

密云水库上游半城子水库流域氮素时空变化特征及源解析研究^{*}

叶芝菡[†] 黄炳彬 常国梁 李卓凌

(北京市水科学技术研究院, 100048, 北京)

摘要 以密云水库上游的半城子水库流域为研究对象, 2019 年针对氮的时空分布与不同来源开展连续监测, 分析流域内氮的时空变化特征并识别氮的主要来源。结果表明: 半城子水库汛期强降雨时期总氮(TN)质量浓度较其他时段明显升高, 相应洪水携带氮入库负荷占全年总负荷的 90% 以上, 是氮控制的重点时段; 2 条入库河流, 牐牛河汛期 TN 成倍超出史庄子沟, 在中下游尤为明显, 是氮控制的重点区域; 库区及入库河流的氮以硝酸盐氮为主, 平均占比 74.3%, 雨季较高; 解析重要场次洪水的 TN 来源, 自然因素(林草覆盖和降雨)是主要来源, 占比超过 60%, 其次是人类生产和生活影响, 其中废弃矿区对 TN 影响较大, 应给予重视。研究结果可为密云水库流域氮源解析和控氮方案制定提供数据支撑。

关键词 半城子水库; 氮; 源解析

中图分类号 X824

DOI: 10.12202/j.0476-0301.2020216

0 引言

密云水库是北京最重要的地表水源地, 如何构建密云水库上游山水林田湖草生命共同体、开展北方地区大型地表水源地生态文明建设, 切实保障首都水生态安全, 长期以来一直受到社会各界的关注。

20 世纪以来, 世界范围内地表水体普遍出现了总氮(TN)含量增加的趋势^[1-3], 对水体富营养化和饮用安全产生了威胁。我国也多次报道河湖水库 TN 含量持续增高^[4-7], 密云水库库区及入库河流中的 TN 含量偏高且近年持续上升^[8-10], 氮源解析工作对于湖库水质维护至关重要。李文赞等^[10]对近 20 年密云水库 2 大干流潮河、白河水质进行统计分析, 认为人类活动增强是 TN 含量变化的主要原因; 房孝铎等^[11]对密云水库上游主要河流的典型河段/水库进行雨季前后监测, 识别了氮质量浓度的时空变化和氮的主要形态; 也有学者采用模型方法对包括密云水库在内多个流域的氮负荷及其空间分配进行了研究^[12-14]。以上研究有助于对氮及来源的整体了解, 但由于当前普遍缺乏精细化监测数据的支撑, 在氮来源问题上仍没有统一的认识, 制约了流域治理中控氮措施的筛选和布局。

本研究拟在密云水库上游选择典型流域, 通过布设监测网络、开展连续监测, 摸清流域水体中氮质量浓度及其时空变化, 识别氮的来源, 为密云水库流域

更大范围的氮源解析提供支撑。

1 数据与方法

1.1 研究区概况 选择的典型流域是半城子水库流域。半城子水库位于密云区不老屯镇半城子村北, 在密云水库上游二、三级保护区范围内。水库建于 1976 年, 总库容 $1\ 020\times 10^5\text{ m}^3$, 属于中型水库。水库控制流域面积 66.1 km^2 。

半城子水库流域地势东北高西南低, 海拔 49~995 m、平均 522 m, 坡度 $>15^\circ$ 的面积占 52.44%。半城子水库有 2 条主要入库河流——牐牛河和史庄子沟。牐牛河河长 19.9 km, 控制面积 47.0 km^2 ; 史庄子沟长 6.7 km, 控制面积 16.1 km^2 。流域内有 5 个行政村共 2 108 人。半城子水库流域土地利用以有林地和灌木林地为主, 占流域总面积的 87.45%, 农地(果园和旱地)面积占 9.58%, 主要分布在河道和支沟两岸。

