑制-静态土柱培养法于不同季节测定反硝化速率,并利用原位通气法(王朝辉等,2002)测定氨挥发通量.以上监测与试验时间为2002年、2004~2005年.分析项目包括总氮(TN)、溶解态总氮(DTN)、铵氮(NH₄-N)和硝氮(NO₃-N).总氮采用过硫酸钾氧化-紫外分光光度法(国家环保总局编制的第4版《水和废水监测分析方法》),铵氮采用纳氏比色法(GB13580 11-92),硝氮采用紫外分光光度法(GB13580 892).无机氮(DN)为铵氮与硝氮之和,溶解有机氮(DON)为DTN与DN之差.文中涉及氮的数值均以N计.

2.2.2 氮收支计算 采用2004年数据分别对九龙江流域与五川小流域进行氮收支评价,项目包括大气沉降、化肥施用、生物固定和饲料(主要是生猪养殖)等4项输入,地表径流、淋失、氨挥发、反硝化、产品(销售流域外)等5项输出,以流域水文边界和作物根际区为评价系统边界.在九龙江流域这个尺度上,假设氮通过地下水补给最终返回河流,不考虑淋失输出.流域以农业污染为主,城镇工业废水量少且大多经处理达标排放,在此不作为氮的输入源考虑.不涉及跨流域引水调水和水利设施建设对

氮收支计算的影响.各项源汇定量方法如下:根据流域内各站点干沉降量、雨水氮浓度和各气象站点逐月降水量,基于GIS采用反距离平方方法和泛克里金法(经验证)分别对氮与降水插值,进而计算得到流域氮沉降通量.五川小流域年基流负荷采用各月实测水质水量相乘加总得到,降雨径流输出负荷采用经实测数据校验过的AGNPS模型(Chen *et al.*, 2006),利用2004年大雨(日雨量≥25mm)气象数据进行模拟估算.九龙江氮的河流输送通量,根据福建省水利厅提供的北溪、西溪水文断面的逐月平均流量和环境监测中心站提供的省控断面水质资料,采用 Webb 等(1997)建立的适用于非点源为主的河流污染物通量估算方法进行计算.对于五川小流域氮淋失负荷,首先采用校验后的GLEAMS模型(王吉苹等,2007),模拟各典型地块的硝氮淋失量,再根据实测硝氮与总氮浓度比例推算总氮淋失量,最后基于GIS和流域土地利用图进行流域通量估算.反硝化与氨挥发通量主要采用系数法进行估算.结合本研究实测结果与国内外研究报道,确定主要土地利用的反硝化排放系数(表1),根据土地利用面积资料,估算2个流域的反硝化通量.氨挥发估算范围包括:①化肥施用,按氮肥与复合肥施用量的25%和18%计(实测平均);②畜禽养殖,采用单个动物氨排放因子(以N计),其中猪38kg a⁻¹、牛241kg a⁻¹、羊31kg a⁻¹、禽0.24kg a⁻¹(孙庆瑞等,1997);③粪肥施用,按调查的各土地利用的平均施粪量和实测猪粪含氮量(0.62%)的30%计(Chastain *et al.*, 1999);④人排放,人均年排放氨为1.3kg(Moller *et al.*, 1989).化肥施用量根据各县折纯氮的统计资料计算.饲料输入量根据各乡镇生猪出栏数、平均饲料用量及含氮量计算.生物固定根据各类固氮系数和面积估算.有关系数列于表1.

表 1 氮收支计算相关系数
Table 1 Coefficients for estimation of the nitrogen budget

项目	类别	含 N 量 (以年计)	计算说明	参考文献
生物固氮	花生	86kg hm ⁻²	按种植面积计	Barry等(1993)
	大豆	78kg hm ⁻²	按种植面积计	Barry等(1993)
	水田	45kg hm ⁻²	按耕地面积计	Zhu(1997)
	旱地	15kg hm ⁻²	按耕地面积计	Zhu(1997)
饲料输入	生猪	29g kg ⁻¹	按常用饲料用量计	曾悦等(2005)
产品输出	猪肉	2.5%	按猪肉重量计	Fortin等(1985)
	香蕉	0.224%	按果实重量计	陈阜(2002)
	柚子	0.128%	按果实重量计	陈阜(2002)
	荔枝	0.144%	按果实重量计	陈阜(2002)

续表 1				
项目	类别	含 N 量 (以年计)	计算说明	参考文献
反硝化	蔬菜	0.288%	按可食重量计	陈阜 (2002)
	甘蔗	0.10%	按果实重量计	曹文志等 (2000)
	水稻	31.038kg hm ⁻²	按种植面积计	黄银晓等 (1995)
	花生	153.56kg hm ⁻²	按种植面积计	黄银晓等 (1995)
	大豆	89.264kg hm ⁻²	按种植面积计	黄银晓等 (1995)
	香蕉	17.3kg hm ⁻²	按种植面积计	实测平均
	蔬菜	41.0kg hm ⁻²	按种植面积计	实测平均
	休耕地	16.1kg hm ⁻²	按面积计	实测平均
	水田	29.3kg hm ⁻²	按面积计	Xu等 (1997); Xing(1998)
	林地	2.0kg hm ⁻²	按面积计	Bunmmee等 (1999); Henrich等 (1997)
	水体	10kg hm ⁻²	按面积计	Sjodin等 (1997)

