

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2016.0083

梅琨, 商栩, 王振峰, 等. 2016. 土地利用对流域氮素记忆效应的影响研究[J]. 环境科学学报, 36(10): 3856-3863

Mei K, Shang X, Wang Z F, et al. 2016. Influence of land use on memory effect of watershed nitrogen[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 36(10): 3856-3863

## 土地利用对流域氮素记忆效应的影响研究

梅琨<sup>1</sup>, 商栩<sup>2</sup>, 王振峰<sup>2</sup>, 黄树辉<sup>3</sup>, 董旭<sup>4</sup>, 黄宏<sup>1,\*</sup>

1. 温州医科大学浙南水科学研究院, 温州 325035
2. 浙江省流域水环境与健康风险重点实验室, 温州 325035
3. 温州医科大学环境与公共卫生学院, 温州 325035
4. 温州市水利局, 温州 325000

收稿日期: 2015-12-10      修回日期: 2016-02-15      录用日期: 2016-03-07

**摘要:**“记忆效应”是一些流域实行了多年的氮污染控制实践却仍未见成效的主要原因之一。然而, 目前对流域氮素记忆效应的认识还很有限。本研究利用温州市珊溪水源地 13 个集水区近 5 年的河流 TN 浓度逐月监测数据, 运用重标极差(R/S)分析和 Spearman 秩相关分析方法, 探讨了土地利用对流域氮素记忆效应的影响。结果表明, 河流 TN 平均浓度与耕地( $r=0.495$ ,  $p=0.086$ )和建设用地( $r=0.692$ ,  $p=0.009$ )面积比例正相关, 与林地( $r=-0.604$ ,  $p=0.029$ )面积比例显著负相关, 与园地( $r=-0.039$ ,  $p=0.900$ )、未利用地( $r=-0.176$ ,  $p=0.566$ )、集水区面积( $r=-0.335$ ,  $p=0.263$ )和河网密度( $r=0.148$ ,  $p=0.629$ )的相关性不显著。13 条入库支流 TN 浓度序列的 Hurst 指数变异范围为 0.33~0.72, 意味着其中 11 个集水区具有显著的氮素记忆效应( $0.5<\text{Hurst 指数}<1.0$ ), 而其余 2 个集水区不显著( $0<\text{Hurst 指数}<0.5$ )。Hurst 指数与耕地( $r=-0.482$ ,  $p=0.095$ )和建设用地( $r=-0.311$ ,  $p=0.301$ )面积比例均负相关, 而与园地( $r=0.479$ ,  $p=0.098$ )和林地( $r=0.510$ ,  $p=0.075$ )面积比例正相关。同时, Hurst 指数与集水区面积大小( $r=0.118$ ,  $p=0.700$ )和未利用地面积比例( $r=0.032$ ,  $p=0.917$ )的相关性不显著, 而与河网密度负相关( $r=-0.529$ ,  $p=0.063$ )。流域内“源”功能为主土地利用面积的增加和氮输移效率的提高加剧了河流氮污染, 而对氮素记忆效应的作用则相反。因此, 尽管增加“汇”景观面积、降低氮输移效率能缓解河流氮污染, 但“汇”景观中截留的遗留氮对河流氮浓度会造成更长时间的影响。

**关键词:** 总氮; 重标极差分析; Hurst 指数; 记忆效应; 持续性; 反持续性

文章编号: 0253-2468(2016)10-3856-08      中图分类号: X17      文献标识码: A

## Influence of land use on memory effect of watershed nitrogen

MEI Kun<sup>1</sup>, SHANG Xu<sup>2</sup>, WANG Zhenfeng<sup>2</sup>, HUANG Shuhui<sup>3</sup>, DONG Xu<sup>4</sup>, HUANG Hong<sup>1,\*</sup>

1. Southern Zhejiang Water Research Institute, Wenzhou Medical University, Wenzhou 325035
2. Key Laboratory of Watershed Science and Health of Zhejiang Province, Wenzhou 325035
3. School of Environmental Science and Public Health, Wenzhou Medical University, Wenzhou 325035
4. Wenzhou Water Conservancy Bureau, Wenzhou 325000

Received 10 December 2015;      received in revised form 15 February 2016;      accepted 7 March 2016

**Abstract:** Memory effect (i.e. contribution of legacy sources) has been regarded as one of the major causes of increasing riverine nutrient exports observed in many regions even with pollution control for many years. However, knowledges on the factors influencing the memory effect are still limited. This study adopted the Rescaled Range (R/S) and Spearman analysis methods to address the influence of land use on watershed nitrogen (TN) memory effect based on monthly river records during 2010—2014 in 13 catchments within Shanxi Water Source Watershed in Wenzhou, China. Results indicated that both area percentages of cultivated land (C) ( $r=0.495$ ,  $p=0.086$ ) and developed land (D) ( $r=0.692$ ,  $p=0.009$ ) had positive correlations with riverine TN

**基金项目:** 国家自然科学基金(No. 40161554); 浙江省自然科学基金(No. LQ16C030004); 温州市公益性科技计划项目(No. S20140014); 温州市水体污染控制与治理科技创新项目(No. S20140037, S20140038, S20140039); 温州医科大学人才科研启动基金项目(No. QTJ14045)