流域内的人类活动主要以农业为主, 板栗等果树种植较普遍, 玉米等旱作农田局部分布。板栗主要施用绿肥, 根据长势情况配合施用化肥, 耕地普遍施用二胺、尿素等化肥。在密云区水源保护政策^[15]的实施下, 流域内没有规模化养殖场, 仅有少量家禽。对于农村生活污水, 2 个行政村(史庄子村、陈家峪村)建有污水站, 共 3 处, 其他村庄未处理。流域内历史上曾

^{*} 国家水体污染控制与治理科技重大专项资助项目(2017ZX07102-001)

[†] 通信作者: 叶芝菡(1979—), 女, 博士, 正高级工程师。研究方向: 流域生态修复。E-mail: zhihan79@163.com

收稿日期: 2020-03-12

开垦金矿, 20 世纪 90 年代末废弃, 主要分布在牯牛河子流域内. 流域 2019 年降雨 441 mm, 汛期降雨与水库进水量见表 1.

表 1 半城子水库 2019 年 6—9 月降雨量与入库水量

月份	降雨量/mm	入库水量/ 10^5 m^3	备注
6	16	0.60	
7	155	6.60	
8	208	619.45	8月降雨集中, 8月9—11日降雨145 mm
9	28	14.10	

1.2 监测与分析方法 对半城子水库流域布设了监测网络, 以兼顾流域上下游、污染源类型等为原则, 共布设地表水和雨水监测点 14 个(图 1). 其中: 雨水监测点 1 个, 位于半城子水库管理处(库区边); 地表水监测点 13 个, 包括库区 3 个、史庄子沟 4 个、牯牛河 6 个. 另外, 对 3 处污水站进行取样分析.

2019 年 4 月开始逐月人工采样, 汛期大雨后加测, 对主要洪水过程进行涨水和退水期间的样品采集. 样品送往北京市理化中心检测(CMA 认证), 检测指标包括 TN、硝酸盐氮($\text{NO}_3\text{-N}$)、氨氮($\text{NH}_3\text{-N}$)等物质质量浓度.