3 结果 (Results)

3.1 大气氮沉降

九龙江流域 10 个干沉降站点 DTN 年沉降通量为 3.41~7.63kg hm⁻², 平均为 (4.87±1.21) kg hm⁻², 其中铵氮、硝氮与 DON 分别占 31%、24% 和 45%. 17 个湿沉降站点雨水总氮平均浓度为 (2.20±1.69)mg L⁻¹~(3.26±1.37)mg L⁻¹, 其

中铵氮、硝氮和 DON 分别占 39%、25% 和 36%; 表 2 汇总数据显示, 经 GIS 插值后得到的各县区湿沉降通量为 8.5~11.2 kg hm⁻², 平均为 9.9kg hm⁻². 氮沉降总量存在地区差异, 流域平均为 14.9kg hm⁻², 其中干沉降约占 34%, 湿沉降约占 66%, 形成 1:2 的干湿沉降结构. 按春夏秋冬分组统计, 约 80% 的氮沉降发生在春夏两季 (3~8 月).

表 2 九龙江流域大气氮沉降通量汇总 (2004 年)
Table 2 Summary of total deposition flux of atmospheric nitrogen in the Jiu long River Watershed (2004)

市县 (区)	湿沉降 / (kg hm ⁻²)	干沉降 / (kg hm ⁻²)	沉降总量 / (kg hm ⁻²)	湿沉降比例	干沉降比例
龙岩市区	10.5	4.1	14.6	71.9%	28.1%
龙岩漳平	9.4	4.5	13.8	67.8%	32.2%
漳州市区	9.6	5.6	15.3	63.0%	37.0%
漳州长泰	8.5	5.5	14.0	60.5%	39.5%
漳州华安	9.8	5.0	14.9	66.2%	33.8%
漳州南靖	11.2	5.0	16.1	69.3%	30.7%
漳州平和	10.9	5.2	16.1	67.5%	32.5%
漳州龙海	10.3	5.7	16.0	64.6%	35.4%
泉州安溪	8.9	5.0	13.9	63.8%	36.2%
其它区域	9.8	4.8	14.5	67.3%	32.7%
全流域	9.9±0.9	5.0±0.5	14.9±0.9	66.2%±3.3%	33.8%±3.3%

3.2 氮素地表径流

3.2.1 九龙江河流输送 九龙江 2004 年向厦门海域输送无机氮 16990t, 其中硝氮和铵氮分别占 70.5% 和 27.5%, 亚硝氮仅占 2%. 年输送通量分别

为北溪 9.6kg hm⁻²、西溪 13.5kg hm⁻², 流域平均 11.5kg hm⁻², 其中 90% 发生在流量占全年 89% 的春夏秋季 (3~11 月) (表 3). 流域平均总氮输出负荷为 17.8 kg hm⁻².

表 3 九龙江河流输送负荷季节性对比 (2004 年)
Table 3 Comparison of nitrogen riverine export in the Jiulong River by season (2004)

流域	季节 ¹⁾	流量 /mm	负荷 /(kg hm ⁻²)				占全年百分比				
			NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	D N	流量 /mm	NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	D N
北溪	春	196.4	0.60	0.05	1.92	2.56	26%	27%	25%	26%	27%
	夏	320.5	1.08	0.08	3.12	4.28	42%	49%	42%	43%	44%
	秋	154.0	0.32	0.04	1.56	1.91	20%	14%	23%	24%	20%
	冬	83.6	0.22	0.02	0.65	0.88	11%	10%	9%	9%	9%
	全年	754.6	2.21	0.18	7.24	9.63	100%	100%	100%	100%	100%
西溪	春	160.7	0.83	0.05	1.27	2.15	18%	17%	16%	15%	16%
	夏	389.9	2.23	0.16	3.83	6.21	43%	47%	50%	46%	46%
	秋	241.4	1.22	0.07	2.60	3.90	27%	26%	23%	34%	29%
	冬	108.9	0.49	0.03	0.68	1.21	12%	10%	14%	8%	9%
	全年	900.9	4.77	0.31	8.39	13.47	100%	100%	100%	100%	100%

注: 1) 春 (3 ~ 5 月) 、夏 (6 ~ 8 月) 、秋 (9 ~ 11 月) 、冬 (12 ~ 2 月)

3.2.2 小流域地表径流 在小尺度的五川小流域,不同次降雨过程氮的输出量差异较大 (表 4)。溶解态氮是降雨径流氮输出的主要形态, 16 场次降雨径流中 DTN /TN 大多在 60% 以上, 平均 76%; D N 占 TN 的 47% ~ 92%, 平均 70%; D N 中以硝氮为主 (平均 60%)。基于 AGNPS 模型和 2004 年气象资料进行模拟, 降雨径流 TN 输出总负荷为 50.1 kg·hm⁻², 其中 DTN 占 83%, D N 占 68%。基流 TN 输出负荷为 17.1 kg·hm⁻², 其中 DTN 占 72%, D N 占 79%, D N 中硝氮与铵氮各占 1/2。对比各月份数据发现, 降雨径流对氮输出的贡献通常在 70% 以上, 基流输出所占比重较小, 但存在季节性差异。5~