**Supported by** the National Natural Science Foundation of China (No. 40161554), the Natural Science Foundation of Zhejiang Province (No. LQ16C030004), the Public Welfare Science and Technology Plan Project of Wenzhou City (No. S20140014), the Wenzhou Science and Technology Innovation Project for Water Pollution Control and Management (No. S20140037, S20140038, S20140039) and the Scientific Research Fund of Wenzhou Medical University (No. QTJ14045)

**作者简介:** 梅琨(1981—), 女, 副教授(博士), E-mail: meikun@iwaterlab.com; \* 通讯作者(责任作者), E-mail: huanghongpanda@163.com

**Biography:** MEI Kun (1981—), female, associate professor (Ph. D.), E-mail: meikun@iwaterlab.com; \* **Corresponding author**, E-mail: huanghongpanda@163.com

concentrations across the 13 catchments, while forest ( $F$ ) ( $r = -0.604$ ,  $p = 0.029$ ) area percentage showed negative correlations. Riverine TN concentrations had no significant correlations with garden ( $G$ ) ( $r = -0.039$ ,  $p = 0.900$ ) and unused land ( $U$ ) ( $r = -0.176$ ,  $p = 0.566$ ) area percentages, as well as catchment areas ( $r = -0.335$ ,  $p = 0.263$ ) and stream length densities ( $r = 0.148$ ,  $p = 0.629$ ). Estimated Hurst Indexes by R/S analysis for monthly riverine TN concentration time series ranged 0.33~0.72 in the 13 catchments. This implied that 11 catchments had significant nitrogen memory effect ( $0.5 < \text{Hurst} < 1.0$ ), while the remaining 2 catchments had no significant nitrogen memory effect ( $0 < \text{Hurst} < 0.5$ ). Across the 13 catchments, both  $C$  ( $r = -0.482$ ,  $p = 0.095$ ) and  $D$  ( $r = -0.311$ ,  $p = 0.301$ ) had negative correlations with Hurst Indexes, while  $G$  ( $r = 0.479$ ,  $p = 0.098$ ) and  $F$  ( $r = 0.510$ ,  $p = 0.075$ ) showed positive correlations. Although both catchment areas ( $r = 0.118$ ,  $p = 0.700$ ) and  $U$  ( $r = -0.176$ ,  $p = 0.566$ ) showed no significant correlation with Hurst Indexes, negative correlation was observed between catchment stream length densities and Hurst Indexes ( $r = -0.529$ ,  $p = 0.063$ ). Increasing areas of land use having “source” function (e.g.,  $C$  and  $D$ ) and enhancing nitrogen delivery efficiency can elevate riverine TN concentrations, while they had the opposite impact on catchment nitrogen memory effect. Although riverine nitrogen pollution can be mitigated by increasing areas of sink landscapes (e.g.,  $F$  and  $G$ ) and decreasing nitrogen delivery efficiency within the catchment, the legacy nitrogen that was trapped and stored in the sink landscapes would impact riverine TN concentration for a longer time.

**Keywords:** total nitrogen; rescaled range analysis; Hurst index; memory effect; persistence; anti-persistence

## 1 引言( Introduction)

在点源污染逐渐得到有效控制的情况下,非点源污染成为影响许多地区河流水质的重要原因之一。河流氮、磷等养分浓度和通量过高不仅危害着河流自身的生态系统健康,而且还是造成下游湖库、河口、海岸等水体富营养化的主要原因之一(Leeben *et al.*, 2008; Roy *et al.*, 2014; Chen *et al.*, 2014a)。在以非点源污染为主的流域,土地利用/土地覆被变化被认为是影响河流水质变化的主要因素(黄金良等, 2011; Huang *et al.*, 2014; 吉冬青等, 2015)。然而,在许多流域,尽管已实行了多年污染控制实践,包括减少施肥量、转变土地利用方式等,但河流的养分浓度并未显著降低(Stalnacke *et al.*, 2003; Onderka *et al.*, 2012; Van Mete *et al.*, 2015)。造成这一结果的其中一个重要原因是流域养分污染过程存在记忆效应,即流域景观中的历史遗留养分对当前的河流养分污染存在较大贡献(Huang *et al.*, 2014a; Chen *et al.*, 2014a)。

为了有效控制养分污染,人们主要依靠相关的模型明确河流养分对流域养分输入、气候和土地利用变化等的定量响应关系,从而指导流域或区域的养分污染控制方案制定。现有主要分布式模型(AGNPS、SWAT、HSPF等)缺乏明确的机制/模块来描述在流域中滞留的氮对河流氮浓度和通量的影响(Meals *et al.*, 2010; Sanford *et al.*, 2013),一些集总式/半分布式模型(ReNuMa、SPARROW、GlobalNEWS等)和NANI(净人为氮输入)算法也假设流域氮循环在当年(或在多年内)处于稳态(Alam *et al.*, 2012; Swaney *et al.*, 2012),因而当年(或多年平均)河流氮输出是流域当年(或多年平均)氮输入的一个固定比例(Wellen *et al.*, 2012; Van Mete *et al.*, 2015)。在滞后性方面考虑缺失或不足(Van

