



文章栏目: 水污染防治

DOI 10.12030/j.cjee.201912021

中图分类号 X502

文献标识码 A

裴佳瑶, 冯民权. 环境因子对雁鸣湖沉积物氮磷释放的影响[J]. 环境工程学报, 2020, 14(12): 3447-3459.

PEI Jiayao, FENG Minquan. Effects of environmental factors on the release of nitrogen and phosphorus from the sediment of the Yanming Lake, China[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2020, 14(12): 3447-3459.

环境因子对雁鸣湖沉积物氮磷释放的影响

裴佳瑶, 冯民权*

西安理工大学, 省部共建西北旱区生态水利国家重点实验室, 西安 710048

第一作者: 裴佳瑶(1994—), 女, 硕士研究生。研究方向: 底泥营养盐释放。E-mail: 447896358@qq.com

*通信作者: 冯民权(1964—), 男, 博士, 教授。研究方向: 环境模拟与污染物治理。E-mail: mqfeng@xaut.edu.cn

摘要 为探明环境因子对雁鸣湖沉积物-上覆水界面间氮磷释放的影响, 通过单因子实验和响应面实验分析了温度、溶解氧及 pH 对氮磷释放通量的影响。单因子实验结果表明: 雁鸣湖沉积物-上覆水界面间氮磷通量随着温度的升高而增加; 随溶解氧浓度的升高而减小; 当 pH 为中性时, 氮磷通量最小, 氮通量在 pH=5 时达到最大值, 磷通量在 pH=9 时达到最大值。BBD 模型拟合结果显示, 各环境因子与氮磷通量间拟合关系均为二次多项式。响应面实验结果表明: 温度和 pH 交互作用对 TN 通量影响显著; 温度和溶解氧交互作用对 TP 通量影响显著; 温度和溶解氧交互作用、温度和 pH 交互作用对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 通量影响均为显著; 温度和溶解氧交互作用对 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 通量影响极显著; 雁鸣湖底泥释放的最不利条件为 $T=10\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $\text{DO}=7.87\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{pH}=7.13$, 此时的 TN 交换通量为 $3.956\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, TP 交换通量为 $0.471\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 交换通量为 $1.469\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 交换通量为 $0.146\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ 。以上研究结果可为雁鸣湖富营养化防治提供参考。

关键词 环境因子; 沉积物-上覆水界面; 氮磷通量; 单因子实验; 响应面实验

湖泊是一种生物与环境、生物与生物之间相互依存与制约的复杂系统。一般情况下, 这个系统是处于相对平衡的状态, 过于频繁的人类活动会打破原本的平衡状态。2018 年中华人民共和国生态环境部发布的关于湖库富营养化现状调查结果^[1]显示, 在所有被调查的湖库中, 中营养占比为 61.7%, 中营养以上占比为 29%, 仅有 9.3% 营养化程度为贫营养。底泥是湖泊水体重要的营养源, 在湖泊自净能力范围内, 沉积物表现为营养物的“源”, 超过其承载力时则表现为“汇”。由于浅水湖泊具有环境比较封闭、流动性差、水深较浅、易污染等特点, 所以外界环境极易对湖泊水环境造成干扰, 使得沉积物中的污染物释放到水体中形成二次污染。

氮磷过量输入是导致湖泊富营养化的直接原因, 进入湖泊水体的氮磷来源于 2 个方面: 一是外源的直接输入; 另一重要来源则是底泥向上覆水的内源释放。近年来, 国内外学者在对非洲的东非湖^[2]、美国的太浩湖^[3]、中国的乌梁素海^[4]和太湖梅梁湾^[5]等研究中, 也证实了底泥污染物质对水质有较大的影响, 因此, 对因底泥营养盐释放引起水体二次污染的问题进行了极大的关注, 并展开了一系列的相关研究。这些研究主要包括沉积物中污染物含量及分布^[6]、污染程度评价^[7]、底泥的释放机理^[8]等。掌握污染物在沉积物-上覆水间的迁移对内源污染防治至关重要, 迁移作用

收稿日期: 2019-12-03; 录用日期: 2020-03-01

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51679191); 陕西省自然科学基金基础研究计划重点项目(2019JZ-42)

主要包括扩散、吸附-解吸、矿化、溶解和分解等。在这些过程中, pH^[9]、溶解氧^[10]、温度^[11]、盐度^[12]、微生物或藻类^[13]、扰动(包括物理和生物扰动)^[14]等因素会影响沉积物-上覆水间物质的交换。目前, 关于此方面的研究多是从单因素角度定性地对环境因子和污染物释放间的关系进行分析^[15-16]。张强等^[17]在研究中发现, 高扰动强度增加了TN和COD的释放通量, 缩短了TP的吸附-解吸平衡时间, 而对氨氮的影响较小。实际上各因子是协同作用的, 也有部分学者通过设计正交实验, 揭示了多因子共同作用下底泥的释放规律。张茜^[18]通过正交实验得出温度、pH、溶解氧对总氮和总磷释放速率有着显著的差异, 沉积物中总氮和总磷的释放与环境因子间的显著性排序为pH>温度>溶解氧。张硕等^[19]研究发现, 温度和溶解氧交互作用对正磷酸盐交换通量影响显著, 对氨氮和硝氮交换通量无显著影响。但正交实验也存在一定的局限性, 其分析的是离散型数据, 所求得的因素最佳组合只能局限在所设计的工况中, 但在现实情况中, 各因子的变化是连续的, 离散型数据会降低所得结果的精度。

雁鸣湖2#湖(图1)位于西安市, 属于浅水人工湖, 从浐河引水, 属于河道外湖泊。湖西面为黄土源, 雨季时雨水夹带着塬上的污染物会流入2#湖, 加上受污染的浐河水体会直接进入2#湖, 这些因素都会导致湖泊水环境受到污染。在进行本研究前, 监测发现, 2#湖底泥和水质已经受到一定程度的污染, 底泥颜色呈现深褐色至黑色, 并散发有难闻气味, 水体中TN、TP已经远超过国际上规定的富营养化发生的阈值^[20](TN为0.2 mg·L⁻¹, TP为0.025 mg·L⁻¹)。针对雁鸣湖内源污染的研究很少, 然而污染现状已不容忽视。本研究以雁鸣湖为研究对象, 在单因子实验的基础上, 结合响应面法, 分别考察了温度、溶解氧、pH对沉积物-上覆水界面氮磷释放规律的影响, 此实验方法规避了正交实验工况离散、回归精度较低等不足, 分析了单因子作用及交互作用对界面氮磷释放的影响, 并通过建立回归模型量化反映环境因子与释放量间的对应关系, 研究结果对雁鸣湖富营养化防治具有一定的参考价值。

1 材料与方法

1.1 底泥来源与实验设计

于2019年秋季进行样品采集, 实验所用底泥采自西安市雁鸣湖2#湖中心, 具体位置见图1。底泥通过抓斗式采样器获得, 上覆水通过有机玻璃采样器获得。将采集的上覆水装入水桶, 底泥装进自封袋迅速带回实验室备用。

在实验室将采回来的泥样平铺于有机玻璃柱底部, 将上覆水缓缓加入底泥上部进行实验, 培养装置如图2所示。选取的环境因子有温度、溶解氧、pH(X_1 、 X_2 、 X_3)。上覆水温度的调节通过恒温培养箱控制; 溶解氧的调节通过向水中充氮气或氧气实现; pH的调节通过向原水中加盐酸或氢氧化钠来调控。