9 月降雨径流的贡献率高达 80% 以上, 而 3~4 月春雨期间累计降雨径流量大 (占年径流量的 45%), 但因雨强较小, 降雨径流输出的氮仅占 30% 左右。汇总基流与降雨径流 2 组数据, 逐月地表径流 TN 输出负荷范围为 0.08~19.03 kg·hm⁻², 相差数百倍。径流输出负荷在 4~9 月较高, 秋末至冬季 (10~2 月) 和 6 月较小, 峰值出现在 5 月和 8 月, 总体上形成“双峰”型输出模式。2004 年地表径流输出 TN 为 67.1 kg·hm⁻², 其中春夏秋冬季分别占 43%、42%、14% 和 1%, 形成这种季节性模式是因为春夏 (3~8 月) 处于作物生长季节, 肥料氮输入量大, 降雨也比较集中。

表 4 五川小流域 16 场次降雨径流过程氮的输出
Table 4 Stormflow nitrogen export during 16 rainfall events in the Wuchuan subwatershed

降雨日期	降雨量 /mm	历时 /h	流量 /mm	TN /kg	DTN /kg	NH ₄ -N /kg	NO ₃ -N /kg	DTN /TN	D N /TN
2002-03-24	28.7	18	0.2	8	5	-	-	63%	-
2002-04-10	17.7	20	0.2	4	3	-	-	62%	-
2002-06-11	39.0	18	1.1	19	10	-	-	53%	-
2002-07-18	49.3	14	13.0	289	274	-	-	95%	-
2002-08-03	355.3	109	182.7	3470	2330	-	-	67%	-
2002-09-14	145.2	97	44.0	848	711	-	-	84%	-
2004-03-01	38.9	17	3.2	68	63	21	41	94%	92%
2004-04-03	15.1	5	1.6	23	13	7	5	57%	54%
2004-04-07	36.1	12	5.0	49	-	15	19	-	69%
2004-04-17	35.6	9	5.7	386	-	135	135	-	70%
2004-05-08	35.1	10	6.1	300	252	108	120	84%	76%
2004-05-19	58.2	19	15.3	1035	947	252	602	92%	83%
2004-05-31	101.2	10	52.9	2117	-	337	657	-	47%
2004-07-04	20.7	9	4.4	30	-	5	16	-	69%
2004-07-07	31.3	10	12.7	575	-	194	239	-	75%
2005-05-09	34.8	8	8.0	531	467	175	171	88%	65%

3 3 氮素淋失

GLEAMS模拟的不同典型土地利用地块的氮淋失负荷从 11.07~65.17kg·hm⁻²不等,这一结果与Cao等(2006)采用另一方法估算的结果(8.1~52.7kg·hm⁻²)相近.2004年五川小流域TN平均淋失负荷为27.5kg·hm⁻²,占总输入(309.4kg·hm⁻²)的9%.若只计农业用地(包括香蕉地、蔬菜地、甘蔗地、坡地果园和水稻田,总面积90.8hm²),则总氮淋失负荷为45.3kg·hm⁻²,占肥料氮输入(285.9kg·hm⁻²)的16%.不同地块地下水DTN浓度范围在1.50~4.8mg·L⁻¹,以铵氮为主(约占40%),硝氮约占20%.

3 4 反硝化与氨挥发

五川小流域反硝化通量为10.6kg·hm⁻²,若只计农业用地,则反硝化通量为17.9kg·hm⁻².氨挥发通量为42.1kg·hm⁻²,占肥料氮输入的21%.九龙江

流域反硝化通量为7.7kg·hm⁻²,氨挥发通量为42.1kg·hm⁻²,其中化肥施用、畜禽养殖、粪肥施用及人排放分别贡献50.2%、38.5%、4.4%和6.9%.氮素输入后通过气态损失(氨挥发与反硝化之和)比例很高,其中五川小流域为43.3%,九龙江流域为39.7%.

3 5 流域氮收支状况

2个尺度流域的氮收支汇总于表5.九龙江流域氮输入通量为125.6kg·hm⁻²,输出通量为72.9kg·hm⁻²,占输入58.0%;五川小流域氮输入通量为309.4kg·hm⁻²,输出通量为237.2kg·hm⁻²,占输入76.7%.两个尺度流域有相似的源汇结构,化肥与饲料是氮的主要输入来源(二者占总输入90%左右),而地表径流(河流输送)与氨挥发构成主要输出途径(二者占总输出80%左右).