Mete *et al.*, 2015),存在高估当前人为影响的风险(Chen *et al.*, 2014b; Huang *et al.*, 2014a),因而近年来已有学者在探索建立新的算法和模型(Chen *et al.*, 2014c; Huang *et al.*, 2014b; Van Mete *et al.*, 2015)。可见,识别流域养分污染过程的记忆效应及其影响因素对指导流域养分污染控制实践具有重要的现实意义。

近年来,流域养分污染过程的记忆效应逐渐引起人们的关注,但已有工作主要是记忆效应的识别(Worrall *et al.*, 1998; McIsaac *et al.*, 2001; Onderka *et al.*, 2012),对记忆效应的影响因素认识仍非常有限。河流养分污染过程受众多因素共同影响,包括流域内土壤-植物系统的养分盈亏(Haag *et al.*, 2000)、地表和地下水文过程(de Wit *et al.*, 2008)、土地利用变化(Onderka *et al.*, 2009)等。流域土地利用方式的变化不仅反映了“源”-“汇”景观的转化,而且直接影响了养分迁移转化过程。因此,土地利用可能是影响流域养分记忆效应的重要因素之一。基于此,本研究以浙江省珊溪水源地 13 个小流域为研究对象,基于 2010—2014 年逐月河流总氮(TN)监测数据,运用 R/S 分析和 Spearman 相关分析等方法,解析各小流域的氮素记忆效应,探讨不同土地利用类型、小流域面积、河网密度等因素对氮素记忆效应的影响,以期为水源地氮污染控制提供决策依据。

## 2 材料与方法( Materials and methods)

### 2.1 研究区域与数据来源

珊溪水源地位于浙江省温州市飞云江上游,全流域集水面积 2302 km<sup>2</sup>,由珊溪水库、赵山渡水库和配套引水渠系 3 部分组成,供水范围涉及当地 500 多万人口。珊溪水库为多年调节水库,坝址以上集水面积 1529 km<sup>2</sup>,多年平均入库径流量 18.6 亿 m<sup>3</sup>,正常蓄水位 142 m,相应库容和水域面积分别为

12.91 亿 m<sup>3</sup>和 36 km<sup>2</sup>.赵山渡水库为日调节水库,位于珊溪水库下游 30 km,两库之间集水面积 773 km<sup>2</sup>,正常蓄水位 22 m,相应库容 2785 万 m<sup>3</sup>,年供水总量 7.3 亿 m<sup>3</sup>.

流域多年平均气温为 19.6℃,年平均相对湿度 83%,多年平均日照时数达 1887 h.多年平均降水日数为 149 d,多年平均降水量约为 1880 mm,4—9 月雨量集中,约占全年的 75%.全流域平均高程 573 m,属江南丘陵山地红壤区,土壤主要是红壤,其余为黄壤、紫色土、粗骨土、潮土和水稻土.土地利用类型以林地为主,约占总面积的 71%,其次为耕地,约占 20%.在林地中,针叶林和阔叶林的比例分别为 70%和 10%.

流域集水区内工业点源污染基本上得到控制,大部分水质参数已符合 I 类水质,但受农村生活及农业生产活动等影响,库区 TN 浓度超标问题仍然较为严重.本文水质数据资料为 2010—2014 年珊溪水源地 13 条入库支流的 TN 浓度监测数据(图 1).主要入库支流包括司前溪、三插溪、莒江溪、洪口溪、聶作口溪、渡渎溪、九溪、李井溪、平和溪、珊溪坑、双桂溪、泗溪和玉泉溪,共 13 条.水质监测频次为每月 1 次,TN 的测定采用碱性过硫酸钾消解-紫外分光光度法(GB 11894-1989).

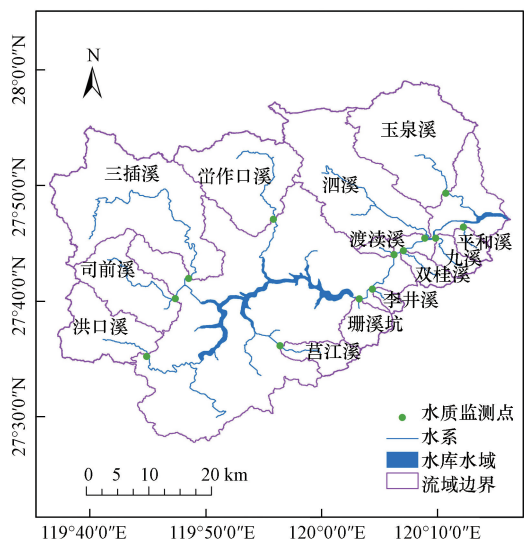


图 1 各支流水质监测点和控制面积

Fig.1 Sampling sites and catchments of the tributaries

根据当地国土部门提供的 2009 年土地利用数据,将流域内的土地利用分为耕地、园地、林地、建设用地和未利用地共 5 类(图 2).各集水区耕地、园地、林地、建设用地和未利用地构成比例范围分别

为 3.3%~52.7%、0~6.5%、44.7%~95.4%、0.4%~5.4%和 0~2.3%(表 1).各支流 TN 平均浓度、集水面积和河网密度的范围分别为 0.45~1.78 mg·L<sup>-1</sup>、10.1~284.2 km<sup>2</sup>和 47.2~403.3 m·km<sup>-2</sup>(表 1).从偏度与丰度可见(表 1),这些数据的分布跟标准正态分布的差别较大.