在单因子实验中, 环境因子水平值的设置参考湖泊历史实测值。每个因子设置5个水平值: 温度分别为5、10、17.5、25、30℃; 溶

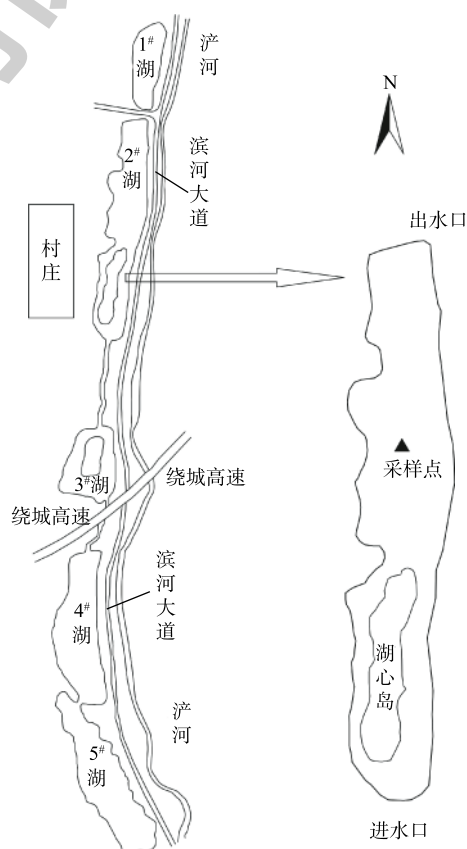


图1 采样点位置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of sampling point location

解氧分别为 3、4.5、6、7.5、9 mg·L⁻¹；pH 分别为 5、6、7、8、9，共 15 个培养柱。每隔 12 h 取一次上覆水，检测其中 TN、TP、NH₄⁺-N、PO₄³⁻-P 的含量，每个指标测定 3 个平行样，整个实验周期共持续 7 d。每次取完水样补充相同体积的上覆水。

响应面实验根据 Box-Behnken 模型设计要求设有 17 个培养柱，为估计实验误差，其中有 5 组中心点重复实验。所测营养盐种类同单因子实验，每个指标测定 3 个平行样。因子水平数的设置根据单因子的设置及 Box-Behnken 模型设计要求决定，最终设置的变量水平及对应编码如表 1 所示。

1.2 分析及计算方法

上覆水中 TN、TP、NH₄⁺-N、PO₄³⁻-P，参照文献中的方法^[21]测定，温度、pH、溶解氧用便携式多参数测定仪测定。

本研究采用实验室培养法进行交换通量的估算，具体计算方法^[22]如式(1)所示。

$$F = M_t A^{-1} t^{-1} \quad (1)$$

式中： F 为交换通量，mg·(m²·h)⁻¹， $F > 0$ 表示污染物从沉积物向上覆水扩散，否则，从上覆水向沉积物扩散； A 为沉积物与水界面营养盐交换面积，m²； t 为培养时间，h； M_t 为 t 时间段内营养盐的质量变化量，mg，计算方法如式(2)所示。

$$M_t = V(C_t - D_{t-1}) \quad (2)$$

式中： V 为培养柱中上覆水的总体积，L； C_t 为 t 时刻测得的上覆水中营养盐浓度，mg·L⁻¹； D_{t-1} 为 $t-1$ 时刻上覆水中实际的营养盐浓度，mg·L⁻¹，计算方法如式(3)所示。

$$D_{t-1} = \frac{(V - V_0)C_{t-1} + V_0 C_0}{V} \quad (3)$$

式中： V_0 为每次所取的上覆水体积，L； C_0 和 C_{t-1} 分别为原始时刻和 $t-1$ 时刻上覆水中营养盐的浓度，mg·L⁻¹。

2 结果与讨论

2.1 单因子实验结果

图 3 为氮磷通量随温度变化的趋势。氨氮和总氮、正磷酸盐和总磷表现出一致性的变化规律，通量均随温度增加呈现明显的上升趋势。30 ℃ 下的氨氮和总氮通量分别为 5 ℃ 时的 1.8 倍和 2.2 倍。一方面是由于温度较高时微生物活性有所增强，直接加速有机氮的矿化作用^[23]；另一方面是由于微生物代谢和运动强度的增加，会消耗环境中氧气，使沉积物-上覆水界面处于厌氧环境，从而增强反硝化作用，进而加速界面间氮扩散。由图 3 可知，温度为 5 ℃ 时的磷通量最小，正磷酸盐和总磷通量仅为 0.166 mg·(m²·h)⁻¹ 和 0.315 mg·(m²·h)⁻¹，随着温度逐渐升高，磷通量也逐渐增大，在 30 ℃ 时正磷酸盐、总磷通量分别增加至 0.243 mg·(m²·h)⁻¹ 和 0.566 mg·(m²·h)⁻¹。这是因为升温会增加体系中离子的活性，促进离子交换反应的进行，加快磷酸盐的溶解及扩散作用；同时由

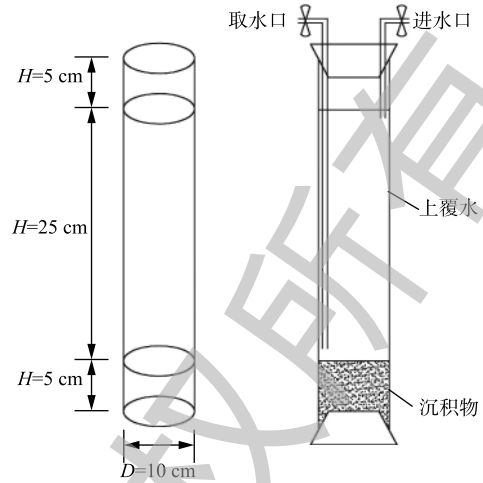


图 2 培养装置示意图

Fig. 2 Schematic of the culture device

表 1 响应面实验的因子与水平编码

Table 1 Factors and level codes for response surface tests

编码	环境因子	水平		
		-1	0	1
X_1	温度/℃	5	17.5	30
X_2	溶解氧/(mg·L ⁻¹)	3	6	9
X_3	pH	5	7	9

于生物活动增强导致界面间耗氧增强, 厌氧条件加速了 Fe^{3+} 还原成 Fe^{2+} 、 Mn^{4+} 还原成 Mn^{2+} 的速率^[24], 使铁锰结合态磷得到释放。