Table 5 Nitrogen budgets for the Jialong River Watershed and the Wuchuan subwatershed (2004)							
项目	子项目	九龙江流域 (1 47 104km ²)			五川小流域 (1.88km ²)		
		总量 /t	通量 /(kg·hm ⁻²)	比例	总量 /t	通量 /(kg·hm ⁻²)	比例
输入 (I)	• 化肥	127460	86.7	69.0%	53744 ¹⁾	285.9	92.4%
	• 饲料	31296	21.3	17.0%	-	-	-
	• 生物固定	3961	2.7	2.1%	1396	7.4	2.4%
	• 大气沉降	21903	14.9	11.9%	3031	16.1	5.2%
	合计	184620	125.6	100%	58170	309.4	100%
输出 (O)	• 产品输出	7831	6.5	7.3%	1626	8.6	3.6%
	• 地表径流	26138	17.8	24.4%	12615	67.1	28.3%
	• 淋失	-	-	-	5164	27.5	11.6%
	• 反硝化	11258	7.7	10.5%	1987	10.6	4.5%
	• 氨挥发	61937	42.1	57.8%	23192	123.4	52.0%
	合计	107164	72.9	100%	44585	237.2	100%
贮存氮 (IO)		77456	52.7		13585	72.3	

注: 1)包括粪肥
2) 九龙江全流域的氮收支数据参照文献 (Chen *et al.*, 2008)

4 讨论 (Discussion)

4 1 氮素源汇时空模式与机理

氮的大气沉降、地表径流与淋失等输入输出过程呈现高度的时空分异特征.九龙江流域大气氮沉降主要集中在龙岩市区、漳州市区、平和、南靖和龙海等地(表2).氨挥发进入大气后一般在较短时间内溶于雨水形成湿沉降(Aneja *et al.*, 2001).本研究中氮沉降以铵态氮为主(平均39%以上),主要因为该地区化肥施用水平高且畜禽养殖密度大.沉降

负荷集中在春夏两季(占全年的80%),主要与春夏两季平均气温高氨挥发强烈有关.

氮的地表径流输出是气象水文、地形地貌与农业耕作等综合作用的结果,其中降雨是关键驱动力(Machito, 2001),而物质输入和迁移过程直接影响养分的流失负荷(Shapley *et al.*, 1995).流域内农业、城市等人类开发用地比例越大,河流氮浓度越高(Boyer *et al.*, 2002; Fibso *et al.*, 2003).农业流域的氮素径流输出负荷远远高于林地流域(Vuoremaa *et al.*, 2002).利用本研究中16场次降

雨径流数据进行统计分析发现, TN、DTN 输出量与径流量之间的 Pearson 相关系数分别为 0.937($p=0.000$)、0.949($p=0.000$). 此外, 九龙江氮的河流输送通量也与径流量显著正相关($p<0.001$). 陈能汪(2006) 2003 年对九龙江流域内 5 个典型小流域的监测研究表明, 平均次降雨径流 TN 输出负荷与农业用地比例正相关($P<0.05$). 由此说明, 该地区氮的径流流失以及向近海的河流输送过程存在人为氮输入与水文条件(降雨径流)的双重驱动机制.

氮素淋失与土壤、施肥和耕作密切相关(Andraskiet al., 2000; Sogbedji et al., 2000). 五川小流域的氮素淋失过程同样呈现时空变化特征, 种植香蕉或蔬菜等经济类作物的地块施肥量较大(据现场调查年施肥量 $>1000\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$), 地下水氮浓度相应较高(如 2004 年测得某香蕉地 DTN 浓度高达 $(4.36\pm1.54)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 某蔬菜地 DTN 浓度高达 $(4.81\pm4.61)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 而某稻田 DTN 浓度为 $(1.50\pm0.65)\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$). 硝氮与铵氮浓度在春季(3~5 月, 为作物播种与生长期)达到峰值, 主要与该时期施肥强度较大有关. 多数研究表明, 硝氮是主要淋失形态(Jemison and Fox, 1994). 本研究中氮素淋失却以铵态氮为主(约占 40%), 这是因为南方酸性土壤带可变电荷, 在 $\text{pH}<5$ 时晶层一面的 OH 原子团全部离解, 土壤胶体带正电荷(李学垣, 2003), 致使带正电荷的铵态氮更易向下淋洗造成“富集”; 此外, 五川小流域地下水位较高($<1\text{ m}$)及底层粘壤土形成的还原环境有利于反硝化作用, 造成硝态氮在向下淋洗过程中“气态损失”.

4.2 氮收支与氮循环关键过程

对比尺度不同的九龙江流域与五川小流域, 尽管其源汇结构类似(化肥和饲料是主要氮“源”, 地表径流与氮挥发是主要氮“汇”), 但图 2 显示了氮循环过程及氮收支的差异. 五川小流域农业用地比

例较高, 化肥在氮输入结构中的比重较大, 地表径流输出通量也相应较高. 在大尺度的九龙江流域, 氮素从上游到下游及河口迁移过程中存在沉积、降解、植物吸收、氮挥发和反硝化等一系列复杂的生物地球化学作用, 明显减少了径流输出(河流输送)(图 2). 尽管如此, 氮输入中依然有 14.5% 通过九龙江向厦门海域输送. 对比国内外典型流域氮收支结构(表 6), 我国流域的氮肥输入比例总体上高于美国东北地区流域, 这与我国氮素养分利用率长期处于较低水平有关(Zhu, 1997). 氮素输入后转化为产品的比例较低, 大部分氮素(50% 以上)通过氮挥发、反硝化和地表径流等形式进入大气或水环境(表 6). 与巢湖地区六叉河流域相比, 五川小流域的氮肥输入比例较高, 这与后者种植经济作物为主有关; 受沙性土壤影响, 氮的淋失负荷也较大. 六叉河流域氮的径流输出比例较低, 应归功于流域内多水塘系统对径流和营养盐的截留削减机制(Yan et al., 1998).