2 结果分析

2.1 氮质量浓度及形态时间变化

2.1.1 月度变化 图 2、3 为 2019 年半城子水库库区、2 条入库河流(牯牛河、史庄子沟)含氮物质逐月质量

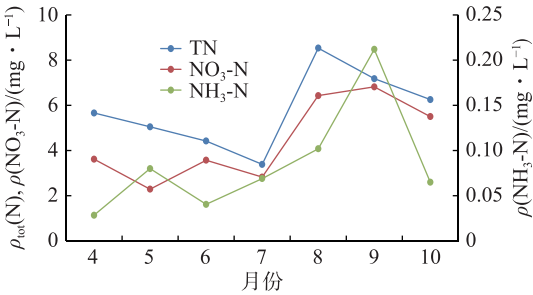


图 2 半城子水库库区氮质量浓度月份变化

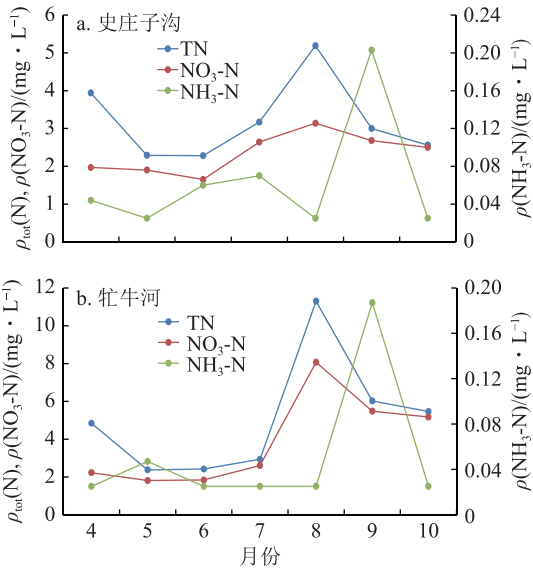


图 3 入库河流含氮物质质量浓度月变化

浓度变化. 库区 TN 的质量浓度为 $3.36\sim 8.64\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 全年 TN 质量浓度呈现先降后升再降的趋势, 其中在 8 月质量浓度大幅升高. 2 条入库河流 TN 变化与库区基本近似, 牯牛河 8 月 TN 质量浓度升高幅度最大, 超过库区与史庄子沟. 尽管 7 与 8 月降雨量均较大, 但 7 月降雨分散、8 月集中, 相应产生的洪水径流也主要集中在 8 月(表 1). 同期 TN 质量浓度明显上升, 相对于 4—7 月平均水平, 8 月库区 TN 质量浓度升高 84.3%, 史庄子沟和牯牛河分别上升 77.74% 和 259.87%, 反映出降雨径流所携带的面源污染是 TN 质量浓度上升的主要原因.

半城子水库库区及入库河流中的 TN 以 $\text{NO}_3\text{-N}$ 为主, TN 平均质量分数为 74.3%, $\text{NH}_3\text{-N}$ 质量分数低、平均为 1.7%, 这与李文赞等^[10]、房孝铎等^[11]的结论一致. $\text{NO}_3\text{-N}$ 占 TN 的质量比例呈现出一定规律, 特别对于入库河流而言, 4 月最低(图 4), 随着雨季到来逐渐上升, 说明降雨所产生的地表径流、潜流较枯水季河道基流的 $\text{NO}_3\text{-N}$ 含量升高. 这与河滩及阶地大范围分布的村庄、果园、耕地等有关, 长期施肥或粪便、垃圾堆放可引起土壤表层或浅层 $\text{NO}_3\text{-N}$ 含量升高.

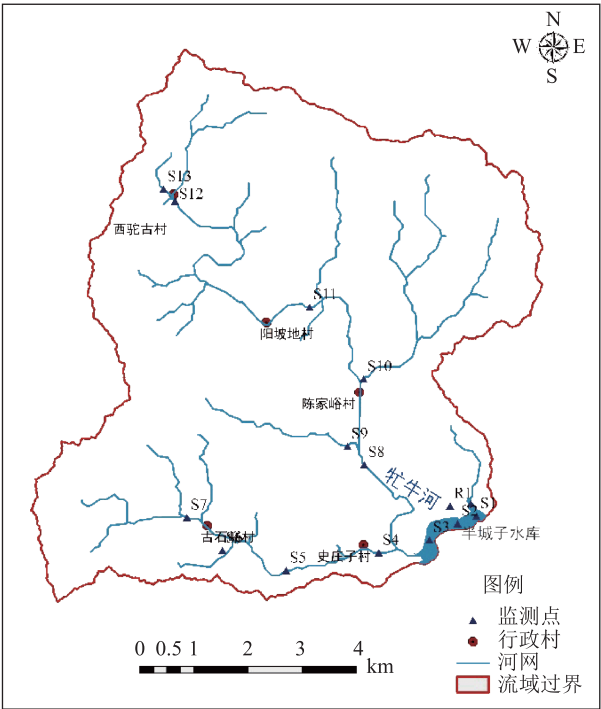
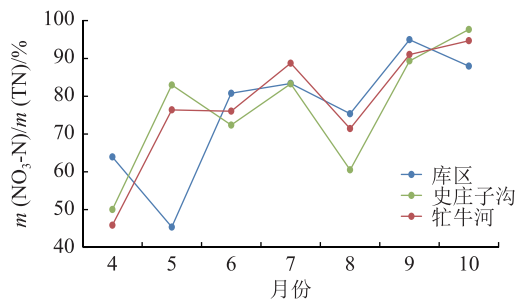