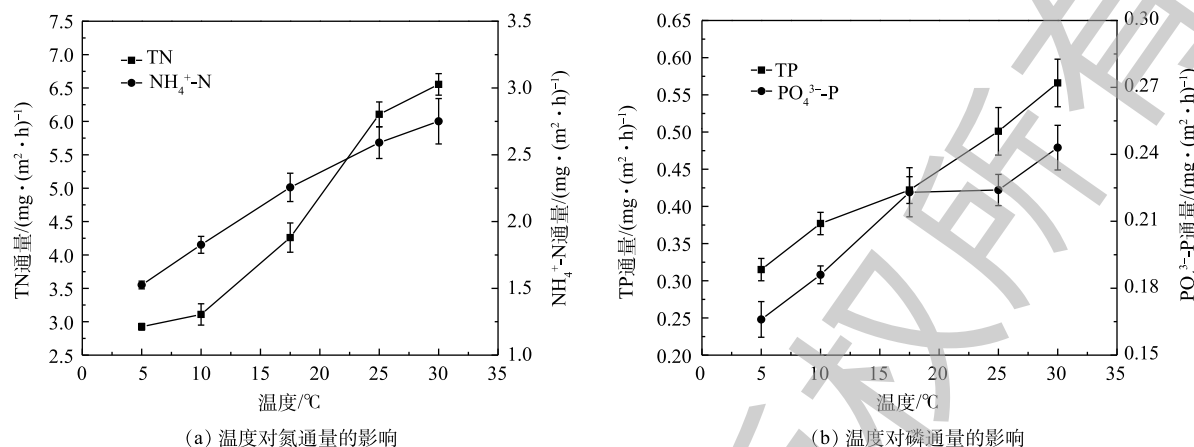


图3 温度对营养盐通量的影响

Fig. 3 Effect of temperature on nutrient flux

在不同溶解氧浓度的条件下, 底泥的氮磷释放规律呈现一定的差异性。图4为氮磷通量随溶解氧浓度的变化趋势。氨氮通量为 $2.102 \sim 3.109 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$, 总氮通量为 $3.342 \sim 5.942 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$, 即溶解氧从最高水平 ($9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 减小到最低水平 ($3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 时, 氨氮和总氮通量分别增加了1.5倍和1.8倍, 在厌氧条件下的氮通量显著有所增加, 低溶解氧水平下会促进底泥中有机氮的矿化^[25], 同时反硝化作用剧烈, 无机氮主要以氨氮的形式释放, 使得氮通量有明显的增加。对于磷的释放, 在高溶解氧 ($9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 水平下, 正磷酸盐通量为实验范围内最小, 为 $0.183 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$; 而在厌氧条件下 ($3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 其通量达到 $0.333 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$, 为好氧条件下的1.8倍, 总磷通量也由好氧条件下的 $0.456 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ 增加到 $0.566 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ 。这是因为厌氧条件促使 Fe^{3+} 还原成 Fe^{2+} , 使得原本被氢氧化铁胶体吸附的磷释放出来; 而在高溶解氧条件下, 体系处于氧化状态, Fe^{2+} 会被氧化成 Fe^{3+} , 形成的氢氧化铁胶体会吸附部分磷沉积在底部^[26]; 同时, Fe^{3+} 也会直接与部分磷酸盐结合成沉淀吸附在沉积物表层, 从而降低磷的交换通量。

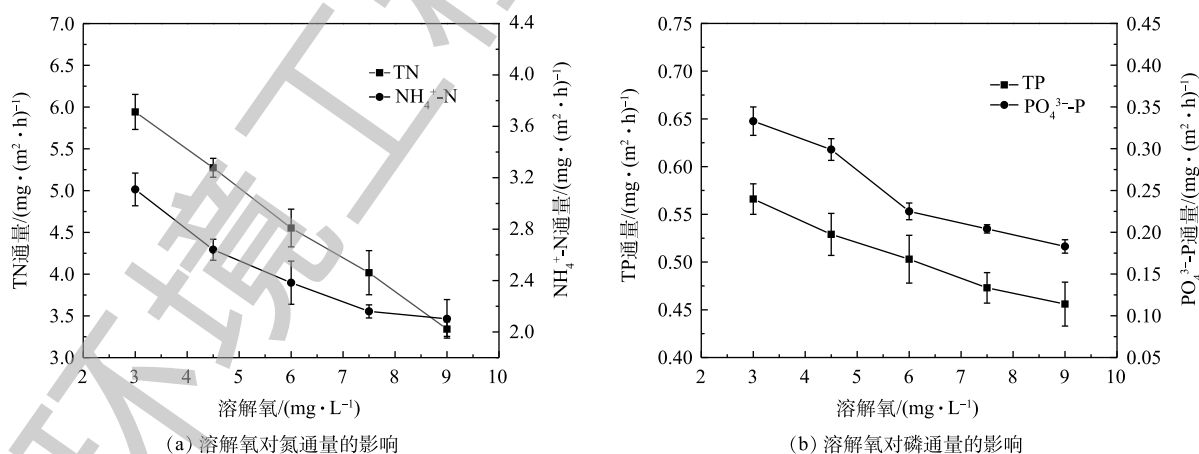


图4 溶解氧对营养盐通量的影响

Fig. 4 Effect of dissolved oxygen on nutrient flux

pH对沉积物中氮磷释放的影响如图5所示。可以看出, 在偏酸或碱性条件下的氮通量显著大于中性条件下。在 $\text{pH}=7$ 时, 氨氮和总氮通量最低; 在 $\text{pH}=5$ 时, 氨氮和总氮通量达到最大值, 均

为最小值的 1.3 倍。在酸性条件下，存在较多 H^+ ，会和体系中 NH_4^+ 竞争吸附在胶体上^[27]，pH 越低，竞争作用越强，氮释放越强；在碱性条件下，上覆水中存在的 OH^- 会和 NH_4^+ 反应生成气态 NH_3 ，其可从上覆水中逸出，上覆水中氨氮减少，使得两相间浓度差变大，促进了底泥中氮向上覆水的释放。pH 对底泥磷的影响主要通过吸附-解吸和离子交换 2 种作用得以实现。由图 5 可知：在中性条件下，正磷酸盐通量最小，在 pH=9 时达到最大，为中性条件下的 1.4 倍；随着 pH 增加，总磷通量也由最小值 $0.490 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ (pH=7 时) 增加到最大值 $0.536 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{h})^{-1}$ (pH=9 时)。在碱性条件下，磷释放主要以离子交换为主^[28]，体系中 OH^- 会与磷酸根发生离子交换，碱性愈强，交换作用愈强，导致磷通量增加；在酸性条件下，难溶性磷酸盐及吸附了磷的氢氧化物胶体会溶解，使磷脱离底泥进入上覆水，酸性愈强趋势越明显，磷通量越大；而在 pH=7 时，磷酸盐主要以 HPO_4^{2-} 及 $H_2PO_4^-$ 的形式存在，此时离子易与体系中的金属离子结合被底泥吸附，使得底泥中的磷不容易释放。

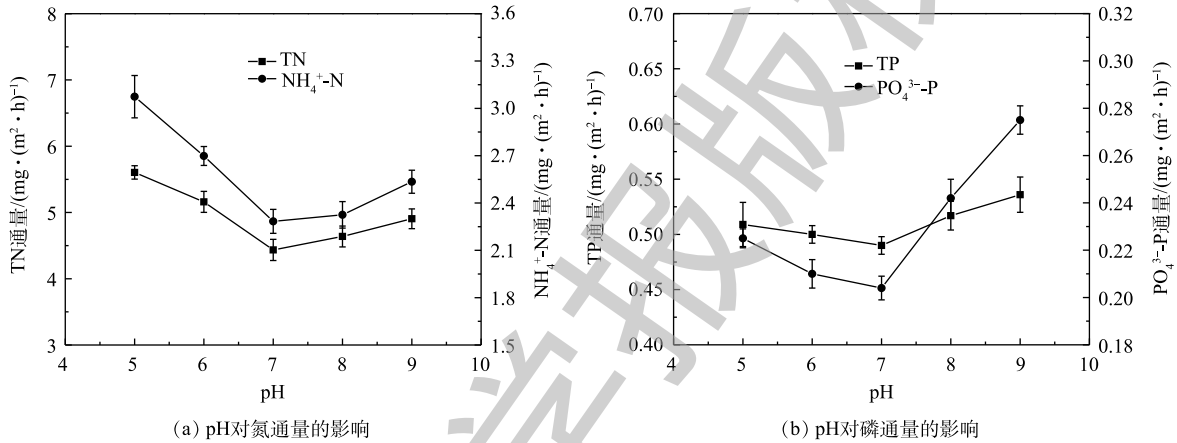


图 5 pH 对营养盐通量的影响

Fig. 5 Effect of pH on nutrient flux

2.2 多因子实验结果

1) BBD 设计方案及测定结果。根据 Box-Behnken 模型设计要求，以温度、溶解氧、pH 为自变量，以各营养盐交换通量为响应值进行实验设计。设有 3 组平行样，实测结果如表 2 所示，实验工况设计及通量平均值如表 3 所示。