尽管全球范围流域氮循环模式各异, 氮收支定量方法不同, 影响了数据可比性, 但已有研究结果足以证明, 化肥施用、畜禽养殖等人类活动已彻底改变氮的生物地球化学过程. 以河流输送为例, 本研究中 2004 年九龙江向厦门海域输送无机氮 16990t, 而这个数字在 20 世纪 90 年代是 6000t(Chen et al., 1993)和 12600t(Zhang 1996), 这种变化在很大程度上印证了厦门海域近年来赤潮频发的现象. 同时, 大量的贮存氮(表 5)具有潜在的非点源污染风险, 在今后很长一段时期将构成对流域和海岸带地区的生态胁迫. 因此, 减少春夏时期肥料氮的输入(养分管理), 并有效截留台风雨季的降雨径流(水文控制), 提高氮素利用率, 促进养分在流域内循环, 有效控制氮素向近海输送, 是该流域与海岸带管理应采取的技术策略.

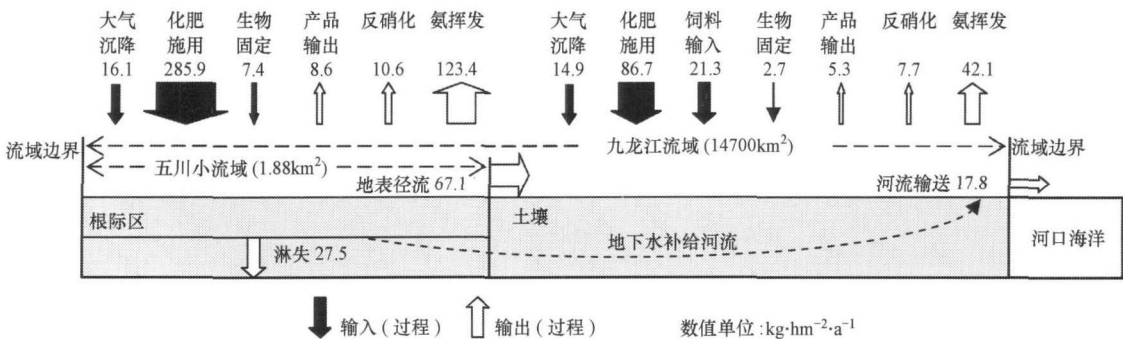


图 2 九龙江流域与五川小流域的氮循环过程

表 6 不同流域氮收支结构对比¹⁾
Table 6 Comparison of the nitrogen budget in various watersheds

流域	面积 / km ²	占总输入比例						占总输出比例					参考文献
		化肥	粪肥	饲料 食物	生物 固定	大气 沉降	化石 燃烧	产品	地表 径流	地下 淋失	反 硝化	氨 挥发	
九龙江流域	1.47×10 ⁴	69.0%		17.0%	2.1%	11.9%		7.3%	24.4%		10.5%	57.8%	Chen <i>et al.</i> , 2008
五川小流域	1.88	89.9%	2.5%		2.4%	5.2%		3.6%	28.3%	11.6%	4.5%	52.0%	本研究
六叉河流域	7.32	88.8%			10.8%	0.4%		38.4%	0.03%	0.12%	44.1%	17.4%	Yan <i>et al.</i> , 1999
长江流域	181×10 ⁴	38.4%	28.0%		6.8%	19.7%	4.8%	25.6%	22.3%		17.3%	13.6%	Xing and Zhu, 2002
黄河流域	75×10 ⁴	38.4%	31.5%		6.3%	13.9%	6.1%	27.0%	21.6%		15.1%	11.7%	Xing and Zhu, 2002
珠江流域	45×10 ⁴	31.3%	28.9%		5.5%	27.4%	3.4%	25.2%	19.8%		14.7%	13.2%	Xing and Zhu, 2002
美国流域 ²⁾	32666	15%		24%	28%	33%		20%	20%		48%	3%	Van Breemen <i>et al.</i> , 2002

注: 1) 各流域计算的氮输入输出项目与本研究有所差异, 表中为原文数值。2) 指美国东北部 16 个主要近海流域, 表中数值为流域面积加权平均值。

全球变化背景条件下, 近海流域氮循环和生物地球化学过程受自然因素与人为干扰的藕合作用而变得异常复杂 (Howarth *et al.*, 1996; Biggs *et al.*, 2004). 人们对氮素来源与去向的了解仍然十分有限, 如何在多时空尺度上把握氮素输入输出的变化规律、发展趋势及其驱动机制, 是氮素污染控制领域的关键科学问题. 我国位于地球环境变化速率最大的季风区, 其环境具有空间上的复杂性、时间上的易变性. 笔者认为, 今后我国应在全球变化研究背景下, 将流域-河口-近海作为系统整体, 基于长期监测和模拟, 重点关注氮循环中大气沉降、河流输送、气态损失、内循环和贮存等关键过程, 量化研究人类活动与自然过程的藕合驱动机制, 模拟预测营养盐向近海输送的环境生态效应, 为流域和海岸带可持续发展及管理提供科学基础和科技支撑.