图 1 研究区监测点位分布

图4 $\text{NO}_3\text{-N}$ 占 TN 质量比的月份变化

2.1.2 洪水过程的氮变化 对2019年强降雨所产生的洪水进行了水样采集和检测。半城子水库流域于8月9—11日间发生强降雨,入库水量变化见图5,单日最大入库量 $256 \times 10^5 \text{ m}^3$ (8月10日)。由图6可以看出,洪水上漲期间2条入库河流 TN 质量浓度均上升,但洪水退水期间史庄子沟 $\rho_{\text{tot}}(\text{TN})$ 降低,而牯牛河仍继续上升、月末回落。2条河流 $\rho_{\text{tot}}(\text{TN})$ 呈现了不同变化规律,反映了2个子流域的污染源存在差异。经调查:史庄子沟子流域人类活动以生活和农业生产为主;而牯牛河子流域除了生活、农业以外,曾经是金矿分布区,尽管已停产废弃,但可能已对周围浅层地下土壤造成了污染,矿区 TN 质量浓度较高的淋溶水逐步补给回河道,随着潜流退去质量浓度才逐步回落,这可能是洪水退水期间 TN 质量浓度仍持续上升的主要原因。

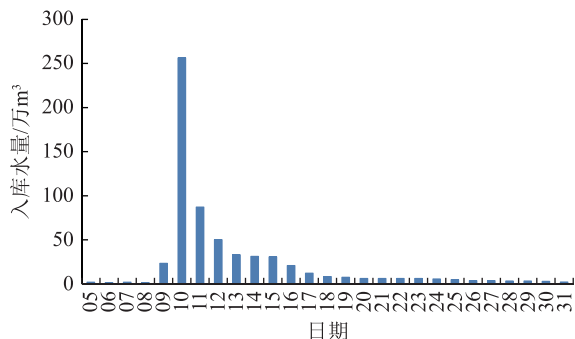


图5 8月份每天半城子水库入库水量变化

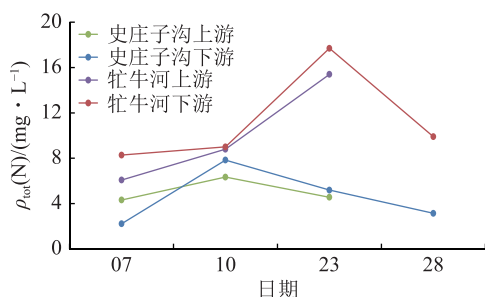
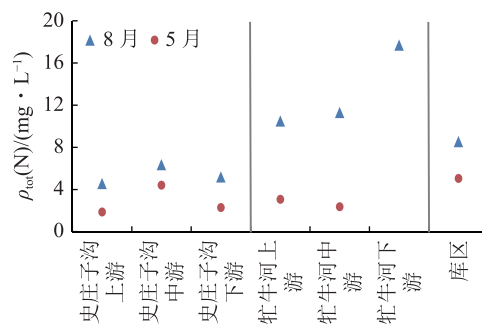


图6 8月份每天洪水入库河流 TN 质量浓度变化

监测数据显示,8月强降雨所产生的洪水占全年总入库水量的85%,且该洪水时期 TN 质量浓度较其

他时段明显升高(图2~3),估算洪水导致的入库 TN 质量浓度占到全年总质量浓度的90%及以上。由于7月底至8月初往往是北京地区的强降雨集中期,对于半城子水库而言,该时期场次强降雨所产生的洪水 TN 输入是流域 TN 控制的重点。

2.2 氮的空间变化 采用5和8月分别代表非汛期和汛期流域氮质量浓度的空间分布变化时间(图7)。非汛期库区 TN 质量浓度高于入库河流,汛期则介于2条河流质量浓度之间。汛期洪水是半城子水库的主要水源,5月的库区存水仍有一大部分来自于2018年度洪水,8月则以接纳本年度的汛期洪水为主,洪水期间 TN 质量浓度高于平常基流。因此:5月库区 TN 质量浓度略高于同时期的河流来水;8月受水库降解自净的调节,库区 TN 质量浓度低于河流(牯牛河)来水。



