长江中游河湖–地下水交互带地下水中氮素的时空分布特征及控制因素

高杰[1,2]，郭静[1,2]，蔡爱民[1,2]，杨虎成[3]，李亚云[1,2]，王艺霖[1,2]，池泽涌[4]，李伟[1,2]，赵德君[1,2*]

1. 湖北省地质局资源与生态环境地质湖北省重点实验室，武汉 430034；
2. 湖北省地质环境总站，武汉 430034；
3. 武汉市生态环境局东西湖区生态环境事务服务站，武汉 430034；
4. 江西省科学院微生物研究所，南昌 330096

第一作者，E-mail：2580343027@qq.com

* 通信作者，E-mail：zdjzby@163.com

2024-10-10 收稿；2025-06-03 修回；2025-06-23 接受

基金项目：湖北省自然科学基金地质联合基金项目(2023AFD223；2023AFD216)；国家自然科学基金青年基金项目(42207237)

中图分类号：P641；X143　　文章编号：2096-8523(2025)05-0247-10　　doi: 10.19509/j.cnki.dzkq.tb20240595

摘　要：河湖–地下水交互带的复杂结构驱动着营养盐的迁移转化与归宿，探究氮素在地下水中的时空分布特征及其控制因素对于水质和生态系统的保护具有重要指导意义。以长江中游河湖–地下水交互带为研究对象，分别于丰水期和枯水期采集 2 个承压水剖面以及 1 个潜水剖面的地下水样品，进行水文地球化学分析，并运用随机森林模型探讨了氮素富集的控制因素。结果表明：地下水中氮素的主要存在形态为铵氮(NH_4-N)，丰水期承压水 NH_4-N 质量浓度(0.37 ~ 4.96 mg/L，均值 2.07 mg/L)显著高于潜水(0 ~ 0.096 mg/L，均值 0.012 mg/L)。其低浓度 Cl^-/SO_4^{2-} 以及高浓度 CO_2/HCO_3^- 指示 NH_4-N 的富集与天然成因条件下含氮有机质矿化过程密切相关。相比承压水，潜水枯水期 NH_4-N 质量浓度(均值 1.25 mg/L)显著高于丰水期(均值 0.032 mg/L)，呈显著的季节性变化，且其 Fe/Mn 比值也相对较高。结合水位波动情况，潜水受人为活动影响较大，该含水层中 NH_4-N 富集后可进一步发生厌氧铁铵氧化过程。研究成果丰富了河湖–地下水交互带氮素赋存规律的认识，并可为氮循环相关的生物地球化学过程提供理论基础。

关键词：河湖–地下水交互带；水位波动；地下水；铵氮；有机质矿化；厌氧铁铵氧化；长江中游

地表水–地下水交互带是江河湖库等湿地生态系统结构与功能的重要控制地带。地下水是湿地水循环的重要组成部分，其对维持湿地生态系统健康起着重要的支撑作用[1-2]。众多研究表明，水体中氮素的污染趋势急剧增加，且铵态氮是不可忽视的重要形态，其更容易存在于缺氧的地下水环境中。NH_4-N 可通过地表水–地下水交互作用进入地表水中，导致地表水体富营养化，严重威胁供水安全[3-5]。

近些年，越来越多研究在地下水中发现高浓度 NH_4-N[6-7]。地下水中 NH_4-N 的富集主要来源于人为活动导致的外源输入以及天然地质成因条件下有机质矿化过程[8-9]。此外，阳离子交换过程中吸附/解吸附以及氮的转化对 NH_4-N 的富集也具有重要的控制作用[10-12]。地下水中 NH_4-N 的转化过程非常复杂，涉及到的生物地球化学过程包括有机物(有机氮)矿化和异化硝酸盐还原[13-14] 作用下 NH_4-N 的产生过程，以及硝化[15-16]、厌氧氨氧化[17-18] 和厌氧铁铵氧化[19-21] 作用下 NH_4-N 的去除过程。其中，厌氧铁铵氧化作为控制 NH_4-N 衰减的关键过程，是地下水系统氮循环过程的研究热点，其在微生物作用下可被