5 结论 (Conclusions)

(1) 九龙江流域氮“源”以化肥与饲料输入为主 (占总输入 125.6 kg·hm⁻² 的 86%), 氮“汇”以氮挥发和河流输送为主 (占总输出 72.9 kg·hm⁻² 的 82%). 氮输入后 50% 以上进入大气和水环境, 14.5% 通过河流输送至河口与近海, 对流域与海岸带地区构成生态胁迫.

(2) 大气氮沉降通量为 14.9 kg·hm⁻², 其中干沉降占 34%, 湿沉降占 66%, 形成 1:2 的干湿沉降结构; 源于化肥施用与畜禽养殖引起的强烈氮挥发, 氮沉降集中在春夏两季 (占全年 80%), 且以铵态氮为主 (39% 以上). 氮的径流输出及河流输送受人为氮输入与水文条件的双重控制, 2004 年九龙江向厦门海域输送无机氮 11.5 kg·hm⁻², 其中 90% 发生在春夏秋季 (同期流量占全年 89%); 五川小流域总氮

径流输出负荷为 67.1 kg·hm⁻², 其中 85% 发生在施肥量大、降雨集中的春夏两季 (作物生长期), 基流与降雨径流分别贡献 25% 和 75%. 总氮淋失负荷为 27.5 kg·hm⁻², 占总输入的 9%; pH < 5 的酸性土壤带正电荷导致氮淋失以铵态氮为主 (约占 40%). 九龙江流域反硝化通量为 7.7 kg·hm⁻², 而氮挥发高达 42.1 kg·hm⁻², 主要来自化肥施用与畜禽养殖 (分别贡献 50% 和 39%).

(3) 减少春夏时期肥料氮的输入 (养分管理), 并有效截留台风雨季的降雨径流 (水文控制), 提高氮素利用率, 促进养分在流域内循环, 有效控制氮素向近海输送, 是该流域与海岸带管理应采取的技术策略.

致谢 (Acknowledgements): 龙岩市环境监测站、漳州市环境监测站以及研究区村民在监测方面给予大力支持, 福建省各级政府有关部门提供图件和资料, 研究生杨德敏、曾悦、陈惟财、刘建昌、黄云凤、徐玉裕、李大朋、黄一山、王吉革等人帮助采样与实验分析, 李焕承帮助文字校对, 在此一并致谢.

责任作者简介: 洪华生 (1944—), 女, 教授, 博导. 主要从事海洋生物地球化学过程和机理研究.

参考文献 (References):

Alexander R B, Smith R A, Schwarz G E, *et al.* 2008 Differences in phosphorus and nitrogen delivery to the Gulf of Mexico from the Mississippi river basin [J]. *Environmental Science & Technology*, 42: 822-830

Andraski T W, Bundy L G, Brye K R. 2000 Crop management and com nitrogen rate effects on nitrate leaching [J]. *Journal of Environmental Quality*, 29: 1095-1103

Aneja V P, Roelle P A, Mumay G C, *et al.* 2001 Atmospheric nitrogen compounds II: emissions, transport, transformation, deposition and assessment [J]. *Atmospheric Environment*, 35(11): 1903-1911