2) 模型的建立和方差分析。利用 BBD 模型，对表 3 中的结果进行数据回归拟合，温度 (X_1)、溶解氧 (X_2)、pH (X_3) 与 TN 通量 (F_{TN})、TP 通量 (F_{TP})、 NH_4^+-N 通量 ($F_{NH_4^+-N}$)、 PO_4^{3--P} 通量 ($F_{PO_4^{3--P}}$) 4 个响应值的二次多项式回归模型分别如式 (4)~式 (7) 所示。

$$F_{TN} = 36.966 - 0.455X_1 - 1.847X_2 - 6.353X_3 + 0.0149X_1X_2 + 0.0244X_1X_3 + 0.0126X_2X_3 + 0.007X_1^2 + 0.0925X_2^2 + 0.419X_3^2 \quad (4)$$

$$F_{TP} = 2.252 - 0.015X_1 - 0.146X_2 - 0.337X_3 + 0.00103X_1X_2 + 0.000125X_1X_3 - 0.00226X_2X_3 + 0.000329X_1^2 + 0.0106X_2^2 + 0.025X_3^2 \quad (5)$$

$$F_{NH_4^+-N} = 14.594 - 0.168X_1 - 0.722X_2 - 2.573X_3 + 0.00596X_1X_2 + 0.00853X_1X_3 + 0.00595X_2X_3 + 0.00263X_1^2 + 0.0363X_2^2 + 0.170X_3^2 \quad (6)$$

$$F_{PO_4^{3--P}} = 0.739 + (-5.13X_1 - 45.9X_2 - 114X_3 + 0.34X_1X_2 + 0.07X_1X_3 - 0.5X_2X_3 + 0.104X_1^2 + 3.17X_2^2 + 8.25X_3^2) \times 10^{-3} \quad (7)$$

对 4 个模型方程分别进行了方差分析和显著性分析，结果如表 4 所示。4 个模型的 P 值均 < 0.01 ，说明显著性高，失拟项也均大于 0.5，即所得方程和实际拟合中非正常误差所占比例小，这说明所

表2 BBD实验实测值
Table 2 Experimental results of BBD

实验组号	TN通量/(mg·(m ² ·h) ⁻¹)			TP通量/(mg·(m ² ·h) ⁻¹)			NH ₄ ⁺ -N通量/(mg·(m ² ·h) ⁻¹)			PO ₄ ³⁻ -P通量/(mg·(m ² ·h) ⁻¹)		
	平行样1	平行样2	平行样3	平行样1	平行样2	平行样3	平行样1	平行样2	平行样3	平行样1	平行样2	平行样3
1	8.445	7.754	8.559	0.756	0.764	0.673	3.375	3.115	2.974	0.236	0.234	0.217
2	5.012	5.689	5.541	0.623	0.645	0.651	2.045	1.997	2.289	0.186	0.215	0.195
3	7.415	7.525	7.894	0.574	0.701	0.681	2.852	2.682	2.962	0.203	0.211	0.225
4	7.551	7.045	7.541	0.676	0.678	0.636	2.942	2.964	2.675	0.195	0.221	0.215
5	4.604	5.197	4.141	0.468	0.451	0.431	1.589	1.576	1.786	0.137	0.151	0.139
6	5.212	4.634	4.791	0.473	0.475	0.504	1.841	1.846	1.619	0.149	0.142	0.155
7	8.111	8.697	8.119	0.664	0.727	0.671	3.047	3.202	3.105	0.229	0.221	0.197
8	5.789	5.865	6.436	0.612	0.627	0.589	2.412	2.276	2.248	0.197	0.189	0.190
9	4.789	5.327	5.214	0.523	0.554	0.475	1.825	2.241	1.965	0.161	0.169	0.151
10	5.589	6.549	6.989	0.678	0.697	0.679	2.758	2.388	2.587	0.216	0.197	0.214
11	4.707	4.784	4.314	0.467	0.504	0.441	1.772	1.590	1.810	0.142	0.145	0.162
12	6.417	6.124	5.585	0.650	0.617	0.563	2.357	2.412	2.057	0.178	0.192	0.196
13	4.321	4.012	4.338	0.463	0.525	0.518	1.669	1.559	1.496	0.166	0.145	0.154
14	8.807	7.981	8.913	0.711	0.789	0.765	3.321	3.197	3.124	0.224	0.245	0.232
15	3.974	3.954	3.515	0.524	0.503	0.531	1.416	1.482	1.329	0.171	0.160	0.146
16	7.258	7.569	7.841	0.607	0.547	0.643	2.791	2.760	3.060	0.196	0.174	0.200
17	7.305	7.394	7.211	0.678	0.697	0.611	2.804	2.649	2.717	0.196	0.221	0.213

表3 BBD实验设计及通量平均值
Table 3 BBD experiment design and average flux

实验组号	环境因子			TN通量/ (mg·(m ² ·h) ⁻¹)	TP通量/ (mg·(m ² ·h) ⁻¹)	NH ₄ ⁺ -N通量/ (mg·(m ² ·h) ⁻¹)	PO ₄ ³⁻ -P通量/ (mg·(m ² ·h) ⁻¹)
	温度/°C	溶解氧/(mg·L ⁻¹)	pH				
1	17.5	3	5	8.253	0.731	3.155	0.229
2	17.5	9	5	5.414	0.640	2.110	0.199
3	30	3	7	7.611	0.691	2.832	0.213
4	30	6	5	7.379	0.663	2.860	0.210
5	17.5	6	7	4.373	0.450	1.650	0.142
6	17.5	6	7	4.879	0.484	1.769	0.149
7	30	6	9	8.309	0.687	3.118	0.216
8	17.5	9	9	6.030	0.609	2.312	0.192
9	17.5	6	7	5.110	0.517	1.895	0.160
10	30	9	7	6.769	0.685	2.578	0.209
11	17.5	6	7	4.602	0.471	1.724	0.150
12	5	6	9	6.042	0.610	2.275	0.189
13	5	9	7	4.224	0.502	1.575	0.155
14	17.5	3	9	8.567	0.755	3.214	0.234
15	17.5	6	7	3.814	0.519	1.409	0.159
16	5	6	5	7.556	0.599	2.870	0.190
17	5	3	7	7.303	0.662	2.723	0.210

表 4 底泥释放通量回归方程方差分析

Table 4 Analysis of variance for regression equation of the release flux from sediment

方差来源	TN通量回归分析				TP通量回归分析				NH ₄ ⁺ -N通量回归分析				PO ₄ ³⁻ -P通量回归分析			
	df	F	P>F	显著性	df	F	P>F	显著性	df	F	P>F	显著性	df	F	P>F	显著性
模型	9	18.45	0.000 4	**	9	22.26	0.000 2	**	9	20.02	0.000 3	**	9	41.79	<0.000 1	**
X ₁	1	13.19	0.008 4	**	1	21.68	0.002 3	**	1	14.95	0.006 2	**	1	35.61	0.000 6	**
X ₂	1	46.65	0.000 2	**	1	28.42	0.001 1	**	1	44.41	0.000 3	**	1	56.5	0.000 1	**
X ₃	1	0.065	0.806 7		1	0.14	0.717 1		1	0.022	0.885 2		1	0.03	0.868 2	
X ₁ X ₂	1	5.4	0.053 1		1	8.33	0.023 4	*	1	6.32	0.040 2	*	1	17.13	0.004 4	**
X ₁ X ₃	1	6.45	0.038 7	*	1	0.054	0.822 5		1	5.76	0.047 5	*	1	0.32	0.587 8	
X ₂ X ₃	1	0.098	0.762 9		1	1.02	0.345 7		1	0.16	0.699 8		1	0.95	0.362 6	
X ₁ ²	1	21.53	0.002 4	**	1	15.41	0.005 7	**	1	22.46	0.002 1	**	1	29.29	0.001	**
X ₂ ²	1	12.61	0.009 3	**	1	53.2	0.000 2	**	1	14.26	0.006 9	**	1	90.08	<0.000 1	**
X ₃ ²	1	51.16	0.000 2	**	1	58.57	0.000 1	**	1	61.8	0.000 1	**	1	120.78	<0.000 1	**
残差	7				7				7				7			
失拟项	3	0.83	0.541		3	0.55	0.672 9		3	0.94	0.500 1		3	0.23	0.868 4	
纯误差	4				4				4				4			
总值	16				16				16				16			
变异系数			0.077				0.044 4				0.075 4				0.032 7	
R ²			0.959 5				0.966 2				0.962 6				0.981 7	
R _{Adj} ²			0.907 5				0.922 8				0.914 5				0.958 2	