著录信息：高杰，郭静，蔡爱民，等. 长江中游河湖–地下水交互带地下水中氮素的时空分布特征及控制因素 [J]. 地质科技通报，2025，44(5)：247-256.
GAO Jie，GUO Jing，CAI Aimin，et al. Spatial-temporal distribution characteristics and driving factors of nitrogen in groundwater of river-lake-groundwater interaction zone along middle reaches of the Yangtze River[J]. Bulletin of Geological Science and Technology，2025，44(5)：247-256.

© Editorial Office of Bulletin of Geological Science and Technology. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license.　https://dzkjtb.cug.edu.cn

三价铁氧化并最终产生氮气[19]。此外，地下水中溶解氧和有机质浓度等地球化学条件的变化，也会影响微生物作用下的氮循环过程并进一步控制氮的富集[22-23]。

长江中游平原区作为研究热点区域，地下水中 NH_4-N 的迁移转化与归宿受控于水位波动条件下复杂的生物地球化学过程[24-26]。长江沿岸以及天鹅洲湿地等典型湿地单元地下水中 NH_4-N 均呈现显著的空间及时间的异质性分布特征[7, 27]。越来越多证据表明浅层地下水氧化条件下高价态硝酸盐主要受人为活动输入影响，而深层地下水和部分浅层地下水的 NH_4-N 则主要来源于天然有机氮的矿化作用[27]。此外，水位波动条件下有机质的输入和氧化还原环境等的改变均会导致地下水中 NH_4-N 的季节性波动[27-28]。

虽然众多研究分析了长江中游河湖发育区不同湿地单元 NH_4-N 的分布规律及富集机制，但对位于长江、湖泊之间的河湖过渡带地下水系统中的 NH_4-N 分布规律和控制要素等的认识有限。本研究以长江中游河湖–地下水交互带为典型研究区，以潜水和承压水为研究对象，基于丰水期和枯水期系统的水文地球化学监测，识别地下水中 NH_4-N 分布的时空变化规律，查明地下水系统中 NH_4-N 富集的关键影响因子，从而为湿地生态系统的保护与修复提供关键理论支撑。

1　材料与方法

1.1　研究区概况

本研究河湖–地下水交互带研究区是指长江和洪湖与地下水之间相互交换、混合的区域。洪湖地区气候属于亚热带湿润季风气候，多年平均降雨量为 1 000 ~ 1 300 mm，多年平均气温为 16.3 ~ 16.6℃。

洪湖地区地形较为开阔平坦，由全新世时期形成的冲积和冲湖积地层构成。其上部主要由黏土和亚砂土构成，厚度 6 ~ 14 m。研究区地下水主要由浅层第四系松散岩类孔隙潜水与孔隙承压水构成。全新统砂、砂砾石则是第四系松散岩类承压水的组成部分，水量极为丰富[25]。

研究区于交互带布设有多层监测剖面，包括 1 条潜水剖面和 2 条承压水剖面，其中，潜水剖面有 8 个 10 m 深度的监测孔，2 条承压水剖面有 15 个 50 m 深度的监测孔。此外，在剖面外还有 3 个 50 m 深度的监测孔。

1.2　样品采集与预处理

本研究于 2021 年 8 月至 2022 年 7 月在区域内开展了水样水位监测工作，共采集 26 组地下水样品（图 1），其中承压水剖面 1 包含 8 组地下水样品（CG1 ~ CG8），承压水剖面 2 包含 7 组地下水样品（CG9 ~ CG15），潜水剖面包含 8 组地下水样品（SG1 ~ SG8）。



图 1　研究区位置及地下水采样点分布图

Fig. 1　Location of the study area and distribution of groundwater sampling points

