

典型干湿交替型湖泊湖水-地下水系统氮素迁移转化影响因素及健康风险

王喜华¹, 刘泽军¹, 王寒梅², 贾顺卿¹, 毛博洋¹, 罗成明¹, 戴妍¹

(1. 同济大学土木工程学院, 上海 200092; 2. 上海市自然资源调查利用研究院, 上海 200040)

摘要:为探明干湿交替型湖泊湖水-地下水系统内氮素的迁移转化影响因素及其潜在的生态健康风险,以中国最大淡水湖鄱阳湖为研究对象,于 2022—2023 年采集鄱阳湖及周边地下水样品,采用 Pearson 相关性分析、结构方程模型、蒙特卡罗随机模拟、参数敏感性分析、同位素示踪方法,探究了环境因子对氮素浓度的影响程度及三氮健康风险。结果表明:硝态氮是研究区湖水和地下水中三氮的主要成分;pH 值、温度、电导率、氧化还原电位、溶解氧、总有机碳和水位差对三氮浓度影响明显,对总氮的影响效应分别为-0.28、-0.08、0.246、0.111、0.039、-0.118、-0.07;研究区湖水-地下水系统中成人和儿童的三氮健康风险达到不可接受水平的比例分别为 0.04%~5.23%、0.42%~16.79%;三氮浓度、暴露频率对健康风险评价结果具有较高的参数敏感性。

关键词:氮素;湖水-地下水交互作用;干湿交替型湖泊;迁移转化;健康风险;鄱阳湖

中图分类号:X524 **文献标志码:**A **文章编号:**1004-6933(2025)05-0296-12

Influencing factors of nitrogen migration and transformation and health risks in lake-groundwater system of a typical dry-wet alternating lake//WANG Xihua¹, LIU Zejun¹, WANG Hanmei², JIA Shunqing¹, MAO Boyang¹, LUO Chengming¹, DAI Yan¹(1. College of Civil Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China; 2. Shanghai Institute of Geological Survey, Shanghai 200040, China)

Abstract: To explore the influencing factors of nitrogen migration and transformation in lake-groundwater system of dry-wet alternating lakes and its potential ecological health risks, taking the Poyang Lake, the largest freshwater lake in China, as the research object, this study collected samples of Poyang Lake water and surrounding groundwater from 2022 to 2023 to explore the influencing degree of environmental factors on nitrogen concentrations and the health risks of three nitrogen species. The research methods employed included Pearson correlation analysis, structural equation modeling (SEM), Monte Carlo random simulation, parameter sensitivity analysis, and isotope tracing method. The results showed that: nitrate nitrogen was the dominant component of the three nitrogen species in both lake water and groundwater in the study area; environmental factors such as pH value, temperature, electrical conductivity (EC), oxidation-reduction potential (ORP), dissolved oxygen (DO), total organic carbon (TOC), and water level difference had significant impacts on the concentrations of the three nitrogen species, with respective impact effects on total nitrogen (TN) of -0.28, -0.08, 0.246, 0.111, 0.039, -0.118, and -0.07; in the lake water-groundwater system of the study area, the proportions of adults and children whose the health risks of the three nitrogen species reached an unacceptable level were 0.04%~5.23% and 0.42%~16.79%, respectively; the concentrations of the three nitrogen species and exposure frequency exhibited high parameter sensitivity to the results of health risk assessment.

Key words: nitrogen; lake water-groundwater interaction; dry-wet alternating lake; transport and transformation; health risks; the Poyang Lake

氮是自然界中广泛存在的关键元素,氮气(N₂)是大气中含量最高的成分,占大气总量的 78% 以上;同时,氮也是人体及动植物体内不可或缺的重要化学元素之一^[1]。氮素受人类活动影响显著,进而对全球气候变化、环境安全及人类健康产生重要影

响。环境中氮氧化物的排放可能诱发酸雨,加剧全球温室效应;过量施用氮磷肥料、排放未经处理的工业废水等,则会引发水体富营养化,导致溶解氧降低、水生态系统失衡、水质恶化等一系列环境问题^[2-4]。此外,特定形态的氮还具有一定的毒性特

征,饮用硝态氮浓度较高的水体可能增加人体患高铁血红蛋白症的风险;亚硝酸盐氮可在人体内转化为致癌性的亚硝胺类物质;有机氮类物质则会损害人体肝功能和周围神经系统^[5-6]。因此,近年来,环境中的氮素已成为水文、气象、生态等领域学者重点关注的对象。

相关学者针对水体中氮素的污染、负荷及滞留^[7-8],氮素来源分析^[9-10]、迁移转化及影响因素^[11],氮素的潜在生态及健康风险^[12],氮污染的模拟与预测等^[13]进行了大量研究。在地下水-地表水交互作用带,因地下水与地表水的水环境特征存在差异,二者的混合作用易引发交互带内不同氮浓度水体的物理混合过程。此外,温度、pH 值、盐度、氧化还原电位(Eh)的剧烈变化,也会对氮素迁移转化各环节的生物地球化学反应产生显著影响^[14-16]。同时,地下水-地表水交互作用带有机碳源丰富,不仅是硝酸盐反硝化作用的关键区域,也是氮素迁移转化研究的重点关注地带^[17-18]。然而,当前对于干湿交替型湖泊地表水-地下水交互作用带氮素迁移转化影响因素的研究尚不充足,其相关生态健康风险也未明确。

鄱阳湖是中国第一大淡水湖泊,其湖水资源与周边工农业生产及居民生活用水密切相关。同时,作为长江中游地区重要的通江湖泊与洪泛湖泊,鄱阳湖水文连通关系复杂,湖泊水文情势的季节性差异显著,素有“丰水成湖,枯水成河”之称^[19-20]。受此影响,湖泊水面面积季节性变化明显,Xiao 等^[21]研究表明,湖区水体整体呈现间歇性特征。因此,湖泊周边地下水与湖水的交互作用也呈现季节性动态变化特征^[22-23]。复杂多变的地表水文连通情况、湖泊水文的季节性动态变化,以及湖泊周边地下水与湖水交互作用的动态演化,使得湖水-地下水交互作用带氮素的迁移转化受水文情势变化影响显著,也使得该地区氮素迁移转化研究成为同类研究中的难点^[24-25]。

基于 2022—2023 年鄱阳湖丰、平、枯水期采集的鄱阳湖及周边含水层地下水样品,本文采用 Pearson 相关性分析、结构方程模型(structural equation modeling,SEM)、非确定性健康风险评价、同位素示踪等方法,探究鄱阳湖湖水-地下水系统氮素迁移转化影响因素及其潜在生态健康风险,以期类似大型淡水湖泊地区水文及水环境研究、水资源合理开发利用与保护提供参考。

1 研究区概况与数据

1.1 研究区概况

研究区包括鄱阳湖及沿湖周边地区。鄱阳湖

(28.5°N~29.9°N,115.7°E~116.9°E)位于长江流域中游,是中国第二大湖泊及第一大淡水湖泊,有“候鸟王国”的美誉,对当地水文循环和生态环境具有重要的调控作用^[26]。鄱阳湖流域为亚热带暖湿季风气候,全年平均气温 17.5℃;夏季气温 28.4~30.0℃,冬季气温降至 4.2~7.2℃;降雨、蒸散发年内分配不均,年均降水量 1400~2400 mm,年均蒸发量 800~1100 mm,降雨主要集中在 4—6 月,蒸发强度 7 月最强,1 月最弱^[27-28]。

鄱阳湖是典型的季节性、过水性、吞吐性湖泊,其水源主要来自赣江、修水、抚河、信江、饶河等 5 条河流(图 1),同时还接纳博阳河、漳田河、潼津河等支流的区间来水补给。这些来水经鄱阳湖调蓄后,于湖口县汇入长江。鄱阳湖汛期早于长江,每年 5、6 月长江尚未进入汛期时,鄱阳湖可向长江补水,发挥水源涵养作用;而 7、8 月长江汛期来临时,湖口可能发生长江水倒灌入湖现象,助力缓解长江流域的洪涝压力。鄱阳湖湖面面积年际变化不均,丰水期时,湖区几乎全部被淹没,最大湖面面积可达 3000 km² 以上;枯水期时,仅北部永久湖区保留规模化水体,其余原洪泛区域则以大小不一的碟形湖为主,湖面面积降至 800 km² 以下^[29]。鄱阳湖水文情势的季节性动态变化和间歇性水体的广泛分布,使其成为典型的干湿交替型湖泊^[21]。鄱阳湖四周以山地丘陵为主,中部为平原,地下水流向多从四周山地流入湖中。东南部赣抚平原则受赣江入湖径流的影响,地下水基本呈现向湖泊流动的特征,从而在湖泊周边形成大面积的硝酸盐还原带^[30-31]。