注:牯牛河下游5月断流,无数据。

图7 史庄子沟-牯牛河-库区 TN 质量浓度空间变化

对于入库的2条河流而言,非汛期 TN 质量浓度差异不大,基本 $< 4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$;汛期牯牛河 TN 质量浓度 ($8 \sim 18 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 上升幅度大,成倍超过史庄子沟质量浓度 ($4 \sim 7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$),在中下游尤为明显,这与废弃矿区集中分布区域(牯牛河中下游的支沟-西台子沟)在空间上是一致的。针对氮的污染源解析和削减控制,从空间上应将牯牛河子流域作为治理重点。

2.3 TN 来源与贡献评估

2.3.1 不同污染源 TN 质量浓度水平 选择流域内不同类型污染来源设立了监测点,主要包括雨水、生活污水和林草地、废弃矿区、果园等不同下垫面集水区的地表径流,汛期监测结果见表2。总体可见:雨水 TN 质量浓度为 $2 \sim 4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,经处理的农村污水 TN 质量浓度为 $11 \sim 16 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$;以林草地为主的集水区径流 TN 质量浓度基本为 $3 \sim 7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,增加了果树等农业活动的集水区 TN 质量浓度略有升高;废弃矿区的径流 TN 质量浓度较高,其所在集水区的洪水 TN 质量浓度 $> 18 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。密云区历史上有较多矿区,以铁矿为主、部分为金矿。我们对密云水库上游

的蛇鱼川流域也进行过监测,发现铁矿下游水体 TN 和 NO₃-N 质量浓度均较高. 矿区开采导致径流氮质量浓度升高的原因尚不清晰,目前也未见相关研究.

表 2 氮不同来源汛期径流浓度监测结果

序号 ¹⁾	类型	地点	集水区面积/km ²	特性	TN质量浓度/(mg · L ⁻¹)
R1	雨水	水库管理处	—	雨水	2~4
S7	史庄子沟流域径流	古石峪	8.6	林草地,河滩多果树	4~8
S6		史庄子小支沟	<1.0	林草地	3~7
S9		水泉村	4.7	林草地为主,少量果树	3~7
S13	牯牛河流域径流	西驼谷沟上游	1.4	林草地,河滩多果树	4~9
S10		西台子沟	10.9	林草地为主,有较集中的废弃金矿	18~25 ²⁾
—	生活污水	史庄子、陈家峪村	—	污水站退水	11~16

注: ¹⁾序号所代表站点位置见图1; ²⁾为洪水退水期间的监测结果.

2.3.2 流域 TN 来源贡献估算 将半城子水库流域(库区以上)水体 TN 来源分为点源和面源. 流域内无工业、无规模养殖场,点源主要来自于污水站退水、总流量 46 m³ · d⁻¹. 面源主要包括大气沉降、农业面源、村庄面源、林草本底源、矿区等,面源是本流域的 TN 来源主体.

点源根据实际流量与质量浓度计算负荷. 面源采用输出系数法计算各个来源的 TN 负荷和比例. 输出系数取值方法主要有 2 种,即实地监测和查阅文献. 已有研究往往根据文献来获取系数^[16-17],本文立足于实地监测数据来获取不同类型污染源的质量浓度范围. 对不同面状污染源根据其分布面积计算径流量、乘以监测所得质量浓度中值来计算污染负荷. 降雨通过与土壤、植被的混合及相关作用,释放营养物质进入地表径流,因此将降雨对氮的贡献从林草、果园等径流氮负荷中进一步分离. 根据北京山区养分流失模型^[18],计算当降雨 TN 平均质量浓度为 3 mg · L⁻¹ 时,北京北部山区随径流流失的氮中,降雨贡献约占 33%,下垫面(土壤和植被)贡献 67%.

由于“8 · 9”场次洪水是半城子水库流域 2019 年全年氮输入的主要来源,因此针对这场洪水分析氮不同来源的负荷及其贡献大小. 结果见表 3,按大小顺序排,依次是林草地、大气湿沉降(降雨)、废弃矿区、农业用地、村庄(点、面源),分别为 39.34%、25.35%、22.50%、11.38% 和 1.43%. 林草等自然植被控制全流域 85% 及以上面积,向径流中释放了数量可观的氮,负荷贡献最大;大气湿沉降(降雨)贡献比例占到约 1/4,也是一大氮源;农业面源和村庄面源总共贡献约 13% 的氮源比例,反映了在实施严格水源保护政策下的密云水库上游山区农业生产和农村生活对 TN 的影响相对有限;而废弃矿区对氮的贡献十分显著,比例超过 20%,且其影响逐渐进入浅层地下,是治理难度较大的污染源.