此外，用于丰水期和枯水期比对的承压水井包含 3 组地下水样品（CG16 ~ CG18），潜水井也包含 3 组地下水样品（SG2、SG3、SG5）（图 1）。

地下水样品均通过国家或湖北省监测工程站点进行采集。用于测阳离子的水样过滤后加入优级纯浓 HNO_3 至 pH＜2。用于测阴离子的水样直接密封保存。用于测碱度的水样使用封口膜密封后均保存至 4℃ 条件下，用于后续分析测试。用于测游离 CO_2 的水样取满瓶后在低于取样时的温度下密封保存，分析前不应打开瓶塞并尽快测定。

1.3　测试方法

pH 值使用便携式双通道多参数水质分析仪现场测定。NH_4-N、Fe(Ⅱ)和 S(−Ⅱ)的质量浓度使用便携式分光光度计现场测定。NH_4-N 和 Fe(Ⅱ)质量浓度的检出限为 0.01 mg/L，S(−Ⅱ)的检出限为 1 μg/L。HCO_3^-质量浓度用盐酸于 24 h 内用酸碱中和法进行测定。阳离子采用电感耦合等离子体光谱进行测定，最低检出限为 0.001 mg/L，测试精度为±3%。阴离子采用离子色谱仪测定，最低检出限

为 0.01 mg/L, 测试精度也为±3%。游离 CO_2 依据《地下水质分析方法第 47 部分: 游离二氧化碳的测定滴定法》(DZ/T0064.47-2021)[29] 测定。化学需氧量(*COD*)采用高锰酸钾法进行测试。

1.4 数据来源与分析

交互带地下水水位监测数据来源于湖北省地质环境总站地下水环境监测点; 水文数据来源于湖北省水文水资源中心洪湖挖沟咀水位站、长江螺山水文站逐日平均水位数据。

本研究运用 R 语言通过随机森林模型处理高维度数据。模型处理结果能够得出不同控制因子对目标因子(NH_4-N)特征重要性的大小。本研究选择 pH、Cl^-、Fe 及 Mn 等作为输入变量, NH_4-N 作为独立的目标变量, 最终得到不同输入变量对 NH_4-N 特征重要性的散点图。

2 结果与讨论

2.1 丰水期地下水中氮的空间分布特征

研究区承压水剖面地下水中 NH_4-N 的质量浓度显著高于潜水剖面地下水中 NH_4-N 的质量浓度。潜水中 NH_4-N 质量浓度均值为 0.012 mg/L, 承压水中 NH_4-N 质量浓度均值为 2.07 mg/L, 超过 NH_4-N《地下水质量标准》(GB/T14848-2017)[30] 中的 V 类。相比 NH_4-N, 潜水以及承压水中 NO_3^-和 NO_2^-的质量浓度均较低。其中, 潜水中 NO_3^-质量浓度多数均低于检出限, NO_2^-质量浓度范围为 0.015 ~ 0.11 mg/L; 承压水中 NO_3^-质量浓度范围为 0.013 ~ 0.037 mg/L, NO_2^-质量浓度均低于检出限。综上可知, 潜水总体上呈现“低 NO_3^-、低 NH_4-N”的特征, 承压水则表现出“低 NO_3^-、高 NH_4-N”的特征(图 2)。

不同于 NH_4-N 的分布特征, 潜水中 Cl^-及 SO_4^{2-}的质量浓度显著高于承压水。潜水中 Cl^-质量浓度范围为 4.79 ~ 13.77 mg/L, 均值为 10.31 mg/L; SO_4^{2-}质量浓度范围为 7.20 ~ 30.74 mg/L, 均值为 10.31 mg/L。承压水中 Cl^-质量浓度范围为 0.55 ~ 18.50 mg/L, 均值为 3.85 mg/L; SO_4^{2-}质量浓度范围为 0.072 ~ 22.40 mg/L, 均值为 2.79 mg/L(图 3a, b)。