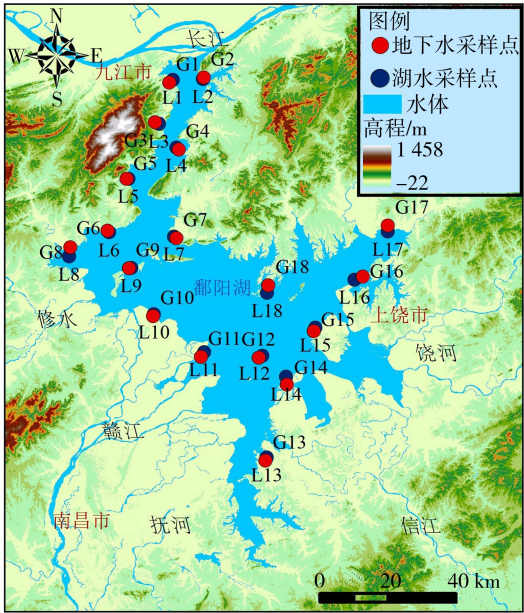


图 1 研究区概况及采样点位示意图

Fig. 1 Overview of the study area and sampling sites

鄱阳湖周边区域经济发展水平存在显著差异。西侧分布有南昌、九江等大型城市及工业园区,经济发展水平较高;东侧则为鄱阳县、都昌县等县级城市,土地利用类型以农业用地为主,经济发展程度较低。遥感影像显示,鄱阳湖流域(环湖带)土地利用类型中,农业用地占比超过 50%^[29]。近年来,受到农业生产中化肥施用不合理、排放未经处理的工业废水及生活污水等人类活动的影响,鄱阳湖湖水与地下水中的氮素浓度显著升高,进而引发湖泊富营养化、水质恶化等一系列生态环境问题,并表现出与农业活动、城市化建设及氧化还原环境时空分布密切相关的特点^[32-34]。

1.2 数据来源及质量控制

于 2022 年 10 月、2023 年 4 月和 2023 年 8 月采集鄱阳湖湖水及周边(图 1)地下水水样各 49 个。其中 2022 年 10 月处于鄱阳湖的枯水期,采集地下水和湖水水样各 13 个;2023 年 4 月和 8 月分别处于鄱阳湖的平水期和丰水期,采集地下水和湖水水样各 18 个^[35]。地下水采集于鄱阳湖周边的浅层含水层。取样前,先用取样位置处的湖水或地下水洗涤取样瓶和取样仪器 3 次或 4 次,用 0.45 μm 滤膜过滤收集的样品。水样密封在 125 mL 聚氯乙烯瓶中,以避免与大气接触。之后,立即将水样冷藏于 4℃ 以下的密封箱中,并运送到实验室进行室内测试。

水样的检测遵循 GB 3838—2002《地表水环境质量标准》和 GB/T 14848—2017《地下水水质标准》。使用离子色谱仪(ICS-600, Dionex Aquion)检测阴离子和阳离子浓度,紫外分光光度计(UV1800PC)检测氮素浓度, LGR (Los Gatos Research)液态水同位素分析仪(IWA-45EP)检测氢、氧同位素含量,并使用同位素的千位偏差值来描述同位素含量。

此外,数字高程模型(DEM)数据获取自地理空间数据云网站(<https://www.gscloud.cn/>);地理数据的处理和可视化工作采用 Arcgis 软件(Arcgis 10.8.1, ESRI)完成;数据的绘图、拟合和制图则通过软件 Origin(OriginPro 2023, OriginLab)实现。

2 研究方法

2.1 相关性分析

采用 Pearson 相关性分析法对各环境因子和三氮(NO_3^- -N、 NH_4^+ -N、 NO_2^- -N)浓度的相关关系进行探讨。Pearson 相关系数又称 Pearson 积矩相关系数,是反映两个变量之间线性关系密切程度的指标,定义为两个变量间协方差与各自标准差乘积的比值^[36]。相关系数通常用 r 表示,一般 r 值越大,表示

两指标间相关性越好,反之则越差。本文涉及的环境因子包括 pH 值、温度(T)、电导率(EC)、氧化还原电位、溶解氧(DO)、总有机碳(TOC)和水位差(Δh),水位差为相邻地下水采样点水位高程 H_C 减去湖泊采样点水位高程 H_L 。

2.2 SEM

SEM 是一种类似网络分析的统计分析模型,通过路径系数描述自变量与因变量之间的直接和间接影响效应^[37]。SEM 能够在样本量较少的情况下有效揭示结构性规律,且不要求样本数据服从正态分布,适用于探索性或解释性的理论研究^[38]。

SEM 构建主要包括以下步骤:①根据文献综述或实证知识,提出变量间因果关系的假设,随后借助 SEM 将这些假设转化为数学模型;②通过多项拟合指标对模型进行验证,并不断调整模型直至其通过检验^[39]。

SEM 的拟合效果需通过多项指标进行评估,包括卡方(χ^2)、自由度(df)、显著性(p)、拟合优度指数(GFI)、比较拟合指数(CFI)和标准化残差均方根(SRMR)等。① χ^2 用于评估多个路径之间差异的显著性,其值越小,模型拟合效果越优, $\chi^2/\text{df}<5$ 时模型可接受, $\chi^2/\text{df}<2$ 时模型拟合效果较好;②GFI 主要通过决定系数和回归标准差来评估模型与样本观测值的拟合度,取值范围为 0~1,越接近 0,拟合效果越差,GFI 大于等于 0.9 时模型拟合良好;③CFI 则根据比较假设模型与独立模型的拟合情况进行评估,取值为 0~1,越接近 0 拟合越差,CFI 大于等于 0.9 时模型拟合良好;④SRMR 越接近 0,模型拟合效果越好,SRMR 小于 0.05 表示模型拟合效果很好。

本文使用 R 编程语言中的 lavaan 包(RStudio 4.3.3)构建 SEM,与 Pearson 相关性分析一致,涉及环境因子 pH 值、 T 、EC、Eh、DO、TOC 和 Δh ,以及 NO_3^- -N、 NH_4^+ -N、 NO_2^- -N、TN 等氮素组分。

2.3 人类健康风险评价

人类健康风险评价体系(human health risk assessment, HHRA)由美国环保署(EPA)提出,主要包括危害识别、剂量-效应分析、暴露评价、风险表征 4 个步骤^[40]。通常认为三氮对人类健康存在非致癌性风险,人体接触水中氮素污染物的主要途径是摄入饮用水或皮肤接触^[27,41]。

人类总体健康风险按下式计算:

$$H = \frac{H_1 + H_2}{R} \tag{1}$$

式中: H 为计算的人类总体健康风险; H_1 为由饮用水引起的健康风险, $\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$; H_2 为通过皮肤接触引起的健康风险, $\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$; R 为风险表征参

数。 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 的风险表征参数分别为 1.6、0.1、0.97 $\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$ 。

由饮用水引起的健康风险计算公式为

$$H_1 = \frac{\rho IF_o E}{BA} \tag{2}$$

式中： ρ 为三氮的质量浓度， mg/L ； I 为人体摄入量， L/d ； F_o 为经口摄入途径的暴露频率， d/a ； E 为暴露周期， a ； B 为人体体重， kg ； A 为非致癌作用的平均时间， d 。

通过皮肤接触引起的健康风险计算公式为

$$H_2 = \frac{\rho KtVF_dESC}{BA} \tag{3}$$

式中： K 为皮肤渗透系数， cm/h ； t 为暴露时间， h/d ； F_d 为经皮肤摄入途径的暴露频率， d/a ； S 为皮肤暴露表面积， cm^2 ； V 为皮肤接触的每日暴露频率，取值为 1； C 为转换因子，取值为 0.001^[42]。

选取成人（大于等于 18 岁）和儿童（小于 18 岁）两个年龄组进行健康风险评价。 H 的界限值为 1.0，超过 1.0 表示非致癌风险程度较高，对人体健康造成的风险不可接受；反之则表示健康风险可以接受。健康风险评价本身具有不确定性，而基于蒙特卡罗（Monte-Carlo）随机模拟的 HHRA，通过概率分布对参数进行随机化处理，能够有效降低评价

结果的不确定性^[43]。本文在确定性健康风险评价的基础上引入蒙特卡罗随机模拟方法进行非确定性健康风险评价，通过查阅文献确定 HHRA 中各参数的分布类型和范围，并进行了 10 000 次蒙特卡罗随机模拟，以获得 5% 和 95% 置信水平的稳定概率风险（表 1），具体计算通过 Crystal Ball 风险模拟软件（Oracle Crystal Ball 11.1.2.4）完成。