3 结论

以密云水库上游的半城子水库流域为对象,2019 年通过开展连续监测,明晰了流域内氮的时空变化特征,识别了 TN 来源及贡献比例,形成主要结

表 3 “8.9”洪水氮源解析

TN来源	TN质量浓度 ¹⁾ /(mg · L ⁻¹)	负荷/t	贡献比例/%	备注
林草地	5	14.92	39.34	
农用地(耕地、果园)	9	4.32	11.38	
废弃矿区	18	8.53	22.50	包括矿区及其周边影响范围
村庄面源	7	0.53	1.40	分散污水、垃圾等, TN浓度参考文献[19]
大气湿沉降(降雨)	3	9.62	25.35	
零散点源	14	0.01	0.03	污水站退水
合计		37.93	100.00	

注: ¹⁾根据监测结果取中值.

论如下:

1)汛期强降雨下的洪水是全年氮输入的主要载体,期间TN质量浓度较其他时段明显升高,其入库氮负荷超过全年总负荷的90%。流域TN控制的时段重点为每年汛期,特别是在7月底至8月初,需着重控制该时段强降雨下的洪水氮输入。

2)半城子水库库区及入库河流中的TN以 $\text{NO}_3\text{-N}$ 为主,质量占比平均74.3%,雨季较高。说明降雨所产生的地表径流和潜流较枯水季河道基流的 $\text{NO}_3\text{-N}$ 比例高,反映了受人类生产生活和自然因素的影响,流域表层和浅层土壤累积了较高质量浓度的 $\text{NO}_3\text{-N}$ 。

3)非汛期中,半城子水库2条入库河流,TN质量浓度相近,但汛期牯牛河TN质量浓度成倍超出史庄子沟TN质量浓度,在中下游尤为明显,这与废弃矿区分布有较大关系。流域TN控制在空间上牯牛河子流域是重点。

4)对流域重要场次洪水TN来源进行了解析,TN主要来自于林草地、大气湿沉降(降雨)、废弃矿区、农业用地和村庄(点、面源),其负荷贡献比例分别为39.34%、25.35%、22.50%、11.38%和1.43%。自然因素(林草覆盖和降雨)是TN主要来源,其次是人类生产和生活影响,其中矿区对TN负荷影响较大,贡献比例超过20%,应给予重视。

本文围绕半城子水库流域的氮进行了监测和分析,形成了源解析的初步结论,对诠释密云水库流域大范围氮的来源问题提供了一定支撑。研究还存在一些不足,有待后续进一步工作:受山区野外监测条件的限制,对洪水过程的捕捉和观测不足,影响到对氮质量浓度的高值及其时空变化的掌握;矿区对氮质量浓度增高的影响机制有待研究,有必要补充典型土地利用、地形和水土保持措施条件下的坡地径流小区养分流失监测,完善北京山区养分流失模型等相关流域面源污染模型,进一步提升流域氮源解析精度。