丰水期潜水中高 Cl^-及 SO_4^{2-}质量浓度表明其受到人为活动输入的影响。有研究表明浅层地下水中 Cl^-质量浓度能够在一定程度上反映含水层环境状况。因平原地区地表沉积物中无蒸发岩存在, 且 Cl^-一般不参与大规模离子交换反应, 其质量浓度通常较为稳定。然而, 污水排放、肥料使用等人类活动的外源输入会导致地下水中 Cl^-质量浓度异常升高。因此, 通过比较研究区地下水中 Cl^-质量浓度相对高低, 可指示地下水是否受到外源输入影响[31-32]。同理, 地下水中 SO_4^{2-}质量浓度异常升高, 也与外源输入相关[33]。不同于江汉平原天鹅洲湿地浅层地下水 NH_4-N 质量浓度整体高于深层地下水的研究结果[27], 河湖–地下水交互带潜水 NH_4-N 质量浓度极低, 且显著低于承压水。虽然研究表明外源输入会导致浅层地下水中富集 NH_4-N, 但受地球化学过程的综合控制, 如厌氧铵氧化和厌氧铁铵氧化等过程的影响, 地下水中 NH_4-N 浓度会衰减[27]。相比之下, 承压水可能因上覆黏土层较厚, 缺乏与外界的水力联系, NH_4-N 的富集主要来源于原位有机质的矿化作用[9]。

丰水期承压水中 HCO_3^-和 CO_2 质量浓度显著高于潜水。其中, 潜水的 HCO_3^-质量浓度范围为 309.14 ~ 541.76 mg/L, 平均值为 439.22 mg/L; CO_2 质量浓度范围为 3.45 ~ 15.53 mg/L, 平均值为 8.85 mg/L。相比之下, 承压水中 HCO_3^-的质量浓度范围为 516.78 ~ 756.00 mg/L, 平均值为 642.99 mg/L; CO_2 的质量浓度范围为 22.40 ~ 46.60 mg/L, 平均值为 31.13 mg/L(图 3c, d)。

综上, 承压水中高 HCO_3^-和 CO_2 质量浓度进一

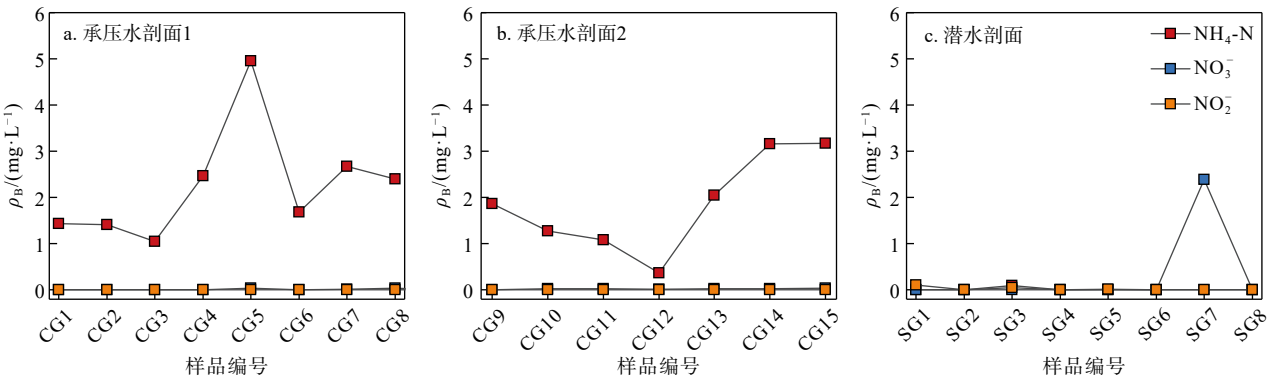


图 2 丰水期不同剖面地下水中 NH_4-N、NO_3^-以及 NO_2^-质量浓度变化图

Fig. 2 Change of the concentration of NH_4-N, NO_3^-, NO_2^- in groundwater of different profiles during monsoon season