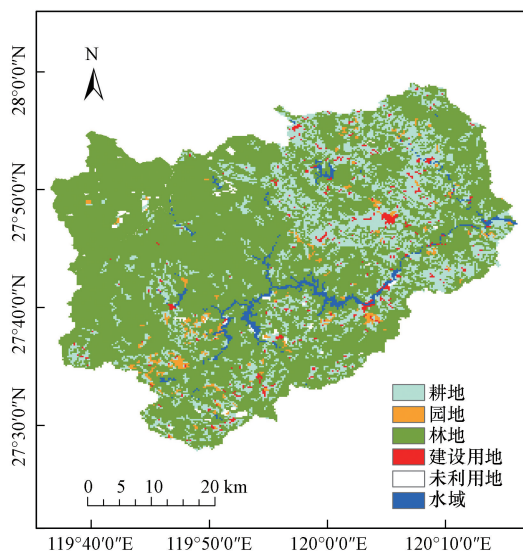


图 2 珊溪水源地土地利用分布图

Fig.2 Land use distribution of Shanxi Water Source

2.2 分析方法

2.2.1 R/S 分析 为了识别集水区养分的记忆效应,本研究引入了重标极差(R/S)分析方法.R/S 分析方法最大的特点是能揭示时间序列的分形特征,从而判断时间序列的变化是否具有持续性(即记忆效应),已被广泛应用于水文和气象等时序资料记忆效应分析(冯新灵等, 2007).主要原理为:对于一个时间序列 {ξ(t)}, t=1,2,⋯(x<sub>1</sub>,⋯, x<sub>n</sub>),对于任意正整数 k ≥ 1,其均值系列如式(1)所示,累积离差 F(t,k)、极差 R(k)和标准差 S(k)分别如式(2)~(4)所示.

$$\bar{\xi}_k = \frac{\sum_{t=1}^k \xi(t)}{k}, k = 1, 2, \dots \quad (1)$$

$$F(t, k) = \sum_{t=1}^k (\xi(t) - \bar{\xi}_k), 1 \leq t \leq k \quad (2)$$

$$R(k) = \max F(t, k) - \min F(t, k), 1 \leq t \leq k \quad (3)$$

$$S(k) = \left[ \frac{1}{k} \sum_{t=1}^k (\xi(t) - \bar{\xi}_k)^2 \right]^{\frac{1}{2}}, k = 1, 2, \dots \quad (4)$$

如果存在以下关系: R(k)/S(k) ∝ k<sup>H</sup> (其中,

表 1 珊溪水源地流域内各支流 TN 浓度和各集水区土地利用特征

Table 1 Characteristics of riverine TN concentrations and land use types across 13 catchments within the Shanxi Water Source

支流	TN 浓度/ ( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ )	子流域土地利用构成					集水面 积/ $\text{km}^2$	河网密度/ ( $\text{m}\cdot\text{km}^{-2}$ )
		耕地	园地	林地	建设用地	未利用地		
司前溪	0.63±0.34	10.5%	0.6%	87.2%	0.9%	0.8%	119.1	159.1
三插溪	0.50±0.42	3.3%	0	95.4%	0.4%	1.0%	115.6	403.3
洪口溪	0.45±0.42	14.1%	4.5%	79.7%	0.8%	0.9%	176.9	42.9
莒江溪	0.56±0.52	24.0%	2.1%	70.6%	3.3%	0	48.7	140.8
甯作口溪	0.59±0.35	18.2%	0.3%	78.5%	0.6%	2.3%	284.2	46.9
浚渡溪	0.61±0.43	38.3%	0	59.2%	2.4%	0.2%	10.4	241.4
九溪	0.69±0.35	36.4%	1.9%	60.0%	1.7%	0	25.7	307.5
李井溪	1.78±0.73	28.7%	0	65.8%	5.4%	0.1%	10.1	284.4
平和溪	0.84±0.98	41.0%	1.2%	55.9%	1.8%	0	19.8	218.9
珊溪坑	1.24±0.58	13.1%	6.5%	77.2%	2.8%	0.3%	38.8	47.2
双桂溪	0.91±0.41	52.7%	0.3%	44.7%	2.3%	0	24.0	318.1
泗溪	1.77±0.74	39.2%	1.9%	53.6%	3.7%	1.6%	243.8	110.9
玉泉溪	0.77±0.33	31.5%	1.2%	64.7%	1.5%	1.1%	182.3	57.0
偏度	1.41	0.01	1.73	0.25	0.91	1.08	0.82	0.34
丰度	0.86	-0.87	2.78	-0.52	0.74	0.59	-0.67	-1.15

$H$  为 Hurst 指数),则说明时间序列存在 Hurst 现象.分别对序列  $k$  和  $R(k)/S(k)$  取对数,用最小二乘法进行线性拟合,斜率就是 Hurst 指数.对于河流氮浓度时间序列数据,当  $H=0.5$ ,表示其变化是随机的;当  $0.5<H<1.0$ ,表示其具有持续性(记忆效应),即河流氮浓度的变化将保持当前的变化趋势;当  $0<H<0.5$ ,表示其具有反持续性,即河流氮浓度的变化将与当前的变化趋势相反.参照以往研究(冯新灵等, 2007),反持续性和持续性强度分成 5 个等级(表 2).