注：**表示 $P < 0.01$ 下差异显著；*表示 $P < 0.05$ 下差异显著；df表示自由度。

得模型可信度高，模拟精确。TN、TP、NH₄⁺-N及PO₄³⁻-P模型的变异系数分别为0.077、0.044 4、0.075 4、0.032 7，即数据离散程度较小，表明各方程拟合度好，模型回归性较好。4个模型的校正决定系数 R_{Adj}^2 分别为0.907 5、0.922 8、0.914 5、0.958 2，即4个模型分别能解释90.75%、92.28%、91.45%、95.82%各自响应值的变化，总变异度分别有9.25%、7.72%、8.55%、4.18%不能用模型解释；且 R_{Adj}^2 和 R^2 值接近。在此基础上，用回归方程进行模拟，图6为氮磷交换通量的实际值和预测值的对比，过原点的斜率为1的直线代表实际值和预测值完全吻合的情况^[29]。可以看出，部分点落在直线上，其余点基本均匀地分布在直线两侧且偏离较小，这进一步说明4个模型与实验结果吻合度较高。由此可知，所建立的4个模型稳定性较高，拟合度良好，能够用来分析各环境因子对底泥氮磷交换通量的影响效果。

由表4可知，单因子温度(X_1)和溶解氧(X_2)对各营养盐通量的影响显著($P < 0.01$)，pH(X_3)无显著影响。交互项 X_1X_2 对PO₄³⁻-P通量影响显著($P < 0.01$)，对TP和NH₄⁺-N通量影响显著($P < 0.05$)，对TN无显著影响； X_1X_3 对TN和NH₄⁺-N通量影响显著($P < 0.05$)，对TP和PO₄³⁻-P通量无显著影响； X_2X_3 对4种营养盐通量均无显著影响。模型 X_1^2 、 X_2^2 和 X_3^2 对各响应值的均有显著影响($P < 0.01$)，说明环境因子与响应值之间不是简单的线性关系，二次项对响应值有着较大的影响。从整体显著性来看，与TN和TP相比，环境因子对离子态的NH₄⁺-N及PO₄³⁻-P的交换通量影响作用更大。

3) 响应面交互作用分析。为直观反映温度、溶解氧、pH 3个环境因子及其交互作用对各营养盐交换通量的影响，利用回归方程建立对应的等值线和响应面图。一般来说，等高线越接近于椭