4 参考文献

- [1] HOLLAND E A, DENTENER F J, BRASWELL B H, et al. Contemporary and pre-industrial global reactive nitrogen budgets[J]. *Biogeochemistry*, 1999, 46(1/2/3): 7
- [2] VAN BREEMEN N. Natural organic tendency[J]. *Nature*, 2002, 415(6870): 381
- [3] World Resources Institute. Interactive map of eutrophication and hypoxia Accessed at [EB/OL]. (2011-03-01) [2020-01-12]. <http://www.wri.org/project/eutrophication/map>.
- [4] 王勇,代兴兰.德泽水库总磷、总氮变化规律及水资源保护措施[C].昆明:云南省水利学会2016年度学术年会,2016
- [5] 闵志华.丹江口水库总氮变化趋势分析及防治对策研究[J].*水力发电*, 2017, 43(11): 5
- [6] 汪万芬,王敏,刘昌利.六安市水库水质评价与总氮·总磷预测研究[J].*安徽农业科学*, 2009, 37(14): 6594
- [7] 王雪.浑江水库水质总氮超标原因分析与控制对策[J].*资源节约与环保*, 2014(10): 152
- [8] 栾芳芳.密云水库入库河道与库体营养盐趋势特征[J].*环境工程*, 2018(36): 231
- [9] 王鑫.密云水库氮、磷的时空分布特征及其变化分析[C]//中国水利学会.科技创新与水利改革:中国水利学会2014学术年会论文集.天津:河海大学出版社,2014: 210
- [10] 李文赞,李叙勇,王晓学.20年来密云水库主要入库河流总氮变化趋势和影响因素[J].*环境科学学报*, 2013, 33(11): 3047
- [11] 房孝铎,王晓燕,窦培谦.密云水库上游流域氮流失规律研究[J].*农业环境科学学报*, 2007, 26(3): 852
- [12] 李国光,赵兴华,沙健,等.面向行政区的总氮污染源解析:以新安江流域重点区县GWLF模型应用为例[J].*水资源与水工程学报*, 2014, 25(6): 118
- [13] 杜新忠,李叙勇,张汪寿,等.基于GWLF模型的流域总氮负荷模拟及污染源解析[J].*水资源与水工程学报*, 2014, 25(3): 19
- [14] 庞树江,王晓燕.流域尺度非点源总氮输出系数改进模型的应用[J].*农业工程学报*, 2017, 33(18): 213
- [15] 北京市密云区人民政府.北京市密云区人民政府关于印发密云区禁养区内畜禽规模养殖场整治工作实施方案的通知:密政发[2016]62号[A].密云:北京市密云区人民政府办公室,2016
- [16] 耿润哲,王晓燕,焦帅,等.密云水库流域非点源污染负荷估算及特征分析[J].*环境科学学报*, 2013, 33(5): 1484
- [17] 王焕晓,庞树江,王晓燕,等.小流域大气氮干湿沉降特征[J].*环境科学*, 2018, 39(12): 5365
- [18] 叶芝菡.北京山区养分流失机理与模拟[D].北京:北京师范大学,2005: 92-96
- [19] 李青云,田秀君,魏孜,等.北京典型村镇降雨径流污染及排放特征[J].*给水排水*, 2011, 47(7): 136

Concentration variations and sources of nitrogen in Banchengzi Reservoir watershed upstream of Miyun Reservoir

YE Zhihan[†] HUANG Bingbin CHANG Guoliang LI Zhuoling

(Beijing Water Science and Technologic Institute, 100048, Beijing, China)

Abstract The nitrogen concentration in Miyun Reservoir is increasing, threatening the water quality guarantee for Beijing. Here we investigate the nitrogen concentrations and sources of origin in Banchengzi Reservoir watershed, upstream of Miyun Reservoir. Nitrogen concentrations in flooding period were found to have increased markedly. Nitrogen load in the largest flood accounted for more than 90% of the whole year. During flooding periods, nitrogen concentrations in Mangniu River more than doubled that in Shizhuangzi River. Mangniu River was apparently the key catchment to control nitrogen output. Nitrate was found to be the major state of nitrogen, at an average percent of 74.3%, higher in rainfall seasons. Non-point sources were found to be the major source of nitrogen. At Banchengzi Reservoir watershed, natural factors including forests and rainfall were the major sources of nitrogen, the total percentage being >60%. The effect of human activities was less prominent, but mining was an important source of nitrogen increase. This work identified the major sources of nitrogen, and will be helpful for watershed management at Miyun Reservoir.

Keywords Banchengzi Reservoir; nitrogen; source analysis

【责任编辑:刘先勤】