- Barny D A J, Goorahoo D, Goss M J. 1993. Estimation of nitrate concentrations in groundwater using a whole farm nitrogen budget [J]. *Journal of Environmental Quality*, 22(4): 767-775
- Biggs TW, Dunne T, Martinelli L A. 2004. Natural controls and human impacts on stream nutrient concentrations in a deforested region of the Brazilian Amazon basin [J]. *Biogeochemistry*, 68: 227-257
- Boyer EW, Goodale C L, Javorski N A, *et al*. 2002. Anthropogenic nitrogen sources and relationships to riverine nitrogen export in the northeastern U. S. A. [J]. *Biogeochemistry*, 57: 137-169
- Van Breemen N, Boyer EW, Goodale C L, *et al*. 2002. Where did all the nitrogen go? Fate of nitrogen inputs to large watersheds in the northeastern U. S. A. [J]. *Biogeochemistry*, 58(7): 267-293
- Balestrini R, Galli L, Tartari G. 2000. Wet and dry atmospheric deposition at prealpine and alpine sites in northern Italy [J]. *Atmospheric Environment*, 34(9): 1455-1470
- Brunme R, Borken W, Finkbe S. 1999. Hierarchical control on nitrous oxide emission in forest ecosystems [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 13(4): 1137-1148
- 曹文志, 朱鹤健. 2002a. 福建农业生态系统的特性与调控 [M]. 北京: 中国农业出版社, 78
- Cao W Z, Zhu H J. 2000a. Characteristics and control of regional agricultural ecosystems in Fujian province [M]. Beijing: China Agriculture Press, 78 (in Chinese)
- 曹文志, 洪华生, 张玉珍, 等. 2002b. AGNPS在我国东南亚热带地区的检验 [J]. *环境科学学报*, 22(4): 537-540
- Cao W Z, Hong H S, Zhang Y Z, *et al*. 2002. Testing AGNPS for water quality modeling in agricultural catchment in southeast of China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 22(4): 537-540 (in Chinese)
- Cao W Z, Hong H S, Zhang Y Z, *et al*. 2006. Anthropogenic nitrogen sources and export at a village-scale catchment in southeast China [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 28(1-2): 45-51
- Chastain J P, Camberato J J, Albrecht J E, *et al*. 1999. Swine manure production and nutrient content [A]. South Carolina Confined Animal Manure Managers Certification Program [C]. Clemson University, SC, USA, 127
- 陈阜. 2002. 农业生态学 [M]. 北京: 中国农业大学出版社, 56
- Chen F. 2002. Agricultural ecology [M]. Beijing: Press of China Agricultural University, 56 (in Chinese)
- 陈能汪. 2006. 九龙江流域氮的源汇过程及机制 [D]. 厦门: 厦门大学, 95
- Chen N W. 2006. N sources and exports in Jiu long River Watershed [D]. Xiamen: Xiamen University, 95
- Chen N W, Hong H S, Cao W Z, *et al*. 2006. Assessment of management practices in a small agricultural watershed in southeast China [J]. *Journal of Environmental Science & Health (Part A)*, 41(7): 1257-1269
- 陈能汪, 洪华生, 张珞平, 等. 2006. 九龙江流域大气氮干沉降 [J]. *生态学报*, 26(8): 2602-2607
- Chen N W, Hong H S, Zhang L P, *et al*. 2006. Dry deposition of atmospheric nitrogen to Jiu long River Watershed in southeast China [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 26(8): 2602-2607 (in Chinese)
- 陈能汪, 洪华生, 张珞平. 2008. 九龙江流域大气气湿沉降研究 [J]. *环境科学*, 29(1): 38-46
- Chen N W, Hong H S, Zhang L P, *et al*. 2008. Wet deposition of atmospheric nitrogen in Jiu long River Watershed [J]. *Environmental Science*, 29(1): 38-46 (in Chinese)
- Chen N W, Hong H S, Zhang L P, *et al*. 2008. Nitrogen sources and exports in an agricultural watershed in Southeast China [J]. *Biogeochemistry*, 87(2): 169-179
- Chen S T, Zheng R Z, Zhang F, *et al*. 1993. The distribution and transform of DN in the Jiu long River estuary and western Sea [J]. *Trans Oceanol Limnol*, 4: 28-35
- Filoso S, Martinelli L A, Williams M R, *et al*. 2003. Land use and nitrogen export in the Piracicaba River basin, Southeast Brazil [J]. *Biogeochemistry*, 65(3): 275-294
- Fortin A, Elliot J I. 1985. Relationships between back fat thickness and chemical composition of the body and components of swine [J]. *Journal of Animal Science*, 61: 158-164
- Galloway J N, Dentener F J, Capone D G, *et al*. 2004. Nitrogen cycles past, present, and future [J]. *Biogeochemistry*, 70(2): 153-226
- Henrich M, Hasek and ter K. 1997. Denitrification and gaseous nitrogen losses from an acid spruce forest soil [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 29(9-10): 1529-1537
- Henriksen A, Hessen D O. 1997. Whole catchment studies on nitrogen cycling: nitrogen from mountains to fjords [J]. *Ambio*, 26(5): 254-257
- Howarth R W, Billen G, Swaney D, *et al*. 1996. Regional nitrogen budgets and riverine N & P fluxes for the drainages to the North Atlantic Ocean: natural and human influences [J]. *Biogeochemistry*, 35: 75-139
- 黄银晓, 林舜华, 蒋高明, 等. 1995. 海河流域作物-土壤系统中作物氮的输出 [J]. *生态学报*, 15(4): 427-432
- Huang Y X, Lin S H, Jiang G M, *et al*. 1995. A study on N output in crop-soil system in Haihe basin [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 15(4): 427-432 (in Chinese)
- Jenison J M, Fox R G. 1994. Nitrate leaching from nitrogen-fertilized and manured corn measured with zero-tension pan lysimeters [J]. *Journal of Environmental Quality*, 23: 337-343
- 李学垣. 2003. 土壤化学 [M]. 北京: 高等教育出版社, 158
- Li X Y. 2003. Soil Chemistry [M]. Beijing: Higher Education Press, 158
- Machito M. 2001. Nitrogen and phosphorus losses due to soil erosion during a typhoon [J]. *Journal of Agricultural Engineering Research*, 78(2): 209-216
- Moller D, Schiefeldecker H. 1989. Ammonia emission and deposition of NH_3 in the G. D. R. [J]. *Atmospheric Environment*, 23(6): 1187-1193
- Ryden J C, Skinner J H, Nixon D J. 1987. Soil core incubation system for the field measurement of denitrification using acetylene inhibition [J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 19: 753-757
- Sharpley A N, Hedley M J, Sibbesen E, *et al*. 1995. Phosphorus transfers from terrestrial to aquatic ecosystems. In: Tieszen H (Ed), *Phosphorus and the Global Environment* [M]. Chichester: John Wiley and Sons (UK), 171-199