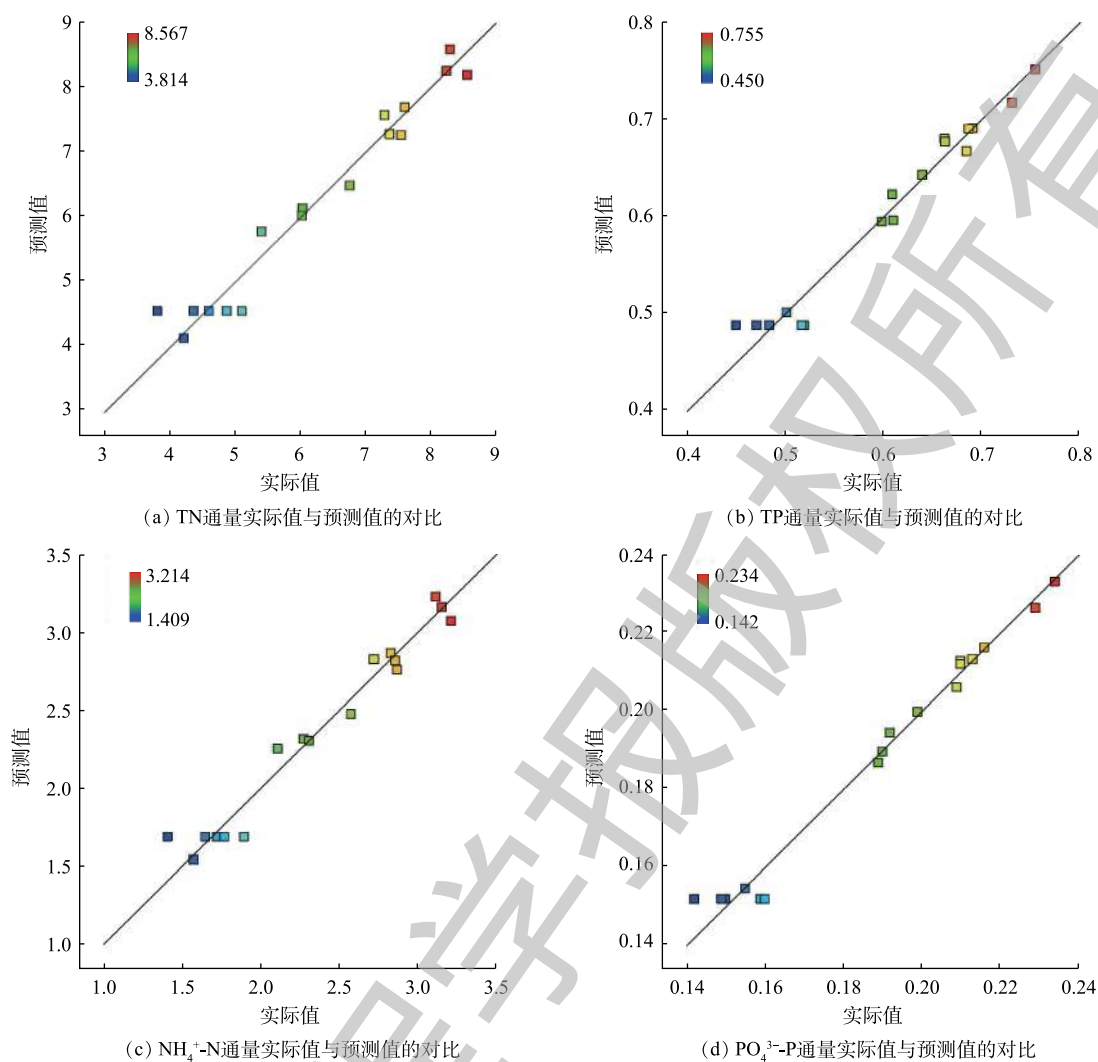


图6 营养盐通量实际值与预测值的对比

Fig. 6 Comparison of actual and predicted nutrient fluxes

圆状，响应面坡度越大，说明交互作用越明显^[30-31]。根据回归模型，本研究选取交互作用效果较好的等高线图和曲面图。

图7反映了温度和pH对TN通量交互作用的影响。可以看出，等高线图呈现明显的椭圆形状，且由图7(b)可以看出，最小响应值在曲面上，与沿着单一因子坐标轴走向的最小值不重合，表明温度和pH对TN通量有交互作用。图8为温度和溶解氧对TP通量交互作用的影响，等高线接近椭圆，响应面存在一定弯曲，表明温度和溶解氧交互作用对TP通量有一定的影响。由等高线图8(a)可知，沿溶解氧轴方向上的等高线比沿温度轴方向上的密集且陡峭，表明相对于温度，溶解氧对TP通量影响更为显著，这与方差分析结果一致(表4)。由图9可知，温度和溶解氧、温度和pH的交互作用均对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 通量的等高线呈椭圆，且响应面有一定坡度，表明温度和溶解氧交互作用、温度和pH交互作用均对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 通量影响显著。由图9(a)和图9(c)可知，在实验范围内，当温度一定时， $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 通量随pH变化波动很小，而随溶解氧变化很大，表明溶解氧对响应值的贡献更大，即溶解氧对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 通量的影响作用比pH更显著，这与方差分析结果一致。由图10可知，等高线及响应面形状表明了温度和溶解氧之间存在交互作用。由图10(a)可知，当溶解氧一定时， $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 通量随温度变化很小；当温度一定时， $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 通量却随溶解氧的增大而减小，这说明相比

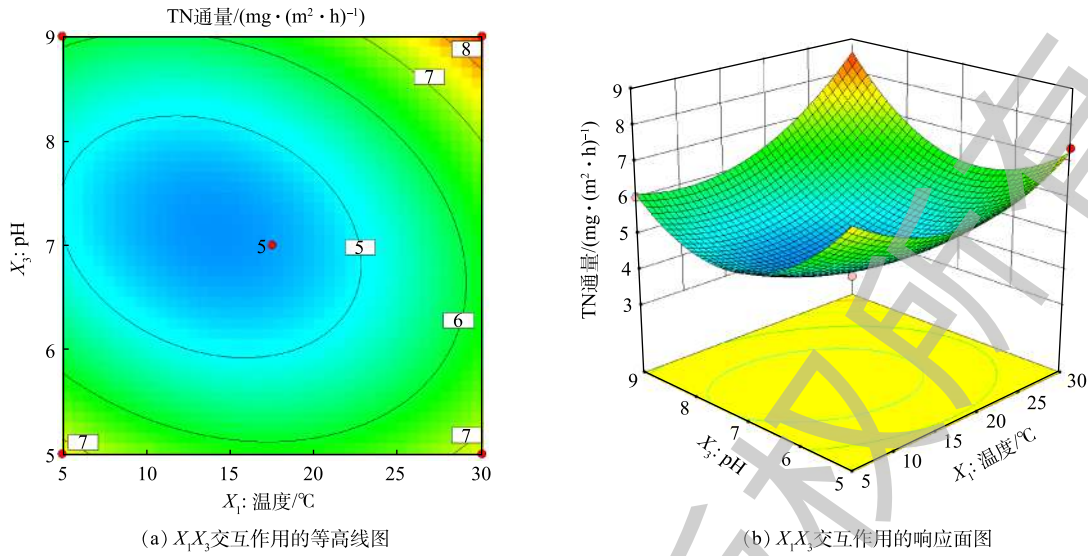


图 7 X_1, X_3 交互作用对 TN 通量的影响
Fig. 7 Effect of X_1, X_3 interaction on TN flux

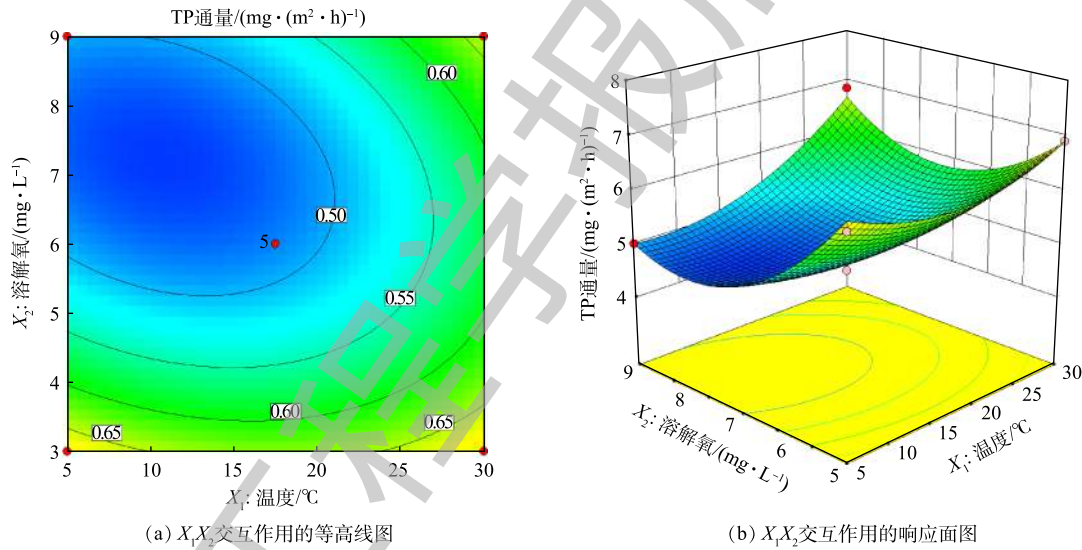
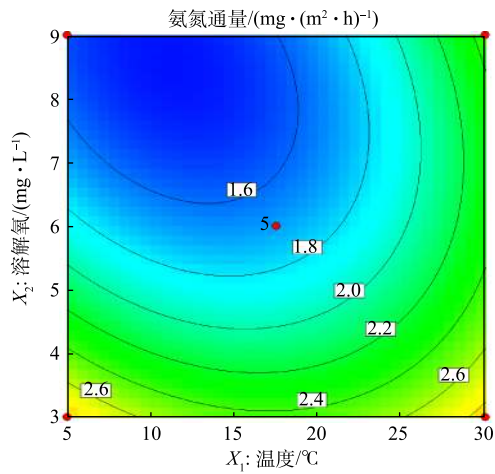


图 8 X_1, X_2 交互作用对 TP 通量的影响
Fig. 8 Effect of X_1, X_2 interaction on TP flux

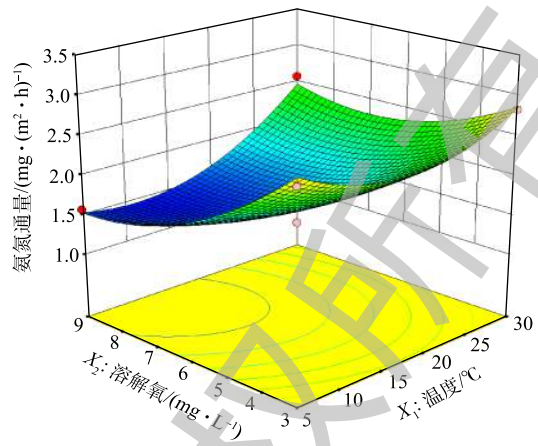
于温度，溶解氧对 $PO_4^{3-}-P$ 通量影响更显著。

4) 最不利释放条件的预测与结果验证。在对内源污染进行防控时，可通过对环境因子的控制使得底泥释放量较小，所以对雁鸣湖底泥最不利释放(即释放量最小)条件进行了预测。图 7~图 10 也显示响应面开口向上，即响应值有极小值。以响应面优化得到条件组合，通过响应面分析得出氮磷释放量最小时自变量的数值分别为 $X_1=10\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $X_2=7.87\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $X_3=7.13$ 。温度为 $10\text{ }^\circ\text{C}$ 、溶解氧为 $7.87\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、pH 为 7.13 时，各响应值取最小值，TN 交换通量为 $3.956\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ，TP 交换通量为 $0.471\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ， NH_4^+-N 交换通量为 $1.469\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ， $PO_4^{3-}-P$ 交换通量为 $0.146\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ 。