表 2 Hurst 指数分级表

Table 2 Grading of Hurst index

Hurst 指数范围	持续性强度	Hurst 指数范围	反持续性强度
$0.50<H\leq 0.55$	很弱	$0.45\leq H<0.50$	很弱
$0.55<H\leq 0.65$	较弱	$0.35\leq H<0.45$	较弱
$0.65<H\leq 0.75$	较强	$0.25\leq H<0.35$	较强
$0.75<H\leq 0.80$	强	$0.20\leq H<0.25$	强
$0.80<H<1.00$	很强	$0.00<H<0.20$	很强

2.2.2 Spearman 秩相关系数法 对不服从正态分布、总体分布类型未知等资料,可使用积矩相关系数来描述关联性.考虑到各入库支流 TN 浓度、各集水区的土地利用构成、河网密度等数据并不符合标准正态分布(表 1),本文采用 Spearman 秩相关系数法分析 TN 浓度及 Hurst 指数与主要影响因子之间

的关联程度和方向.

### 3 结果与讨论 (Results and discussion)

#### 3.1 土地利用对河流 TN 浓度的影响

河流氮浓度和通量的大小主要取决于流域氮的源强和输移效率(任盛明等, 2014; 张汪寿等, 2014; Chen *et al.*, 2014a). Spearman 秩相关分析结果显示,珊溪水源地内的 13 个集水区河流 TN 平均浓度与耕地和建设用地面积比例间均存在显著正相关(表 3).这意味着耕地中使用的化肥、粪肥氮会通过降雨-径流和农田排水进入河流水体,是河流氮的重要来源.建设用地所占面积比例越大,不仅体现了生活和畜禽养殖产生的含氮污水直排的可能性越大,而且也预示着不透水地表面积增加,使得地表径流的冲刷能力更加显著,对生活和畜禽养殖产生的含氮固废的淋溶和流失作用加剧.与之相反,各支流 TN 平均浓度跟林地的面积比例具有负相关关系(表 3),这是由于林地地表植被和根系对氮具有很强的吸附、吸收和滞留作用(Miserendino *et al.*, 2011),对非点源氮污染的“汇”作用远远超过了“源”的作用.以往的研究也表明,河流的氮浓度与流域的森林覆盖率呈负相关(Tu, 2011).同时,珊溪水源地各支流 TN 平均浓度跟园地面积比例间的相关性不显著(表 3),这是由于尽管园地的化肥、粪肥氮施用会造成非点源氮污染,但园地的地表植被丰富

和发达根系及土壤人为扰动少等特征,又会对非点源氮污染产生“汇”的作用,因而园地对河流水质的影响具有不确定性(吉冬青等, 2015).各支流 TN 平均浓度跟未利用地面积比例间的相关系数为负数,但相关性不显著.未利用地的氮污染源强和截留能力都很弱,对非点源污染具有“源”和“汇”的双重性质,因而,对河流水质的影响也具有很大不确定性(黄金良等, 2011).已有研究表明,流域面积和河网密度是影响氮素输移效率的重要因素(Galbraith *et al.*, 2007; 任盛明等, 2014).流域面积越小而河网密度越大,养分更容易迁移入河.珊溪水源地 TN 浓度分别跟集水区面积和河网密度具有负的和正的相关系数,但相关性不显著(表 3).这可能是因为氮迁移入河过程还跟河流特征、降水量、水流路径等密切相关,其它因素的影响可能掩盖了流域面积和河网密度的作用(张汪寿等, 2014; Chen *et al.*, 2014b).

表 3 TN 平均浓度与土地利用的 Spearman 相关系数

Table 3 Spearman's correlation coefficient between TN concentration and land use

	<i>r</i>	<i>p</i>
耕地比例	0.495 *	0.086
园地比例	-0.039	0.900
林地比例	-0.604 **	0.029
建设用地比例	0.692 ***	0.009
未利用地比例	-0.176	0.566
流域面积	-0.335	0.263
河网密度	0.148	0.629

注: \*、\*\*、\*\*\* 分别表示置信度(双侧)为 0.10、0.05、0.01 时,相关性显著,下同.

总体而言,珊溪水源地耕地和建设用地面积增加不仅提高了氮污染的源强,而且提高了氮的输移效率,是造成河流氮污染的主要“源”.相反地,林地对非点源氮污染主要起到了“汇”的作用.园地和未利用地尽管是也是河流氮的“源”,但其较强的“汇”作用弱化了对河流氮污染的影响.这些结果与已有的很多研究基本一致(陈利顶等, 2003; Galbraith *et al.*, 2007; Tu, 2011; 黄金良等, 2011; 李明涛等, 2013; 吉冬青等, 2015; 王鹏等, 2015).