3 结果与分析

3.1 水文与水化学指标统计分析

图 2 为研究区氮素质量浓度及降水量、蒸发量统计，表 2 和表 3 分别为研究区地下水、湖水水位及水化学指标统计。由图 2 可见，水文与水化学参数在 3 个采样时期差异显著，2022 年 10 月至 2023 年 8 月，研究区降水量在 24.38~306.58 mm 之间波动，蒸发量则在 43.0~27.83 mm 范围内变化；在 3 个采样时段，TN 质量浓度呈现下降趋势，其中地下水和湖水中 TN 平均质量浓度分别由 7.08 mg/L 降至 3.43 mg/L 、2.31 mg/L 降至 1.29 mg/L 。

由表 2 和表 3 可见，①水化学指标 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 是研究区无机氮的主要存在形式，地下水中 NO_3^- 质量浓度变化范围为 0.1~43.28 mg/L ，平均值为 12.28 mg/L ；湖水中 NO_3^- 质量浓度变化范围为

表 1 非确定性人类健康风险评价模型暴露参数统计

Table 1 Value selection and range of exposure parameters in non-deterministic human health risk assessment model					
参数	单位	分布类型	成人	儿童	参考文献
人体摄入量	mL/d	正态分布	(1.5,0.15)	(0.85,0.09)	[44]
暴露频率	d	三角分布	(180,345,365)	(180,345,365)	[44]
暴露周期	a	单点	30	6	[45]
人体体重	kg	对数正态	(61.5,6.10)	(15.0,1.50)	[44]
非致癌作用的平均时间	d	单点	365 E	365 E	[45]
皮肤接触的每日暴露频率		单点	1	1	[27]
皮肤暴露表面积	cm^2	单点	16 000	10 000	[46]
皮肤渗透系数	cm/h	单点	0.001	0.001	[27]
暴露时间	h/d	单点	0.4	0.4	[27]
转换因子		单点	0.001	0.001	[27]

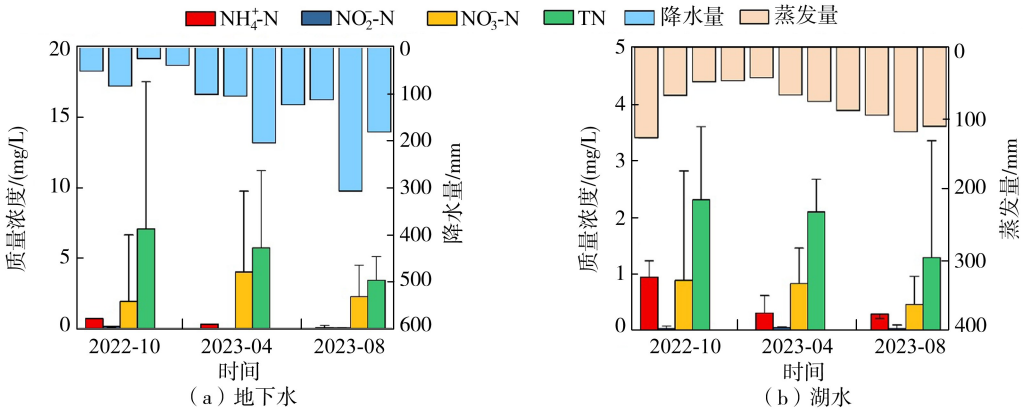


图 2 研究区氮素质量浓度及降水量、蒸发量统计

Fig. 2 Statistics on nitrogen mass concentration and meteorological elements in the study area

表 2 研究区地下水水位及其水质理化参数统计

类别	pH 值	T/℃	H _G /m	EC/ (μs/cm)	Eh/mV	质量浓度/(mg/L)						δ ¹⁸ O-	δ ¹⁵ N-	δ ¹⁸ O-
						DO	NH ₄ ⁺	NO ₂ ⁻	NO ₃ ⁻	TN	TOC	H ₂ O/‰	NO ₃ ⁻ /‰	NO ₃ ⁻ /‰
最小值	4.95	10.50	13.20	104.00	-74.00	0.14	<DL	<DL	0.10	0.62	2.60	-8.50	-5.04	-8.95
最大值	7.85	27.60	56.60	1050.00	417.00	19.60	7.03	3.03	43.28	17.56	26.10	-3.90	36.67	35.31
平均值	6.56	20.83	37.66	305.40	194.38	7.13	0.43	0.20	12.28	5.27	8.55	-6.13	11.11	5.34
标准差	0.74	3.19	12.02	178.41	122.07	3.91	1.04	0.59	10.08	4.12	5.28	0.83	7.25	7.89

表 3 鄱阳湖湖水水位及其水质理化参数统计

类别	pH 值	T/℃	H _G /m	EC/ (μs/cm)	Eh/mV	质量浓度/(mg/L)						δ ¹⁸ O-	δ ¹⁵ N-	δ ¹⁸ O-
						DO	NH ₄ ⁺	NO ₂ ⁻	NO ₃ ⁻	TN	TOC	H ₂ O/‰	NO ₃ ⁻ /‰	NO ₃ ⁻ /‰
最小值	6.05	11.20	8.10	65.00	-85.00	2.49	<DL	<DL	0.09	0.17	2.37	-7.41	-16.75	-12.65
最大值	9.28	39.50	59.00	549.00	355.00	16.28	6.25	0.70	12.49	5.28	29.03	3.06	24.02	38.16
平均值	7.35	25.84	33.91	179.13	201.92	9.69	0.61	0.13	3.13	1.85	10.05	-4.02	6.21	1.32
标准差	0.67	5.66	12.93	84.11	90.56	3.17	0.92	0.15	2.82	1.03	7.29	2.04	7.70	8.40

0.09~12.49 mg/L, 平均值为 3.13 mg/L。NO₃⁻-N 质量浓度在 2023 年 4 月相对较高,而在 2022 年 10 月和 2023 年 8 月则相对较低,这可能与研究区 4 月农业活动频率增加有关。灌溉和施肥等农业活动导致氮肥中的 NO₃⁻-N 被淋滤至地下水中,并随地下水径流进入湖泊,从而提高了湖水中 NO₃⁻-N 的质量浓度^[32]。②NH₄⁺-N 同样是研究区无机氮的重要存在形式之一,其质量浓度在 3 个采样时期内呈现下降趋势(图 2)。NH₄⁺ 质量浓度在地下水中变化范围为 <DL~7.03 mg/L(DL 为离子浓度检出限),平均值为 0.43 mg/L;湖水为 <DL~6.25 mg/L,平均值为 0.61 mg/L。总体来看,湖水中 NH₄⁺ 质量浓度高于地下水。③NO₂⁻-N 质量浓度较低且变化范围较小,在三氮的赋存形态中不占主要部分。

从表 2、表 3 还可以看出,研究区理化参数中,①pH 值。pH 值变化范围为 4.95~9.28,地下水整体呈偏酸性环境,湖水则呈弱碱性环境。②水位。研究区地下水水位大多高于湖水水位,地下水水位平均值为 37.66m,湖水水位平均值为 33.91m,表明鄱阳湖周边地下水存在补给湖水的趋势。③EC。地下水 EC 值较湖水偏高,平均值为 305.4 μs/cm,湖水平均值为 179.13 μs/cm,说明相较于湖水,地下水硬度更高,溶解性总固体(TDS)含量也更大。④Eh。地下水和湖水 Eh 值差异不大,平均值分别为 194.38、201.92 mV,且两类水体中均有部分采样点的 Eh 值为负,表明这些采样点的水体处于弱还原环境。⑤DO。地下水 DO 质量浓度平均值(7.13mg/L)略低于湖水(9.69 mg/L)。⑥TOC。湖水 TOC 质量浓度变化范围为 2.37~29.03 mg/L,地下水则为 2.6~26.1 mg/L,湖水略高于地下水。

3.2 环境因子对三氮的影响效应分析

3.2.1 相关性分析结果

a. 地下水。根据 Pearson 相关性分析结果,EC、Δh、ρ(TOC)和 ρ(NO₂⁻)与 ρ(NH₄⁺)呈显著正相关关系(图 3(a))。一般高 TDS 和高 EC 的地下水被认为与人类活动关联密切,说明研究区地下水中 NH₄⁺ 的来源受到人类活动的影响^[38]。研究区农业活动频繁,氮肥施用量较大,但只有不超过 50%的氮肥能被作物有效吸收,剩余的氮肥会通过降雨淋溶、气体挥发、地表径流等途径流失,进而导致地下水中氮素含量升高^[47]。ρ(NO₂⁻)与 ρ(NH₄⁺)正相关,说明二者可能具有相同的来源(如 NO₃⁻ 的还原产物),而 Δh、ρ(TOC)与 ρ(NH₄⁺)的关系进一步印证了这一推测。研究区地下水样均采集于湖泊周边区域,在靠近湖泊及湖床底部的地带,水生动植物等生物体长期富集,使沉积物中积累了丰富的有机碳源;这些有机碳可作为 NO₃⁻ 反硝化作用及异化还原为铵作用(DNRA)的电子供体,在促进 NO₃⁻ 质量浓度降低的同时,也使得 NH₄⁺ 质量浓度升高^[17-18]。而 Δh 越高意味着地下水对湖泊的补给作用越明显,越有利于上述反应的发生。此外,Eh 与 NO₃⁻ 质量浓度同样呈现正相关关系,Eh 值越高,水体氧化环境越显著,越有利于硝化作用的进行,从而使 NO₃⁻ 质量浓度增大。Eh 与 TOC 的质量浓度呈负相关关系,因 TOC 属于还原性物质,其质量浓度越高,水体越偏向还原环境,导致 Eh 值降低,而这一关系使得 TOC 质量浓度与 NO₃⁻ 也呈负相关关系,说明 TOC 的存在可促进 NO₃⁻ 的还原作用。值得注意的是,pH 值与 NO₃⁻ 质量浓度呈负相关关系。研究区地下水 pH 值范围为 4.95~7.85,平均值为 6.56,整体呈弱酸性。Zhou 等^[48]研究认为,水体酸化、pH 值降低