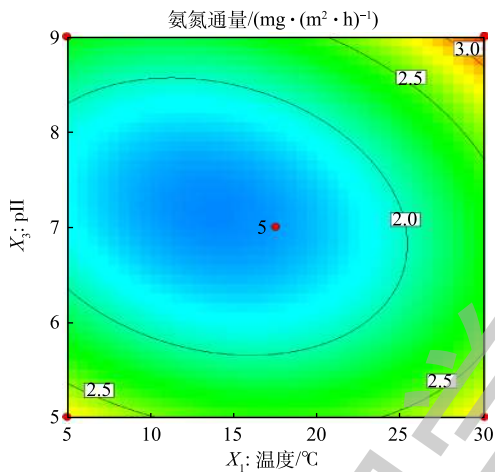
为了检验响应面法所得的实验结果，通过实验加以验证，结合实验情况将条件修正为： $X_1=10\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $X_2=8.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $X_3=7.0$ ，即在温度为 $10\text{ }^\circ\text{C}$ 、溶解氧为 $8.0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、pH 为 7.0 的条件下，进行了 3 次平行实验，实验结果如下：TN 交换通量为 $3.779\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ，TP 交换通量为 $0.488\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$ ，



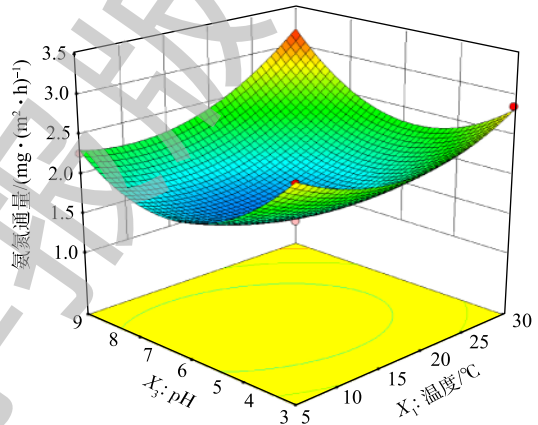
(a) X_1X_2 交互作用的等高线图



(b) X_1X_2 交互作用的响应面图



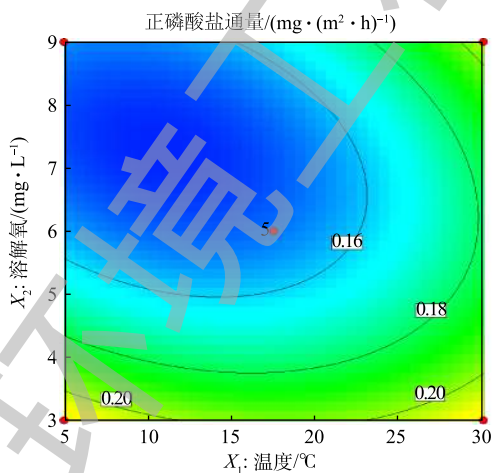
(c) X_1X_3 交互作用的等高线图



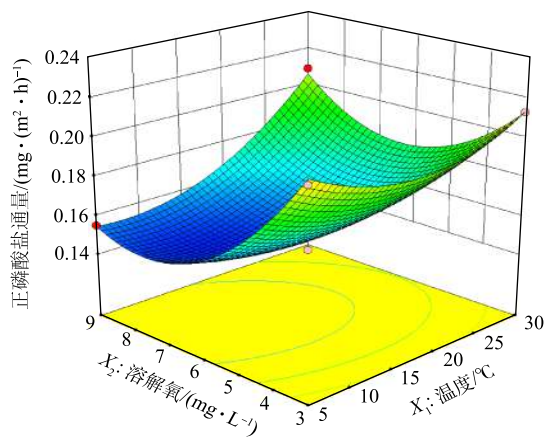
(d) X_1X_3 交互作用的响应面图

图9 X_1X_2 和 X_1X_3 交互作用对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 通量的影响

Fig. 9 Effect of X_1X_2 and X_1X_3 interactions on $\text{NH}_4^+\text{-N}$ flux



(a) X_1X_2 交互作用的等高线图



(b) X_1X_2 交互作用的响应面图

图10 X_1X_2 交互作用对 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 通量的影响

Fig. 10 Effect of X_1X_2 interaction on $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ flux

$\text{NH}_4^+\text{-N}$ 交换通量为 $1.409 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 交换通量为 $0.141 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, 与预测值很接近, 误差均在 5% 以内, 表明预测结果是可靠的, 进一步说明所得模型能较好地预测雁鸣湖界面间营养盐的交换通量。因此, 园区应注意对温度、溶解氧及 pH 进行控制, 以防止内源释放对雁鸣湖环境造成更严重的污染。

3 结论

1) 控制单因子变化条件下, 雁鸣湖沉积物-上覆水界面间氮磷通量随着温度的升高而增加, $30\text{ }^\circ\text{C}$ 时达到最大; 随溶解氧浓度的增加而减小, 在缺氧条件下 ($\text{DO}=3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$), 氮磷通量取得最大值; pH 为中性条件下最小, 氮通量在酸性条件下 ($\text{pH}=5$) 达到最大, 磷通量在碱性条件下 ($\text{pH}=9$) 达到最大。

2) 对环境因子与雁鸣湖沉积物-上覆水界面间营养盐通量的关系进行拟合, 结果表明 4 种营养盐通量与环境因子间均符合二次多项式回归模型。

3) 方差分析及响应面结果表明, 温度和 pH 交互作用对 TN 通量影响显著; 温度和溶解氧交互作用对 TP 通量影响显著; 温度和溶解氧交互作用、温度和 pH 交互作用对 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 通量影响显著; 温度和溶解氧交互作用对 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 通量影响极显著。

4) 响应面优化结果表明, 温度为 $10\text{ }^\circ\text{C}$ 、溶解氧为 $7.87 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、pH 为 7.13 是雁鸣湖底泥释放的最不利条件, 此时 TN 交换通量为 $3.956 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, TP 交换通量为 $0.471 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 交换通量为 $1.469 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 交换通量为 $0.146 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, 各响应值取最小值。

参 考 文 献

- [1] 中华人民共和国生态环境部. 2018中国生态环境状况公报[EB/OL]. [2019-12-01]. <http://www.mee.gov.cn/hjzl/sthjzk/zghjkzkgb>.
- [2] RUSSEL J M, HOPMANS E C, LOOMIS S E, et al. Distributions of 5- and 6-methyl branched glycerol dialkyl glycerol tetraethers (brGDGTs) in East African lake sediment: Effects of temperature, pH, and new lacustrine paleotemperature calibrations[J]. *Organic Geochemistry*, 2018, 117: 56-69.
- [3] BEUTEL M W, HORNE A J. Nutrient fluxes from profundal sediment of ultra-oligotrophic lake tahoe, california/nevada: Implications for water quality and management in a changing climate[J]. *Water Resources Research*, 2018, 54(3): 1549-1559.
- [4] 韩宝红, 宋蕾, 李浩, 等. 不同温度条件下稳定剂对沉积物中镉稳定化的影响[J]. *环境科学学报*, 2019, 39(8): 2610-2616.
- [5] 李鑫, 耿雪, 王洪伟, 等. 外源输入对底泥疏浚新生表层磷恢复及迁移的影响[J]. *环境科学*, 2019, 40(8): 3539-3579.
- [6] OKOGBUE C O, OYESANYA O U, ANYIAM O A, et al. Evaluation of the extent of pollution of discharged oil field brine in the Bonny estuary, Niger Delta, Nigeria[J]. *Environmental Earth Sciences*, 2018, 77(10): 382-396.
- [7] MAIERYEMU Y, MAMAT S, NIGELA T, et al. Distribution of heavy metal pollution and assessment of its potential ecological risks in Ugan-Kuqa River Delta of Xinjiang[J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2017, 33(20): 226-233.
- [8] 郭贇, 赵秀红, 黄晓峰, 等. 原位活性覆盖抑制河道底泥营养盐释放的效果研究及工程化应用[J]. *环境工程*, 2018, 36(6): 6-11.
- [9] 雷晓玲, 韩亚鑫, 冉兵, 等. 环境因子对三峡库区底泥污染物释放的影响研究[J]. *环境工程*, 2016, 34(1): 47-50.