### 3.2 土地利用对氮记忆效应的影响

流域养分记忆效应的影响因素众多,包括土地利用、地形地貌、河网特征、气候条件等(Worrall *et al.*, 1998; Onderka *et al.*, 2012),因此,不同集水区养分的记忆效应也存在差异.R/S 分析结果显示,

珊溪水源地内的 13 个集水区河流逐月 TN 浓度数据序列的 Hurst 指数为 0.33~0.72(表 4).通过与 Hurst 指数各分级阈值比较发现,双桂溪和泗溪分别具有较强和较弱的反持续性,意味着这 2 个集水区不具有氮记忆效应.与之相反,其他 11 条支流具有持续性,其中,畚作口溪和珊溪坑具有较强持续性,意味着这 11 个集水区具有氮记忆效应.造成以上差异的其中一个重要原因就在于土地利用的影响.Hurst 指数与土地利用的 Spearman 相关分析结果表明,Hurst 指数与耕地和建设用地所占比例具有负相关关系(表 5).建筑用地的氮入河过程主要是污水直排和不透水层的地表径流,氮的输移效率高,因此,对氮的截留能力弱,意味着遗留氮有限或记忆效应的影响很小.对耕地而言,由于翻耕和连续耕作,施用的氮肥不仅会通过作物收获带走,而且会通过反硝化等气态损失,使得氮在耕地中截留有限.尽管耕地的地下水中会持留氮,但地下水的滞留时间可以长达几年到几十年,因此,在本研究的 5 年逐月数据序列可能无法有效识别.与之相反,Hurst 指数与园地和林地的面积比例具有正相关关系(表 5).相对于耕地和建筑用地,园地和林地不仅对氮污染的源强较弱,而且对氮具有较强的持留能力,所形成的遗留氮可以持续对河流水质产生影响(Chen *et al.*, 2014b; Huang *et al.*, 2014b).由于未利用地的氮污染的源强和截留能力都很弱,使得对流域氮素记忆特征的影响也很小(表 5).

表 4 支流逐月 TN 浓度序列的 Hurst 指数

Table 4 Hurst Index of monthly TN concentration time series of the tributaries

支流	Hurst 指数	时间记忆特征
司前溪	0.61	较弱持续性
三插溪	0.58	较弱持续性
洪口溪	0.63	较弱持续性
莒江溪	0.6	较弱持续性
畚作口溪	0.68	较强持续性
湊渡溪	0.59	较弱持续性
九溪	0.6	较弱持续性
李井溪	0.55	较弱持续性
平和溪	0.63	较弱持续性
珊溪坑	0.72	较强持续性
双桂溪	0.33	较强反持续性
泗溪	0.37	较弱反持续性
玉泉溪	0.54	很弱持续性

表 5 TN 浓度序列 Hurst 指数与土地利用的 Spearman 相关系数  
Table 5 Spearman's correlation coefficient between Hurst Index of TN concentration series and land use

	<i>r</i>	<i>p</i>
耕地比例	-0.482 *	0.095
园地比例	0.479 *	0.098
林地比例	0.510 *	0.075
建设用地比例	-0.311	0.301
未利用地比例	0.032	0.917
流域面积	0.118	0.700
河网密度	-0.529 *	0.063

同时, Hurst 指数与集水区面积的相关系数为正(表 5). Onderka 等(2012)对斯洛伐克 Váh 河流域 3 条支流 NO<sub>3</sub>-N 浓度序列的分析结果也显示, Hurst 指数随着流域面积的增大而增加. 然而, 本研究发现, Hurst 指数与集水区河网密度(即单位面积的河长)具有显著的负相关性. 因此, 与集水面积相比, 氮的记忆效应更取决于影响氮输移效率的河网密度. 河网密度越大, 氮能更迅速地随着降雨-径流过程进入河道, 弱化了土壤持留等过程, 因此, 氮的输移效率越高, 降低了集水区对氮的持留, 使得记忆效应更弱.

综上所述, 流域内“汇”功能的土地利用面积比重越大, 持留能力越强, 氮输移效率越弱, 流域氮的记忆效应越强. 相反地, 流域内“源”功能的土地利用面积比重越大, 滞留能力越弱, 氮输移效率越强, 流域氮的记忆效应越弱. 因此, 流域的河流特征、坡度、地表和地下水比例、养分盈亏等其他因素直接影响着氮素的输移效率和遗留量大小, 对流域氮的记忆效应也具有较大的影响, 在未来的研究中还要进一步分析这些因素对记忆效应的影响.