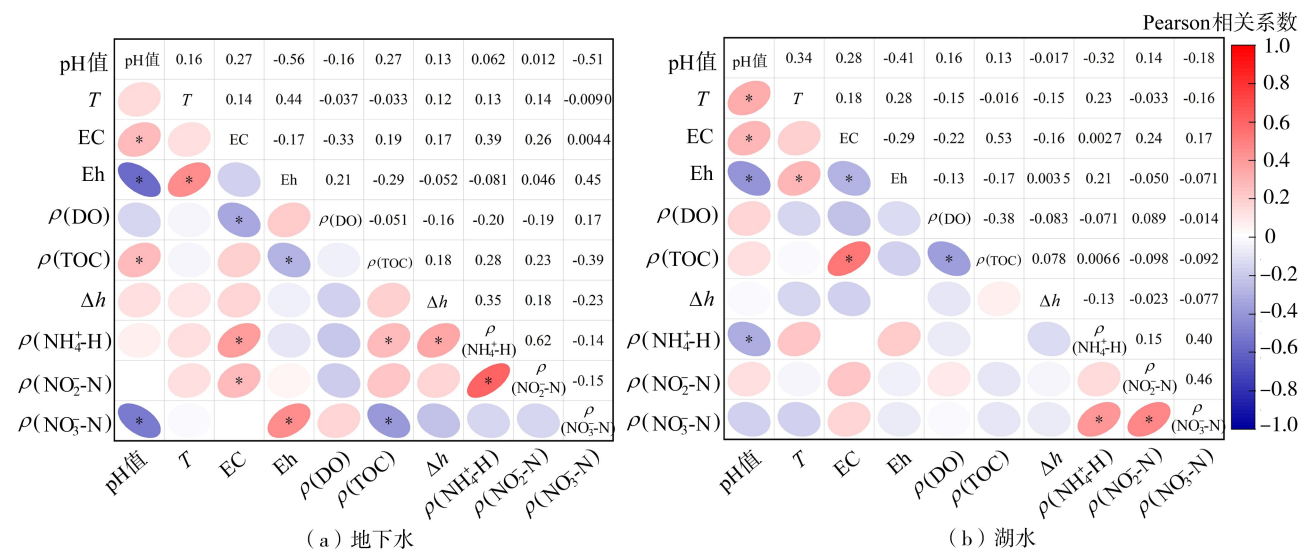


图3 地下水与湖水中各环境因子与氮素质量浓度的相关性

Fig. 3 Correlation between environmental factors and nitrogen mass concentration in groundwater and lake water

将有利于硝化反应,从而增大 NO_3^- 质量浓度,导致了 pH 值与 NO_3^- 质量浓度二者之间的负相关性。

b. 湖水。 NO_2^- 与 NH_4^+ 质量浓度都与 NO_3^- 质量浓度呈显著正相关关系,说明湖水中的三氮质量浓度变化较为一致,推测其可能来源于相似的物质输入或环境过程(图 3(b))。与地下水特征类似,湖水样品中的 DO 质量浓度与 TOC 呈负相关关系,这是由于 DO 有助于推动水体向氧化环境发展,而 TOC 作为还原性物质,会促使水体偏向还原环境。pH 值与 NH_4^+ 质量浓度呈现负相关关系。与地下水相比,湖水 pH 值更高,更偏向于弱碱性,变化范围为 6.05~9.28。Wei 等^[49]研究认为, DNRA 作用在 pH 值约为 7.3 时达到最大值,高于或低于该值均不利于 DNRA 作用,即不利于 NH_4^+ 生成。而湖水中 pH 值与 NH_4^+ 质量浓度呈负相关关系,说明尽管湖水整体处于弱碱性,但多数采样点的 pH 值可能高于 DNRA 作用的最优 pH 值,抑制了 NH_4^+ 的生成。

在地下水和湖水中, T 与 Eh 均表现出正相关关系, pH 值与 Eh 均呈现负相关关系(图 3)。Boros 等^[50]研究表明,涉及 H^+ 参与的氧化还原反应, Eh 值与 H^+ 质量浓度直接相关,而 pH 值是 H^+ 质量浓度的负对数,因此二者存在负相关的定量关系。能斯特方程描述了 Eh 与 T 、参与氧化还原反应的物质质量浓度之间的定量关系,通常情况下, T 升高, Eh 值增大,该体系的氧化性增强,解释了 T 与 Eh 呈现正相关的原因^[51]。

3.2.2 基于 SEM 的影响因素分析

在相关性定性分析的基础上, SEM 模拟结果进一步明确了各环境因子对三氮及总氮的定量影响程度。 SEM 计算结果显示, CFI 为 0.981, GFI 为

0.957, SRMR 为 0.026, χ^2 为 10.601, df 为 7, χ^2/df 为 1.514, p 为 0.142, 表明模型拟合效果较好(图 4, 图中箭头上数字表示路径系数; * 表示显著性 $p < 0.1$, ** 表示 $p < 0.05$, *** 表示 $p < 0.001$, 其他 $p > 0.1$)。各环境因子对 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 NO_2^- 质量浓度的影响表现出与 Pearson 相关性分析类似的结果。具体而言,在鄱阳湖湖水-地下水系统中, NO_3^- 主要受到 Δh 、pH 值、 $\rho(\text{TOC})$ 、 T 的显著负向影响,其标准化效应(路径系数)分别为 -0.108、-0.389、-0.176 和 -0.138;相反, Eh 与 EC 对 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 表现出显著的正向影响,路径系数分别为 0.171、0.352。 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 则主要受到 Δh 、 $\rho(\text{TOC})$ 、 T 的正向影响,路径系数分别为 0.101、0.086、0.404,与 NO_3^- 相反;同时受到 pH 值与 Eh 的显著负向影响,路径系数分别为 -0.335 和 -0.199。值得注意的是,各环境因子对

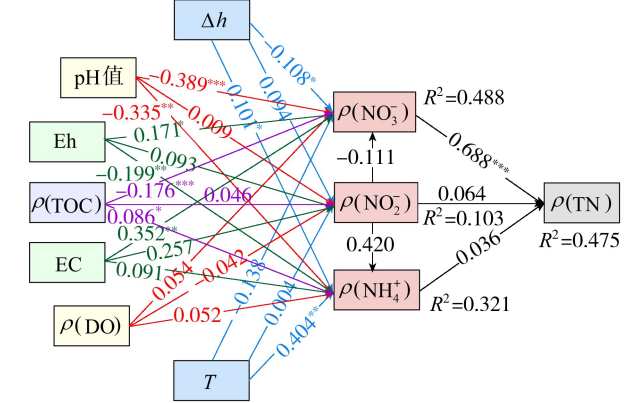


图4 基于 SEM 计算的研究区各环境因子对氮素质量浓度的影响效应

Fig. 4 Impact effects of various environmental factors on nitrogen mass concentration in the study area based on SEM

$\rho(\text{NO}_2^-)$ 影响的统计显著性不高($p>0.1$)。总体而言,研究区氮素的迁移转化过程主要受到溶质浓度、 Δh 、pH 值、氧化还原环境、水体 TOC 质量浓度和 T 的影响,该结论与陆帅帅等^[38,52]的研究结论一致。