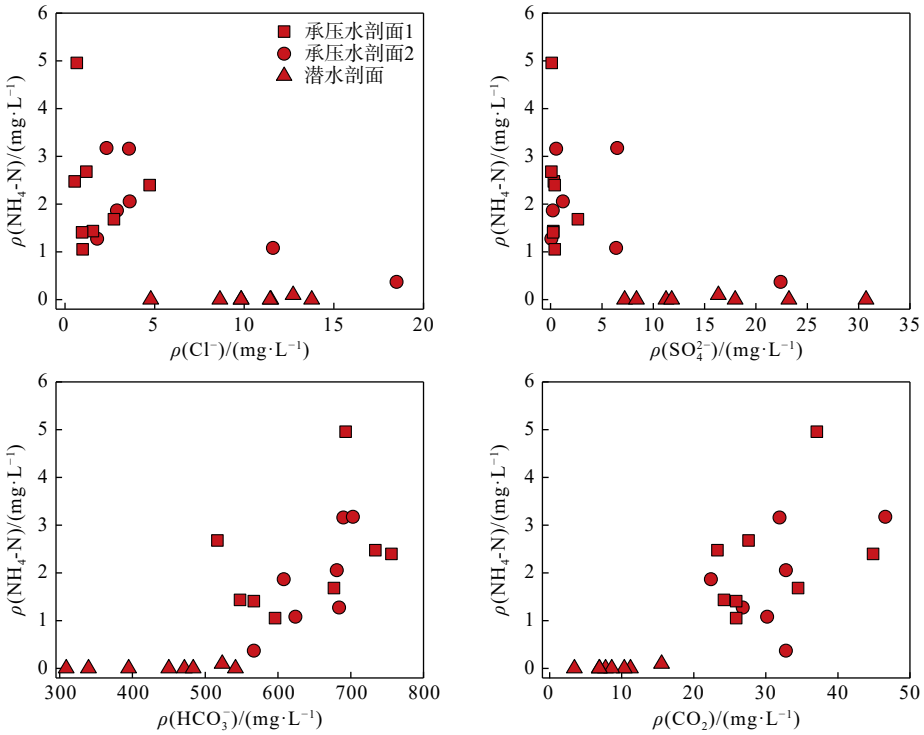


图 3　丰水期不同剖面地下水中 NH_4-N 与不同化学组分的相关性图

Fig. 3　Relationship between NH_4-N and different chemical component in groundwater of different profiles during monsoon season

步表明，含氮有机质矿化过程可能是地质成因控制条件下承压含水层 NH_4-N 富集的重要过程[34-35]。在有机质的矿化过程中，有机氮可以活性氮形式进入水生环境内部并转化为无机氮[36-37]。因此，伴随着有机质分解，会产生一定质量浓度 CO_2，其与 OH^-结合可进一步生成 HCO_3^-[38]。HCO_3^-和 NH_4-N 是上述过程的主要产物。有研究利用因子分析法对长江中游沿岸承压水中铵氮的控制因素展开分析，结果表明在贡献率较高的公共因子 $F1$ 中，HCO_3^-的因子载荷较高，并与 $F1$ 呈正相关[7]。因此，该结果证明承压水中的高 HCO_3^-和 CO_2 质量浓度可能指示着高强度的氮矿化过程。此外，众多研究发现江汉平原承压水处于富含有机质的强还原环境中，有利于 NH_4-N 的富集[39-41]。

2.2　水位波动条件下地下水中氮的赋存规律

河湖–地下水交互带地表水和地下水频繁的交换、混合作用可显著改变地下水中的生物地球化学环境，从而进一步影响氮的迁移转化和归宿[42]。本研究中该过程受洪湖与长江和地下水之间存在着复杂的水文和水动力交互作用影响。当地表水水位超过地下水水位时，地表水通过交互带补给地下水；反之，地下水通过交互带排泄至地表水。