- Spdin A L, Lewis W M, Saunders J F. 1997. Denitrification as a component of the nitrogen budget for a large plains river [J]. *Biogeochemistry*, 39(3): 327-342
- Sogbedji JM, van Es HM, Yang C L, *et al*. 2000. Nitrate leaching and nitrogen budget as affected by maize nitrogen rate and soil type[J]. *Journal of Environmental Quality*, 29(6): 1813-1820
- 孙庆瑞, 王美容. 1997. 我国氮的排放量和时空分布 [J]. *大气科学*, 21(5): 590-598
- Sun Q R, Wang M R. 1997. Ammonia emission and concentration in the atmosphere over China [J]. *Scientia Atmospherica Sinica*, 21(5): 590-598 (in Chinese)
- Vitousek P M, Aber J D, Howarth R W, *et al*. 1997. Human alteration of the global nitrogen cycle: sources and consequences [J]. *Ecological Applications*, 7(3): 737-750
- Vuorimaa J, Rekolainen S, Lepistö A, *et al*. 2002. Losses of nitrogen and phosphorus from agricultural and forest areas in Finland during the 1980s and 1990s [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 76(2): 213-248
- 王吉苹, 曹文志, 李大朋, 等. 2007. GLEAM S模型在我国东南地区模拟硝氮淋失的检验 [J]. *水土保持通报*, 27(2): 61-66
- Wang J P, Cao W Z, Li D P, *et al*. 2007. Testing GLEAMS for nitrate leaching modeling in an agricultural catchment of southeast China [J]. *Bulletin of Soil and Water Conservation*, 27(2): 61-66 (in Chinese)
- 王朝辉, 刘学军, 巨晓棠, 等. 2002. 田间土壤氮挥发的原位测定——通气法 [J]. *植物营养与肥料学报*, 8(2): 205-209
- Wang Z H, Liu X J, Ju X T, *et al*. 2002. Field *in situ* determination of ammonia volatilization from soil venting method [J]. *Plant Nutrition and Fertilizer Science*, 8(2): 205-209 (in Chinese)
- Webb B W, Phillips J M, Walling D E, *et al*. 1997. Load estimation methodologies for British rivers and their relevance to the LOIS RACS (R) programme [J]. *Science of the Total Environment*, 194: 379-389
- Xing G X, Zhu Z L. 2002. Regional nitrogen budgets for China and its major watersheds [J]. *Biogeochemistry*, 57(1): 405-427
- Xing G X. 1998. N₂O emission from cropland in China [J]. *Nutr Cycl Agroecosyst*, 52(2-3): 249-254
- Xu H, Xing G X, Cai Z C, *et al*. 1997. Nitrous oxide emissions from three rice paddy fields in China [J]. *Nutrient Cycling Agroecosystem*, 49(1-3): 23-28
- Yan W J, Yin C Q, Tang H X. 1998. Nutrient retention by multipond systems: Mechanism for the control of nonpoint source pollution [J]. *Journal of Environmental Quality*, 27(5): 1009-1017
- Yan W J, Yin C Q, Zhang S. 1999. Nutrient budgets and biogeochemistry in an experimental agricultural watershed in Southeastern China [J]. *Biogeochemistry*, 45(1): 1-19
- 晏维金. 2006. 人类活动影响下营养盐向河口/近海的输出和模型研究 [J]. *地理研究*, 25(5): 825-835
- Yan W J. 2006. Summary of human activities on global nutrient export from watersheds to estuaries and coastal water: biogeochemical cycles and modeling [J]. *Geographical Research*, 25(5): 825-835 (in Chinese)
- 曾悦, 洪华生, 曹文志, 等. 2005. 九龙江流域养猪场氮磷流失特征研究 [J]. *农业工程学报*, 21(2): 116-120
- Zeng Y, Hong H S, Cao W Z, *et al*. 2005. Characteristics of nitrogen and phosphorus losses from swine production systems in Jiulong River Watershed [J]. *Transactions of the CSAE*, 21(2): 116-120 (in Chinese)
- Zhang J. 1996. Nutrient elements in large Chinese estuaries [J]. *Continental Shelf Research*, 16: 1023-1045
- Zhu Z L. 1997. Nitrogen balance and cycling in agroecosystems of China. In: Zhu Z L, Wen Q X, Freney J R (Eds). *Nitrogen in soil of China* [M]. London: Kluwer Academic Publishers, 323-330