通过路径系数计算各环境因子对 $\rho(\text{TN})$ 的总影响效应,结果显示 Δh 、pH 值、Eh、 $\rho(\text{TOC})$ 、EC、 $\rho(\text{DO})$ 和 T 对 $\rho(\text{TN})$ 的总影响效应分别为-0.07、-0.28、0.111、-0.118、0.246、0.039、-0.08。总影响效应计算结果表明,在鄱阳湖湖水-地下水系统中, NO_3^- 对 TN 质量浓度影响的标准化效应最高,路径系数达 0.688。 NO_3^- 是研究区水体无机氮的主要成分,TN 质量浓度的增减与 NO_3^- 质量浓度关联密切。另外,对 TN 质量浓度影响最大的环境因子为 pH 值,影响效应为-0.28;其次为 EC,影响效应为 0.246。pH 值通过影响硝化作用、反硝化作用及 DNRA 作用中的微生物活性,进而影响三氮的迁移转化,从而影响 TN 质量浓度;EC 对 TN 的影响效应,本质上反映了人类活动(如工业与生活污水排放、农业灌溉、化肥施用等)对总氮质量浓度的作用,尤其通过影响 NO_3^- 质量浓度,间接作用于 TN 质量浓度,Wang 等^[32,53]的研究也证明了这一结论。另外,Eh 与 TOC 通过调节水体氧化还原环境、提供 NO_3^- 还原反应所需电子供体,共同控制 NO_3^- 及 TN 质量浓度。 T 与 Δh 对 TN 的影响较小,但不可忽视; DO 的影响相对最低,对 TN 质量浓度的影响相对不明显。

3.3 三氮健康风险评价

3.3.1 基于随机模拟的健康风险评价结果

a. 地下水。根据蒙特卡罗随机模拟计算结果,如图 5(a)(b)(c)所示,2022 年 10 月到 2023 年 8 月采样的 3 期地下水样品中,成人 H 平均值分别为 0.40、0.27、0.15,均未达到不可接受水平;达到不可接受水平($H>1.0$)的成人群体比例分别为 5.23%、0.66%、0.04%。儿童 H 的平均值分别为 0.95、0.63、0.36,均高于成人,但均值都未达到不可接受水平;达到不可接受水平($H>1.0$)的儿童比例分别为 13.23%、16.79%、1.47%。对于成人和儿童,地下水健康风险平均水平均表现出枯水期高于平水期高于丰水期,表明随着研究区水资源量的逐渐充足,氮素浓度呈下降趋势,三氮健康风险也呈下降趋势。

b. 湖水。如图 5(d)(e)(f)所示,与地下水健康风险规律类似,在 3 个采样时期内,湖水健康风险平均水平也表现出枯水期高于平水期高于丰水期的特征。具体来看,2022 年 10 月、2023 年 4 月、2023 年 8 月成人 H 平均值分别为 0.12、0.1、0.06,平均健康风险均属于可接受水平;达到不可接受水平($H>1.0$)的成人群体比例分别为 0.8%、0.05%、0.05%。儿童 H 平均值分别为 0.28、0.22、0.15,虽均高于同期成人水平,但仍属于可接受范围;达到不可接受水平($H>1.0$)的儿童比例分别为 3.1%、0.72%、0.42%。相较于地下水,湖水在 3 个采样时段内的三氮健康风险差异有所缩小。

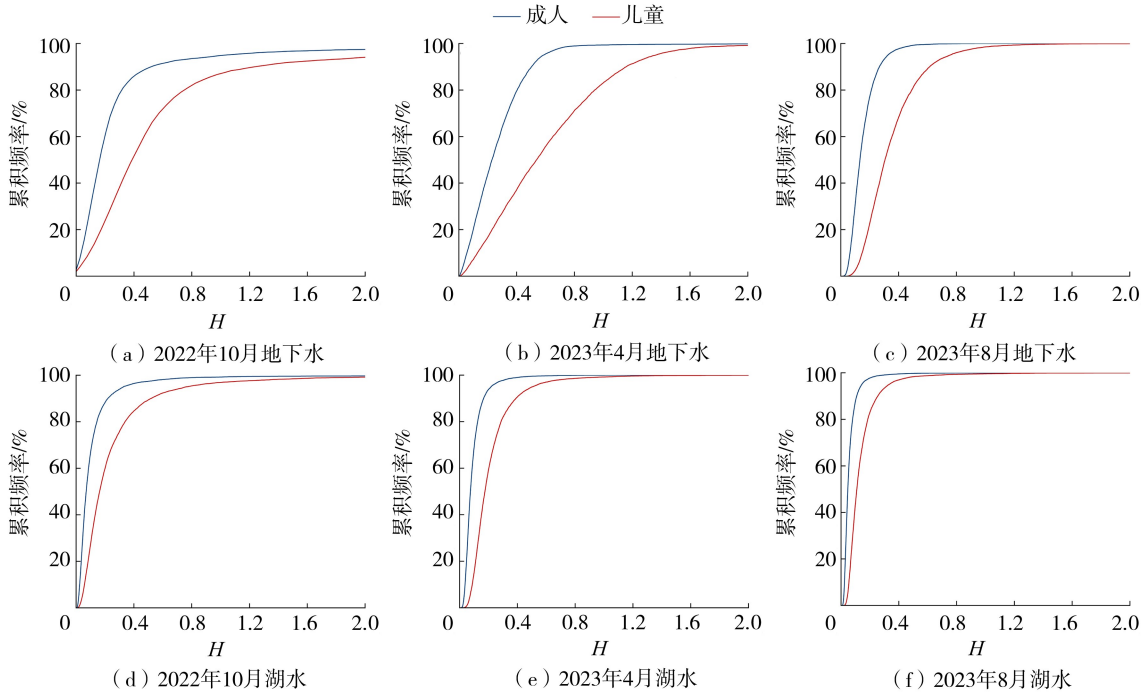


图 5 地下水与湖水氮素非致癌健康风险累积频率分布

Fig. 5 Cumulative frequency distribution of nitrogen-related non-carcinogenic health risks in groundwater and lake water

无论是地下水还是湖水,各时期儿童的三氮健康风险均显著高于成人,这一特征在其他地区氮素健康风险评估中也得到了验证^[54-55]。因此,在未来针对水体三氮健康风险防控工作中,儿童应作为重点关注群体。

3.3.2 健康风险的参数敏感性评估

氮素质量浓度分布、响应函数和评价方法等方面的不确定性,会对人体健康风险评价的计算结果产生影响。此类不确定性对风险估计的影响,可通过参数敏感性分析进行评估,敏感性越高,该参数对总体不确定性的影响越大^[56]。参数敏感性分析结果显示,三氮质量浓度对地下水与湖水的健康风险均具有最高敏感性(表 4、表 5)。对于成人和儿童,NO₃⁻ 质量浓度的敏感性分别处于 36.1%~90.5%、35.9%~89.6%之间,NO₂⁻ 质量浓度的敏感性分别位于 0.665%~48.4%、0.521%~47.6%之间。通常认为,参数敏感性在 15% 以上即属于较高敏感性,可知 NO₃⁻ 与 NO₂⁻ 均为敏感性显著的参数^[57]。NH₄⁺ 质量浓度的敏感性相对较低,成人与儿童分别位于 0.135%~17.4%、0.055%~17.6% 之间。暴露参数中,暴露频率(*F*)的敏感性相对较高,*I*、*B*、*S* 等参数敏感性则相对较低。因此,在区域健康风险防控工作中,应格外关注 NO₃⁻、NO₂⁻ 质量浓度及暴露频率的影响。此外,成人与儿童健康风险评价中,各参数的敏感性也略有差别,表明年龄对参数敏感性的影响同样不可忽视。

表 4 研究区地下水健康风险参数敏感性

Table 4 Parameter sensitivity of health risks of groundwater in the study area

参数	2022 年 10 月		2023 年 4 月		2023 年 8 月	
	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童
$\rho(\text{NO}_3^-)$	61.90	61.55	90.53	89.64	75.19	74.58
$\rho(\text{NO}_2^-)$	27.06	27.78	0.66	0.52	9.89	10.06
$\rho(\text{NH}_4^+)$	4.72	4.78	1.83	2.05	0.14	0.06
<i>F</i>	3.51	2.99	3.72	3.69	7.37	7.82
<i>I</i>	1.43	1.37	1.58	2.40	3.97	3.99
<i>B</i>	1.36	1.45	1.65	1.70	3.42	3.47

表 5 鄱阳湖湖水健康风险参数敏感性

Table 5 Parameter sensitivity of health risks of lake water in the Poyang Lake

参数	2022 年 10 月		2023 年 4 月		2023 年 8 月	
	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童
$\rho(\text{NO}_3^-)$	52.10	51.17	39.93	37.54	36.13	35.91
$\rho(\text{NO}_2^-)$	23.39	23.25	48.36	47.63	35.91	35.35
$\rho(\text{NH}_4^+)$	17.42	17.65	1.29	1.42	13.31	13.22
<i>F</i>	3.91	4.14	7.19	7.19	7.46	7.72
<i>I</i>	1.97	1.89	3.26	3.06	4.06	4.68
<i>B</i>	1.20	1.84	2.96	3.14	3.06	3.07