结合河湖–地下水水位波动情况，承压水与长江水位的变化趋势相似，然而长江水位的波动对潜水水位的变化趋势并无显著影响。相比之下，潜水水位的变化趋势更接近于洪湖水位的波动(图 4)。由于洪湖周边潜水含水层渗透性较差，其只与近岸潜水发生交互作用[43]。洪湖水位波动很大程度上受人为调蓄控制，其丰、枯水期与潜水的水位差异较小，因此补排关系较为复杂，需要进一步结合含水层水化学条件对其交互作用进行判别。

水位波动条件下，研究区承压水中 NH_4-N 的质量浓度相对较高，且其质量浓度在丰水期(平均值 1.27 mg/L)和枯水期(平均值 1.58 mg/L)的差异较小(图 5)。此外，地下水中 HCO_3^-，CO_2 以及 Ca，Mg 的质量浓度也基本无差异(图 6)。研究表明，Ca，Mg 质量浓度变化可指示地表水–地下水相互作用中吸附和解吸附过程对地下水 NH_4-N 浓度的影响。该过程中阳离子交换是影响 NH_4-N 迁移转化的关键机制[3]。本研究中 Ca，Mg 的质量浓度无显著变化。因此，水位波动条件下，解吸附过程可能对 NH_4-N 富集的影响差异较小。同 NH_4-N 变化趋势一致，在承压井 CG16 以及 CG18 地下水中，Fe，Mn 作为氧化还原敏感元素，其质量浓度差异也较小(图 6)。另外，COD 作为衡量水中有机物质量浓度高低的综合指标之一，其可反映承压水在水位波动条件下有机质质量浓度变化。在丰水期与枯水期，承压水中 COD 质量浓度也无显著变化(表 1)。研究表明有机质输