### 3.3 流域氮素记忆效应的影响

与很多饮用水源流域一样, 非点源污染是珊溪水源地水质安全的主要威胁. 非点源污染控制主要依靠“源头控制”和“过程拦截”两大技术手段. 在“源头控制”方面, 主要途径包括减少施肥、精准施肥、退耕还林等. 在“过程拦截”方面, 主要途径包括景观格局优化、建立河岸缓冲带、河道滞留塘、人工湿地等. 为更科学地指导流域非点源污染控制, 还要充分识别流域氮的时间记忆效应. 忽略养分污染过程的记忆效应, 将会低估已有污染控制实践和措施的成效(Onderka *et al.*, 2012), 进而对未来流域污染防控实践产生严重误导. 对于氮记忆效应不显著的流域(即遗留氮的影响有限), 意味河流氮浓度对

流域污染治理响应比较迅速, 因此, 应优先采用“源”控制策略. 相反地, 对于氮记忆效应显著的流域(即遗留氮的影响显著), 意味河流氮浓度对流域污染治理响应比较缓慢. 从短期来看, 采用“源”控制的策略很难实现水质的迅速改善, 因此, 应该优先采用“汇”控制的策略, 强化氮的生物截留、反硝化等作用, 从而迅速改善水质. 但从长期来看, 增加“汇”景观会使得相当一部分氮被吸附、吸收和截留, 从而可能对河流氮污染产生更长时间的影响. 因此, 识别养分污染过程的记忆效应对于指导管理部门从短期和长期的角度制定养分污染控制对策和措施, 将有限的人力和物力资源进行合理的时间分配以提高投入产出效率, 具有重要的现实意义.

在现有的许多河流氮源识别、流域氮平衡、迁移转化过程模拟等研究中, 滞后性考虑的缺失可能导致大大高估当前的氮源贡献, 这也是现有大部分流域模型和方法的共同缺点. 现有的模型和方法大都假设流域当年输入的氮随着地表径流和地下径流的迁移“同步”入河, 没有或者很少考虑到地下径流的滞后性(Huang *et al.*, 2014b; Van Mete *et al.*, 2015). 由于通过地下径流进入河流的氮基本上可能是数年、甚至数十年前的历史产物, 当前河流污染物浓度或通量实际上是当前和历史的共同结果, 现有方法将历史污染产物归咎于当前的产物, 导致高估了当前的污染水平. 因此, 在未来养分污染过程的定量和预测研究中, 要同时考虑历史和当前养分的贡献, 并将地表径流和地下径流污染的时间记忆特征考虑在内. 这将是今后的一个重要而且极具挑战性的发展方向.

## 4 结论(Conclusions)

1) 对珊溪水源地而言, 耕地和建设用地面积增加不仅提高了氮污染的源强, 而且提高了氮的输移效率, 是造成河流氮污染的主要“源”. 相反地, 林地对非点源氮污染主要起到了“汇”的作用. 园地和未利用地尽管是也是河流氮的“源”, 但其较强的“汇”作用弱化了对河流氮污染的影响.

2) 在 13 个集水区中, 其中 11 个具有显著的氮记忆效应. 集水区氮记忆效应的强弱均与耕地和建设用地面积比例均呈负相关, 与园地和林地面积比例及河网密度呈正相关, 而与集水区面积大小和未利用地面积比例的相关性不显著. 流域内“源”功能为主土地利用面积的增加和氮输移效率的提高加

剧了河流氮污染,而对氮素记忆效应的作用则相反。

3)对于氮记忆效应不显著的流域,通过氮“源”输入控制手段能迅速降低河流氮浓度.与之相反,对于氮记忆效应显著的流域,短期内应主要依赖“汇”截留的措施迅速改善水质,但“汇”景观中截留的遗留氮对河流氮浓度会造成更长时间的影响.在未来的流域氮污染模型和控制研究中,应该同时考虑历史和当前养分的贡献,强化对氮记忆效应的影响因素认识,为实现氮污染有效控制提供更可靠的科学依据。