此外, $\rho(\text{NO}_3^-)$ 与 $\rho(\text{NO}_2^-)$ 在地下水中的参数敏

感性明显高于湖水,说明地下水三氮健康风险对氮素浓度变化更为敏感(表 4)。在 3 个采样时期,2023 年 4 月地下水中 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 的健康风险参数敏感性最高,其次为 2023 年 8 月和 2022 年 10 月,这与 NO₃⁻ 在 3 个时期的质量浓度情况一致(图 2)。研究区 4 月农业活动频率上升。灌溉、施肥使氮肥中的 NO₃⁻-N 被淋滤至地下水,NO₃⁻ 质量浓度升高使其成为该时期地下水三氮健康风险的主要影响因素。2023 年 8 月农业活动减少,2022 年 10 月更是由于严重干旱天气导致作物减收,农业活动频率下降,地下水中 NO₃⁻ 质量浓度下降,对三氮健康风险的影响降低。另外,经野外实地调查,研究区地下水是当地特别是农村地区的主要用水来源,因此在研究区三氮健康风险的防控中,应重点关注地下水中氮素的质量浓度。

3.4 基于同位素的氮素转化证据

研究表明,NO₃⁻ 同位素与水化学因子结合可用于判别水中氮的硝化及反硝化过程。具体而言,在硝化过程中, $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 的来源可拆解为 2/3 来源于 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 、1/3 来源于 $\delta^{18}\text{O}-\text{O}_2$ ^[58-59]。由图 6 分析可见,地下水与湖水的采样点均分布于该理论线附近,表明湖水与地下水中的硝化作用不可忽视(图 6(a)(c))。除 2022 年 10 月部分采样点偏离该线较远外,其余平水期与丰水期的湖水、地下水采样点均位于该线附近,这一结论与 Mao 等^[60]的研究结论一致。在有氧环境中,微生物介导的硝化作用会先将 NH₄⁺ 氧化为 NO₂⁻,进而氧化为 NO₃⁻;高质量浓度的 NH₄⁺ 会促进硝化作用的进行,从而使水体中的氧气得到更充分的利用^[61-62]。2022 年 10 月硝化作用出现异常,可能与该时期鄱阳湖地区的强干旱天气相关。该时期地下水和湖水的水量明显减少,且气温升高,导致硝化细菌等微生物的生存环境受到干扰,进而降低了硝化作用的强度^[63]。

本文的湖水样品采自鄱阳湖边缘,在 NO₃⁻ 的反硝化过程中,反硝化细菌优先利用较轻的 $\delta^{14}\text{N}-\text{NO}_3^-$,导致 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 随反硝化过程中 NO₃⁻ 浓度的降低而逐渐富集,从而使得 $\delta^{15}\text{N}$ 与 NO₃⁻ 质量浓度呈负相关关系;且已有研究证实 $\delta^{15}\text{N}$ 与 NO₃⁻ 质量浓度的对数呈现负的线性关系^[64-65]。湖水中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 与 NO₃⁻ 质量浓度的对数在 2022 年 10 月和 2023 年 4 月负相关关系显著,表明这两个时期湖水反硝化作用明显(图 6(d))。鄱阳湖枯水期、平水期周边地下水补给作用显著,而丰水期则以湖水补给地下水为主^[23]。在地下水补给湖水的过程中,河床沉积物中赋存的 TOC,可为高 NO₃⁻ 地下水的硝酸盐反硝

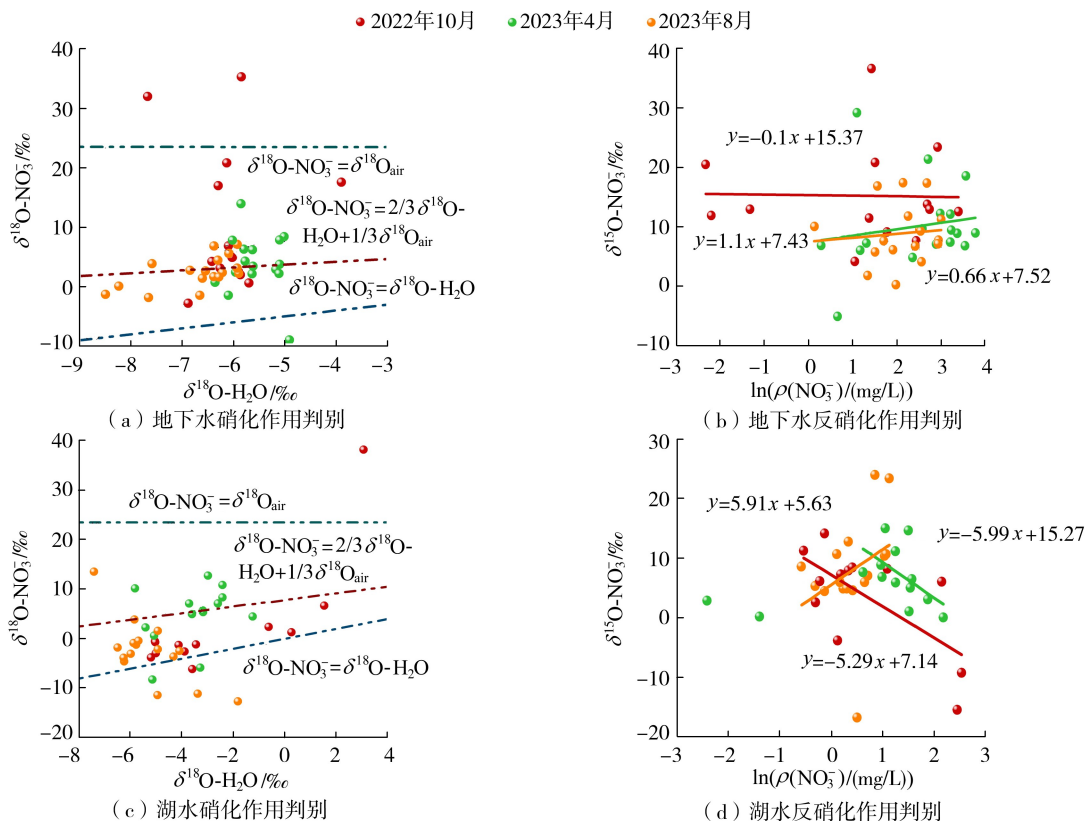


图6 研究区地下水与湖水中 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 与 $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ 及 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 与 NO_3^- 质量浓度的对数比值

Fig. 6 Ratios between $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ and $\delta^{18}\text{O}-\text{H}_2\text{O}$ as well as between $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ and the logarithm of NO_3^- mass concentration in groundwater and lake water of the study area

化及 DNRA 作用提供电子供体,从而促进 NO_3^- 还原。这一现象在 2023 年 8 月不明显,可能与该时期湖水补给地下水有关。地下水中 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和 NO_3^- 质量浓度对数的相关关系不显著,说明相较于湖水,地下水反硝化作用更微弱(图 6(b))。由于本文地下水采自浅层含水层,水体中的 DO 未达到缺氧条件,反硝化作用不易发生。Wang 等^[66]的研究也表明,鄱阳湖地区浅层地下水以硝化作用为主、反硝化作用微弱,而深层地下水则易发生 DNRA 等作用。

4 结 论

a. 鄱阳湖及沿湖周边地区三氮赋存形态以 NO_3^--N 为主, NH_4^+-N 次之, NO_2^--N 质量浓度较低。地下水和湖水中, TN 质量浓度表现为枯水期大于平水期大于丰水期, NO_3^--N 质量浓度则表现为平水期大于枯水期及丰水期。应对高氮质量浓度地区进行必要的水质监测,以及时发现并减轻由此产生的污染,并通过针对性的措施,如科学合理地使用氮肥、提高工厂污水处理水平等,降低氮素污染风险。

b. 鄱阳湖三氮质量浓度受 pH 值、 T 、EC、Eh、 $\rho(\text{DO})$ 、 $\rho(\text{TOC})$ 和 Δh 影响明显。pH 值、 T 通过改变水体酸碱环境与温度条件,影响硝化、反硝化微生物的活性,进而作用于氮素的迁移和转化过程。Eh

和 $\rho(\text{DO})$ 改变水中的氧化还原环境,从而影响硝化作用和反硝化作用。EC 反映水体盐度,与 NO_3^--N 和 TN 质量浓度呈正相关。TOC 可促进反硝化及 DNRA 作用。当地下水位高于湖水时,有利于地下水中高质量浓度的 NO_3^--N 还原。同位素示踪结果显示,地下水与湖水在平水期、丰水期硝化作用显著;湖水在平水期、枯水期反硝化作用明显。

c. 鄱阳湖湖水-地下水系统中,成人和儿童的三氮健康风险达到不可接受水平的比例分别为 0.04%~5.23%、0.42%~16.79%,水体健康风险整体处于可接受水平,风险程度较低。三氮质量浓度、暴露频率对健康风险评价结果具有较高的参数敏感性。儿童相对于成人的三氮健康风险更高,在利用研究区湖水和地下水资源时,应重点关注对儿童群体的保护,且需对水体处理后再用于生活用途。

参考文献:

- [1] 王思如,杨大文,孙金华,等.我国农业面源污染现状与特征分析[J].水资源保护,2021,37(4):140-147. (WANG Siru, YANG Dawen, SUN Jinhua, et al. Analysis on status and characteristics of agricultural non point source pollution in China [J]. Water Resources Protection, 2021, 37(4): 140-147. (in Chinese))

- [2] LIU Xiaochen, BEUSEN A H, VAN GRINSVEN H J, et al. Impact of groundwater nitrogen legacy on water quality [J]. *Nature Sustainability*, 2024, 7(7) : 891-900.
- [3] SOANA E, GERVASIO M P, GRANATA T, et al. Climate change impacts on eutrophication in the Po River (Italy) : temperature-mediated reduction in nitrogen export but no effect on phosphorus [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2024, 143: 148-163.
- [4] EDWARDS T M, PUGLIS H J, KENT D B, et al. Ammonia and aquatic ecosystems-a review of global sources, biogeochemical cycling, and effects on fish [J]. *Science of the Total Environment*, 2024, 907: 167911.
- [5] FENG Bo, MA Yuxue, QI Yarong, et al. Health risk assessment of groundwater nitrogen pollution in Yinchuan plain [J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2022, 249: 104031.
- [6] BERNHARDT E S. Cleaner lakes are dirtier lakes [J]. *Science*, 2013, 342(6155) : 205-206.
- [7] HASHEMI F, OLESEN J E, DALGAARD T, et al. Review of scenario analyses to reduce agricultural nitrogen and phosphorus loading to the aquatic environment [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 573: 608-626.
- [8] WANG Xihua, XU Y J, LIU Zejun, et al. Spatiotemporal changes of nitrate retention at the interface between surface water and groundwater: insight from watershed scale in an elevated nitrate region [J]. *Hydrological Processes*, 2023, 37(3) : e14856.
- [9] 康萍萍, 许士国, 禹守泉. 同位素溯源解析地下水对地下水氮分布影响 [J]. *水资源保护*, 2016, 32(5) : 79-84. (KANG Pingping, XU Shiguo, YU Shouquan. Analysis of influence of underground reservoir on nitrogen distribution through tracing of isotope source [J]. *Water Resources Protection*, 2016, 32(5) : 79-84. (in Chinese))
- [10] 张毅敏, 桂浩翔, 陈婷, 等. 浦阳江中下游氮分布特征及来源解析 [J]. *水资源保护*, 2024, 40(6) : 206-214. (ZHANG Yimin, GUI Haoxiang, CHEN Ting, et al. Distribution patterns and source analysis of nitrogen in middle and lower reaches of the Puyang River [J]. *Water Resources Protection*, 2024, 40(6) : 206-214. (in Chinese))
- [11] XIA Xinghui, ZHANG Sibao, LI Siling, et al. The cycle of nitrogen in river systems: sources, transformation, and flux [J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2018, 20(6) : 863-891.
- [12] DE VRIES W. Impacts of nitrogen emissions on ecosystems and human health: a mini review [J]. *Current Opinion in Environmental Science & Health*, 2021, 21: 100249.
- [13] 蔡奕, 邢婧文, 阮西科, 等. 河流潜流带氮素迁移转化数值模拟研究进展 [J]. *水资源保护*, 2023, 39(1) : 181-189. (CAI Yi, XING Jingwen, RUAN Xike, et al. Advances in the numerical simulation of the migration and transformation of nitrogen in hyporheic zones of rivers [J]. *Water Resources Protection*, 2023, 39(1) : 181-189. (in Chinese))
- [14] 梁莹. 江汉平原水动力驱动下地下水中氮的反应迁移与归趋 [D]. 武汉: 中国地质大学, 2022.
- [15] 吴亚坤. 关中盆地典型剖面氮迁移转化规律和数值模拟研究 [D]. 西安: 长安大学, 2023.
- [16] 范靛慧. 河流-地下水交互带水动力-微生物-氮化物协同运移机制研究 [D]. 西安: 长安大学, 2023.
- [17] 王佳琪, 马瑞, 孙自永. 地表水与地下水相互作用带中氮素污染物的反应迁移机理及模型研究进展 [J]. *地质科技情报*, 2019, 38(4) : 270-280. (WANG Jiaqi, MA Rui, SUN Ziyong. Reactive transport and model of nitrogen pollutants in the surface water-ground water interaction zones: a review [J]. *Geological Science and Technology Information*, 2019, 38(4) : 270-280. (in Chinese))
- [18] 周念清, 吴延浩, 蔡奕, 等. 湿地关键带中磷与氮、碳循环联动耦合机制 [J]. *地球科学与环境学报*, 2022, 44(1) : 91-101. (ZHOU Nianqing, WU Yanhao, CAI Yi, et al. Coupling mechanism of phosphorus and nitrogen, carbon cycles in critical zone of wetland [J]. *Journal of Earth Science and Environment*, 2022, 49(1) : 91-101. (in Chinese))
- [19] LI Yuliang, ZHANG Qi, LIU Xinggen, et al. The role of a seasonal lake groups in the complex Poyang Lake-floodplain system (China) : insights into hydrological behaviors [J]. *Journal of Hydrology*, 2019, 578: 124055.
- [20] LIU Hai, YUAN Hongmeng, WANG Shimian, et al. Spatiotemporal dynamics of water body changes and their influencing factors in the seasonal lakes of the Poyang Lake region [J]. *Water*, 2021, 13(11) : 1539.
- [21] XIAO Zhen, LI Runkui, DING Mingjun, et al. Unveiling the hidden dynamics of intermittent surface water: a remote sensing framework [J]. *Remote Sensing of Environment*, 2024, 311: 114285.
- [22] ZHOU Pengpeng, WANG Guangcai, MAO Hairui, et al. Numerical modeling for the temporal variations of the water interchange between groundwater and surface water in a regional great lake (Poyang Lake, China) [J]. *Journal of Hydrology*, 2022, 610: 127827.
- [23] LIU Zejun, WANG Xihua, XU Y J, et al. Multi-indicators to investigate the spatiotemporal effect of groundwater-lake interaction on lake development: case study in the largest fresh water lake (Poyang Lake) of China [J]. *Journal of Hydrology*, 2025, 650: 132557.
- [24] LI Yunliang, ZHANG Qi, CAI Yongjiu, et al. Hydrodynamic investigation of surface hydrological connectivity and its effects on the water quality of seasonal lakes: insights from a complex floodplain setting (Poyang Lake, China) [J]. *Science of the Total Environment*,