- [10] KAISER D, UNGER D, QIU G, et al. Natural and human influences on nutrient transport through a small subtropical Chinese estuary[J]. *Science of the Total Environment*, 2013, 450-451: 92-107.
- [11] LIANG Z, LIU Z, ZHEN S, et al. Phosphorus speciation and effects of environmental factors on release of phosphorus from sediments obtained from Taihu Lake, Tien Lake, and East Lake[J]. *Toxicological & Environmental Chemistry Reviews*, 2015, 97(3/4): 335-348.
- [12] LI R F, FENG CH, WANG D X. Role of salinity in the multiphase redistribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sediment suspension[J]. *Environmental Earth Sciences*, 2016, 75(2): 116-122.
- [13] 张文斌, 董昭皆, 徐书童, 等. 微生物和藻类分解对荣成天鹅湖沉积物氮磷释放的影响[J]. *海洋环境科学*, 2019, 38(4): 561-567.
- [14] FERENCZ B, TOPOROWSKA M, JAROSLAW D, et al. Hydro-chemical conditions of shaping the water quality of shallow leczna-wlodawa lakes[J]. *Clean-Soil Air Water*, 2017, 45(5): 356-369.
- [15] DEVORE C L, RODRIGUEZ F L, MEHDI A, et al. Effect of bicarbonate and phosphate on arsenic release from mining-impacted sediments in the Cheyenne River watershed, South Dakota, USA[J]. *Environmental Science: Processes and Impacts*, 2019, 21(3): 456-468.
- [16] YAO C, HU X Z, LU S Y, et al. Repression of nitrogen and phosphorus release from lakeshore sediment by five littoral-zone plants[J]. *Environmental Science*, 2017, 38(2): 589-599.
- [17] 张强, 曹秀芹, 胡明, 等. 扰动对城市河道底泥污染物释放影响[J]. *环境工程*, 2019, 37(9): 40-44.
- [18] 张茜. 漳泽水库沉积物和上覆水污染特征及氮磷释放规律研究[D]. 西安: 西安理工大学, 2019.
- [19] 张硕, 方鑫, 黄宏, 等. 基于正交试验的沉积物-水界面营养盐交换通量研究: 以海州湾海洋牧场为例[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(11): 4266-4276.
- [20] 姜伟, 周川, 纪道斌, 等. 三峡库区澎溪河与磨刀溪电导率等水质特征与水华的关系比较[J]. *环境科学*, 2017, 38(6): 2326-2335.
- [21] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. 4版. 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [22] 王圣瑞. 湖泊沉积物-水界面过程: 基本理论与常用测定方法[M]. 北京: 科学出版社, 2014.
- [23] JEROEN J M, CISKA C O, CHRISTIAN J J, et al. Effect of temperature on oxygen profiles and denitrification rates in freshwater sediments[J]. *Wetlands*, 2017, 37(5): 975-983.
- [24] 张红, 陈敬安, 王敬富, 等. 贵州红枫湖底泥磷释放的模拟实验研究[J]. *地球与环境*, 2015, 43(2): 243-251.
- [25] BAREHA Y, GIRAULT R, JIMENEZ J, et al. Characterization and prediction of organic nitrogen biodegradability during anaerobic digestion: A bioaccessibility approach[J]. *Bioresource Technology*, 2018, 263: 425-436.
- [26] 郭念, 闫金龙, 魏世强, 等. 三峡库区消落带典型土壤厌氧呼吸对铁还原及磷释放的影响[J]. *水土保持学报*, 2014, 28(3): 271-276.
- [27] LI Z, WANG S R, WU Z H. Coupling effect of pH and dissolved oxygen in water column on nitrogen release at water-sediment interface of Erhai Lake, China[J]. *Estuarine Coastal and Shelf Science*, 2014, 149: 178-186.

- [28] 袁和忠, 沈吉, 刘恩峰, 等. 模拟水体pH控制条件下太湖梅梁湾沉积物中磷的释放特征[J]. 湖泊科学, 2015, 21(5): 663-668.
- [29] 王荣杰, 沈本贤, 刘纪昌, 等. 响应面分析法优化不溶性硫磺萃取提浓工艺[J]. 应用化工, 2018, 47(7): 1457-1461.
- [30] 闫晓涛, 李杰, 冯淑琪, 等. 响应面法优化混凝处理黄河兰州段低温低浊水[J]. 水资源与水工程学报, 2018, 29(6): 68-74.
- [31] 杜凤龄, 王刚, 徐敏, 等. 新型高分子螯合-絮凝剂制备条件的响应面法优化[J]. 中国环境科学, 2015, 35(4): 158-164.

(本文编辑: 曲娜, 郑晓梅, 张利田)

Effects of environmental factors on the release of nitrogen and phosphorus from the sediment of the Yanming Lake, China

PEI Jiayao, FENG Minquan*

State Key Laboratory of Eco-Hydraulic in Northwest Arid Region of China, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China

*Corresponding author, E-mail: mqfeng@xaut.edu.cn

Abstract To investigate the effect of environmental factors on the release of nitrogen and phosphorus between the sediment-overlying water interface of the Yanming Lake, the effects of temperature, dissolved oxygen and pH on the release flux of nitrogen and phosphorus were investigated by single factor test and response surface analysis. The results of single factor experiment showed that the nitrogen and phosphorus fluxes between the sediment-overlying water interface of the Yanming Lake increased with the increase of temperature, and decreased with the increase of dissolved oxygen concentration. At neutral pHs, the lowest nitrogen and phosphorus fluxes occurred. The nitrogen flux reached its maximum value at pH=5 and the phosphorus flux reached its maximum value at pH=9. The fitting results of the BBD model showed that the fitting relationships between environmental factors and the fluxes of nitrogen and phosphorus were quadratic polynomial equations. The results of response surface test showed that the interaction between temperature and pH had a significant effect on TN flux. The interaction between temperature and dissolved oxygen had a significant effect on TP flux. The interactions between temperature and dissolved oxygen, temperature and pH had a significant effect on $\text{NH}_4^+\text{-N}$ flux. The interaction between temperature and dissolved oxygen had a very significant effect on the flux of $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$; the most unfavorable conditions for the release from the Yanming Lake sediment were temperature of 10 °C, dissolved oxygen of $7.87 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, pH 7.13, at which the exchange flux of TN was $3.956 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, the exchange flux of TP was $0.471 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, and the exchange flux of $\text{NH}_4^+\text{-N}$ was $1.469 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$, the exchange flux of $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ was $0.146 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{h})^{-1}$. The research results can provide a reference for the eutrophication prevention of the Yanming Lake.

Keywords environmental factors; sediment-overlying water interface; nitrogen and phosphorus flux; single factor test; response surface test