**责任作者简介:**黄宏(1982—),男,博士,助理研究员,主要从事流域水污染过程定量和水污染防治研究. E-mail: huanghongpanda@163.com.

#### 参考文献(References):

- Alam M J, Goodall J L. 2012. Toward disentangling the effect of hydrologic and nitrogen source changes from 1992 to 2001 on incremental nitrogen yield in the contiguous United States [J]. *Water Resource Research*, 48(4):154-167
- Chen D J, Hu M P, Guo Y, *et al.* 2014a. Influence of legacy phosphorus, land use, and climate change on anthropogenic phosphorus inputs and riverine export dynamics [J]. *Biogeochemistry*, 123(1/2):99-116
- Chen D J, Huang H, Hu M P, *et al.* 2014b. Influence of lag Effect, soil Release, and climate change on watershed anthropogenic nitrogen inputs and riverine export dynamics[J]. *Environmental Science & Technology*, 48(10):5683-5690
- Chen D, Hu M, Dahlgren R A. 2014c. A dynamic watershed model for determining the effects of transient storage on nitrogen export to rivers [J]. *Water Resource Research*, 50(10):7714-7730
- 陈利顶,傅伯杰,徐建英,等. 2003. 基于“源-汇”生态过程的景观格局识别方法——景观空间负荷对比指数[J]. *生态学报*, 23(11):2406-2413
- de Wit H A, Hindar A, Hole L. 2008. Winter climate affects long-term trends in stream water nitrate in acidsensitive catchments in southern Norway [J]. *Hydrology and Earth System Sciences*, 12:393-403
- 冯新灵,罗隆诚,邱丽丽,等. 2007. 青藏高原至中国东部年雨日变化趋势的分形研究[J]. *地理研究*, 26(4):835-843
- Galbraith L M, Burns C W. 2007. Linking land-use, water body type and water quality in southern New Zealand [J]. *Landscape Ecology*, 22:231-241
- Huang H, Lu J. 2014. Identification of river water pollution characteristics based on projection pursuit and factor analysis [J]. *Environmental Earth Science*, 72(9):3409-3417
- Huang H, Dingjiang C, Baifa Z, *et al.* 2014a. Modeling and forecasting riverine dissolved inorganic nitrogen export using anthropogenic nitrogen inputs, hydroclimate, and land-use change [J]. *Journal of Hydrology*, 517:95-104
- Huang H, Zhang B F, Lu J. 2014b. Quantitative identification of riverine nitrogen from point, direct runoff and base flow sources [J]. *Water Science and Technology*, 70(5):865-70
- 黄金良,李青生,洪华生,等. 2011. 九龙江流域土地利用/景观格局-水质的初步关联分析[J]. *环境科学*, 32(1):64-72
- 吉冬青,文雅,魏建兵,等. 2015. 溪流河流域景观空间特征与河流水质的关联分析[J]. *生态学报*, 35(2):246-253
- Leeben A, Tonno R, Freiberg V. 2008. History of anthropogenically mediated eutrophication of Lake Peipsi as revealed by the stratigraphy of fossil pigments and molecular size fractions of pore-water dissolved organic matter [J]. *Hydrobiologia*, 599(1):49-58
- 李明涛,王晓燕,刘文竹. 2013. 潮河流域景观格局与非点源污染负荷关系研究[J]. *环境科学学报*, 33(8):2296-2306
- McIsaac G F, David M B, Gertner G Z, *et al.* 2001. Eutrophication-nitrate flux in the Mississippi River [J]. *Nature*, 414:166-167
- Meals D W, Dressing S A, Davenport T E. 2010. Lag time in water quality response to best management practices: A Review [J]. *Journal of Environmental Quality*, 39(1)85-96
- Miserendino M L, Casaux R, Archangelsky M, *et al.* 2011. Assessing land-use effects on water quality, in-stream Habitat, riparian ecosystems and biodiversity in Patagonian northwest streams [J]. *Science of the Total Environment*, 409(3):612-624
- Onderka M, Pekárová P, Miklánek P, *et al.* 2009. Examination of the dissolved inorganic nitrogen budget in three experimental microbasins with contrasting land cover—a mass balance approach [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 210:221-230
- Onderka M, Mrafková L, Krein *et al.* 2012. Long-term persistence of stream nitrate concentrations (Memory Effect) [J]. *Water Air and Soil Pollution*, 223:241-252
- 任盛明,曹龙熹,孙波. 2014. 亚热带中尺度流域氮磷输出的长期变化规律与影响因素[J]. *土壤*, 46(6):1024-1031
- Roy J W, Bickerton G. 2014. Elevated dissolved phosphorus in riparian groundwater along gaining urban streams [J]. *Environmental Science and Technology*, 48(3):1492-1498
- Sanford W E, Pope J P. 2013. Quantifying groundwater's role in delaying improvements to Chesapeake Bay water quality [J]. *Environmental Science & Technology*, 47(2):13330-13333
- Stalnacke P, Grimvall A, Libiseller C, *et al.* 2003. Trends in nutrient concentrations in Latvian rivers and the response to the dramatic change in agriculture [J]. *Journal of Hydrology*, 283:184-205
- Swaney D P, Hong B, Ti C, *et al.* 2012. Net anthropogenic nitrogen

- inputs to watersheds and riverine N export to coastal waters; a brief overview [J]. *Current Opinion in Environmental Sustainability*, 4 (2):203-211
- Tu J. 2011. Spatially varying relationships between land use and water quality across an urbanization gradient explored by geographically weighted regression [J]. *Applied Geography*, 31(1):376-392
- Van Mete K J, Basu N B. 2015. Catchment legacies and time lags: a parsimonious watershed model to predict the effects of legacy storage on nitrogen export [J]. *PLoS ONE*, 10(5): e0125971. doi:10.1371/journal.pone.0125971
- 王鹏, 齐述华, 袁瑞强. 2015. 赣江流域土地利用方式对无机氮的影响[J]. *环境科学学报*, 35(3): 826-835
- Wellen C, Arhonditsis G B, Labencki T, *et al.* 2012. A Bayesian methodological framework for accommodating interannual variability of nutrient loading with the SPARROW model. *Water Resource Research*, 48(W10505):1-22
- Worrall F, Burt T P. 1998. A univariate model of river water nitrate time series [J]. *Journal of Hydrology*, 214:74-90
- 张汪寿, 李叙勇, 苏静君. 2014. 河流氮输出对流域人类活动净氮输入响应研究综述[J]. *应用生态学报*, 25(1):272-278