- 2019,660:245-259.
- [25] WANG Xihua, JIA Shunqing, XU Y J, et al. Dual stable isotopes to rethink the watershed-scale spatiotemporal interaction between surface water and groundwater [J]. Journal of Environmental Management, 2024, 351: 119728.
- [26] 周苏芬,黄志文,王志超. 鄱阳湖黏性底质淤泥固结起动规律试验[J]. 河海大学学报(自然科学版), 2023, 51(3): 99-104. (ZHOU Sufen, HUANG Zhiwen, WANG Zhichao. Experimental study on initiation law of consolidated cohesive sediment in Poyang Lake [J]. Journal of Hohai University (Natural Sciences), 2023, 51(3): 99-104. (in Chinese))
- [27] LIU Zejun, WANG Xihua, JIA Shunqing, et al. Multi-methods to investigate spatiotemporal variations of nitrogen-nitrate and its risks to human health in China's largest fresh water lake (Poyang Lake) [J]. Science of the Total Environment, 2023, 863: 160975.
- [28] SHVARTSEV S, SHEN Zhaoli, SUN Zhanxue, et al. Evolution of the groundwater chemical composition in the Poyang Lake catchment, China [J]. Environmental Earth Sciences, 2016, 75: 1-16.
- [29] LIU Zejun, WANG Xihua, JIA Shunqing, et al. Eutrophication causes analysis under the influencing of anthropogenic activities in China's largest fresh water lake (Poyang Lake): evidence from hydrogeochemistry and reverse simulation methods [J]. Journal of Hydrology, 2023, 625: 130020.
- [30] LIAO Fu, WANG Guangcai, YI Lixin, et al. Identifying locations and sources of groundwater discharge into Poyang Lake (eastern China) using radium and stable isotopes (deuterium and oxygen-18) [J]. Science of the Total Environment, 2020, 740: 140163.
- [31] LIAO Fu, WANG Guangcai, YI Lixin, et al. Applying radium isotopes to estimate groundwater discharge into Poyang Lake, the largest freshwater lake in China [J]. Journal of Hydrology, 2020, 585: 124782.
- [32] WANG Xihua, LIU Zejun, XU Y J, et al. Revealing nitrate sources seasonal difference between groundwater and surface water in China's largest fresh water lake (Poyang Lake): insights from sources proportion, dynamic evolution and driving forces [J]. Science of the Total Environment, 2025, 958: 178134.
- [33] MAO Hairu, WANG Guangcai, LIAO Fu, et al. Spatial variability of source contributions to nitrate in regional groundwater based on the positive matrix factorization and Bayesian model [J]. Journal of Hazardous Materials, 2023, 445: 130569.
- [34] MAO Hairu, WANG Guangcai, LIAO Fu, et al. Deciphering spatial pattern of groundwater chemistry and nitrogen pollution in Poyang Lake Basin (eastern China) using self-organizing map and multivariate statistics [J]. Journal of Cleaner Production, 2021, 329: 129697.
- [35] 方少文,王仕刚,欧阳千林. 鄱阳湖丰、平、枯水期界定标准探讨 [J]. 水文, 2022, 42(1): 11-15. (FANG Shaowen, WANG Shigang, OUYANG Qianlin, Discussion on the definition standard of the wet season, normal season and dry season in Poyang Lake [J]. Journal of China Hydrology, 2022, 42(1): 11-15. (in Chinese))
- [36] SEDGWICK P. Pearson's correlation coefficient [J]. Bmj, 2012, 345: e4483.
- [37] WANG Qingzheng, SHAO Wenyan, GUAN Qingyu, et al. The structural equation modeling constructed for runoff change attribution analysis outperforms traditional methods [J]. Journal of Hydrology, 2024, 636: 131317.
- [38] 陆帅帅,周念清,蔡奕,等. 洞庭湖湿地潜流带地下水中氮磷迁移转化过程及驱动机制分析 [J]. 水资源保护, 2024, 40(5): 122-130. (LU Shuaishuai, ZHOU Nianqing, CAI Yi, et al. Analysis of nitrogen and phosphorus migration and transformation and driving mechanism in hyporheic zone groundwater of Dongting Lake wetland [J]. Water Resources Protection, 2024, 40(5): 122-130. (in Chinese))
- [39] YANG Lin, SHEN Feixue, ZHANG Lei, et al. Quantifying influences of natural and anthropogenic factors on vegetation changes using structural equation modeling: a case study in Jiangsu Province, China [J]. Journal of Cleaner Production, 2021, 280: 124330.
- [40] JARDINE C, HRUDEY S, SHORTREED J, et al. Risk management frameworks for human health and environmental risks [J]. Journal of Toxicology and Environmental Health Part B: Critical Reviews, 2003, 6(6): 569-718.
- [41] JI Yujie, WU Jianhua, WANG Yuanhang, et al. Seasonal variation of drinking water quality and human health risk assessment in Hancheng City of Guanzhong Plain, China [J]. Exposure and Health, 2020, 12: 469-485.
- [42] WU Jianhua, ZHOU Hui, HE Song, et al. Comprehensive understanding of groundwater quality for domestic and agricultural purposes in terms of health risks in a coal mine area of the Ordos Basin, north of the Chinese Loess Plateau [J]. Environmental Earth Sciences, 2019, 78(15): 446.
- [43] ZHANG Xiao, WANG Xiaolei, ZHAO Xiaoli, et al. Using deterministic and probabilistic approaches to assess the human health risk assessment of 7 polycyclic aromatic hydrocarbons [J]. Journal of Cleaner Production, 2022, 331: 129811.
- [44] 吉玉洁. 韩城市饮水型氟病区改水前后水质及健康风险评价 [D]. 西安: 长安大学, 2021.
- [45] LIU Zejun, WANG Xihua, WAN Xi, et al. Evolution origin analysis and health risk assessment of groundwater

- environment in a typical mining area; insights from water-rock interaction and anthropogenic activities [J]. *Environmental Research*, 2024, 252; 118792.
- [46] WANG Ruiqi, QU Chengkai, LI Min, et al. Health risks of exposure to soil-borne dichloro diphenyl trichloroethanes (DDTs): a preliminary probabilistic assessment and spatial visualization [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 772; 144949.
- [47] CRASWELL E. Fertilizers and nitrate pollution of surface and ground water; an increasingly pervasive global problem [J]. *SN Applied Sciences*, 2021, 3(4): 518.
- [48] ZHOU Jie, ZHENG Yanling, HOU Lijun, et al. Effects of acidification on nitrification and associated nitrous oxide emission in estuarine and coastal waters [J]. *Nature Communications*, 2023, 14(1): 1380.
- [49] WEI Zhijun, JIN Ke, LI Chenglin, et al. Environmental factors controlling dissimilatory nitrate reduction to ammonium in paddy soil [J]. *Journal of Soil Science and Plant Nutrition*, 2022, 22(4): 4241-4248.
- [50] BOROS G, SØNDERGAARD M, TAKÁCS P, et al. Influence of submerged macrophytes, temperature, and nutrient loading on the development of redox potential around the sediment-water interface in lakes [J]. *Hydrobiologia*, 2011, 665; 117-127.
- [51] FEINER A S, MCEVOY A. The Nernst equation [J]. *Journal of Chemical Education*, 1994, 71(6): 493.
- [52] XIA Qiwen, HE Jiangtao, HE Baonan, et al. Effect and genesis of soil nitrogen loading and hydrogeological conditions on the distribution of shallow groundwater nitrogen pollution in the North China Plain [J]. *Water Research*, 2023, 243; 120346.
- [53] WANG Xihua, XU Y J, ZHANG Lei. Watershed scale spatiotemporal nitrogen transport and source tracing using dual isotopes among surface water, sediments and groundwater in the Yiluo River watershed, middle of China [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 833; 155180.
- [54] KARUNANIDHI D, ARAVINTHASAMY P, SUBRAMANI T, et al. Investigation of health risks related with multipath entry of groundwater nitrate using Sobol sensitivity indicators in an urban-industrial sector of South India [J]. *Environmental Research*, 2021, 200; 111726.
- [55] MOHAMMADPOUR A, SAMAEI M R, BAGHAPOUR M A, et al. Modeling, quality assessment, and Sobol sensitivity of water resources and distribution system in Shiraz: a probabilistic human health risk assessment [J]. *Chemosphere*, 2023, 341; 139987.
- [56] YANG Yi, ZHANG Ru, ZHANG Fengying, et al. Spatial-temporal variation and health risk assessment of fluoride in surface water in the Qinghai-Xizang Plateau [J]. *Exposure and Health*, 2023, 15(2): 281-297.
- [57] 李文璩. 铜川地区地下水污染源解析及健康风险评估 [D]. 西安: 长安大学, 2022.
- [58] YUE Fujun, LIU Congqiang, LI Siliang, et al. Analysis of $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ to identify nitrate sources and transformations in Songhua River, Northeast China [J]. *Journal of Hydrology*, 2014, 519; 329-339.
- [59] ZARYAB A, NASSERY H. R, KNOELLER K, et al. Determining nitrate pollution sources in the Kabul Plain aquifer (Afghanistan) using stable isotopes and Bayesian stable isotope mixing model [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 823; 153749.
- [60] MAO Hairu, WANG Guangcai, LIAO Fu, et al. Spatiotemporal variation of groundwater nitrate concentration controlled by groundwater flow in a large basin: evidence from multi-isotopes (^{15}N , ^{11}B , ^{18}O , and ^2H) [J]. *Water Resources Research*, 2024, 60(1): e2023WR035299.
- [61] TORRES-MARTÍNEZ J A, MORA A, MAHLKNECHT J, et al. Determining nitrate and sulfate pollution sources and transformations in a coastal aquifer impacted by seawater intrusion-a multi-isotopic approach combined with self-organizing maps and a Bayesian mixing model [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2021, 417; 126103.
- [62] JI Xiaoliang. , SHU Lielin, CHEN Wenli, et al. Nitrate pollution source apportionment, uncertainty and sensitivity analysis across a rural-urban river network based on $\delta^{15}\text{N}/\delta^{18}\text{O}$ - NO_3 -isotopes and SIAR modeling [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2022, 438; 129480.
- [63] CHEN Jing, LI Yunliang, SHU Longcang, et al. The influence of the 2022 extreme drought on groundwater hydrodynamics in the floodplain wetland of Poyang Lake using a modeling assessment [J]. *Journal of Hydrology*, 2023, 626; 130194.
- [64] CHEN Fajin, JIA Guodong, CHEN Jianyao. Nitrate sources and watershed denitrification inferred from nitrate dual isotopes in the Beiji River, South China [J]. *Biogeochemistry*, 2009, 94; 163-174.
- [65] HARRIS S J, CENDÓN D I, HANKIN S I, et al. Isotopic evidence for nitrate sources and controls on denitrification in groundwater beneath an irrigated agricultural district [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 817; 152606.
- [66] WANG Yuqin, WANG Guangcai, LIAO Fu, et al. Sources and fate of nitrate in the unsaturated zone in an alluvial-lacustrine plain [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2025; 490, 137721.

(收稿日期: 2025 - 04 - 09 编辑: 胡新宇)