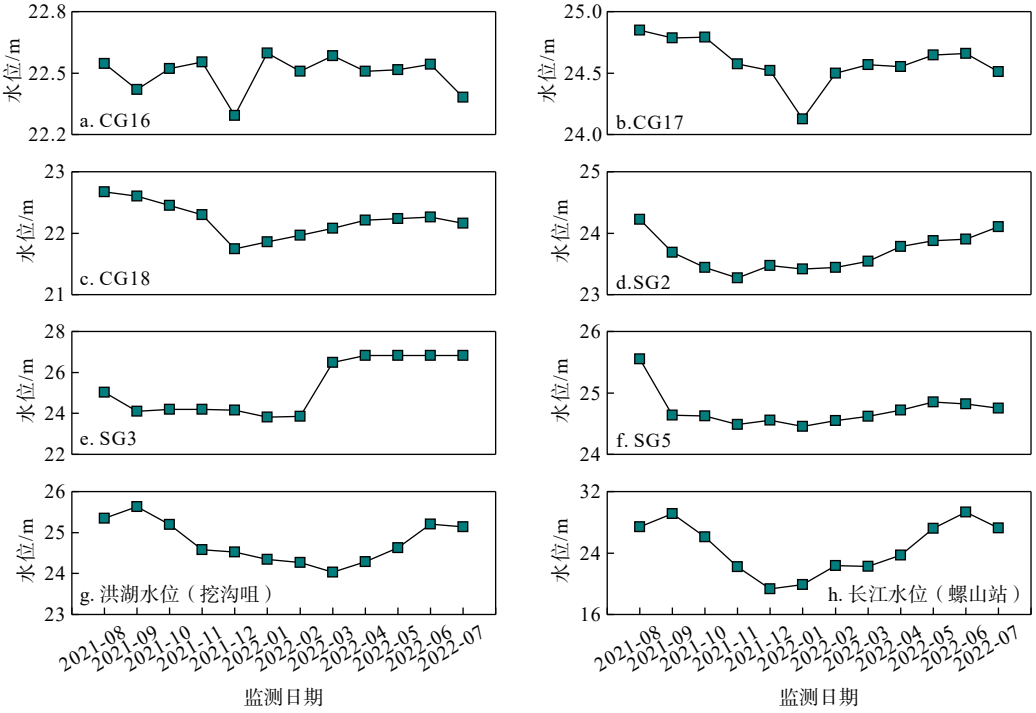


图 4　地下水水位（承压水（a ~ c）和潜水（d ~ f））以及地表水水位（g, h）变化图

Fig. 4　Change of the groundwater level (confined groundwater (a-c) and phreatic water (d-f)) and surface water level (g, h)

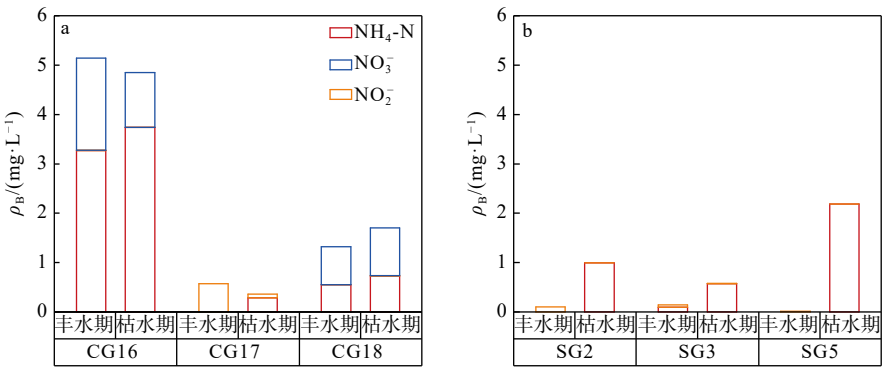


图 5　丰水期和枯水期承压水 (a) 以及潜水 (b) 中 NH_4-N、NO_3^-以及 NO_2^-质量浓度变化图

Fig. 5　Change of the concentration of NH_4-N, NO_3^-, NO_2^- in confined groundwater (a) and phreatic water (b) during monsoon season and non-monsoon season

入对 NH_4-N 源–汇中的矿化作用十分强烈[27]，因此季节性变化对于承压水氮矿化过程的影响也较小。上述证据均指示水位波动条件下承压水的水化学条件改变较小。承压水所在含水层因上覆黏土层较厚，缺乏与外界的水力联系。相比之下，承压井 CG17 地下水可能受水位波动影响，枯水期 Fe, Mn 质量浓度显著高于丰水期(图 6)。该现象可能与不同的氮循环过程相关。枯水期氮素的主要存在形态为 NH_4-N，有研究发现，厌氧条件下铁铵氧化微生物可以 Fe(Ⅲ)作为电子受体，以 NH_4-N 作为电子供体，该过程可生成大量 Fe(Ⅱ)[5]。相反，丰水期其氮素的主要存在形态则为 NO_2^-，当水位波动输入氧气的条件下，在硝化微生物作用下，可将 NH_4-N 氧化成硝态氮[15]。

相比承压水，水位波动条件下潜水中 NH_4-N 的质量浓度在丰水期以及枯水期差异较为显著。虽然潜水中 NH_4-N 的质量浓度相对较低，但其枯水期(平均值 1.25 mg/L)NH_4-N 质量浓度显著高于丰水期(平均值 0.032 mg/L)(图 5)。根据水位波动情况，枯水期洪湖受人为调蓄作用，其水位高于潜水水位，地表水可补给地下水。潜水由于更靠近地表水体，与地表水存在优先渗流通道。相较丰水期，枯水期 COD 质量浓度也显著较高，该结果进一步表明地表水–地下水交互过程中有较多外源有机质输入地下水，此

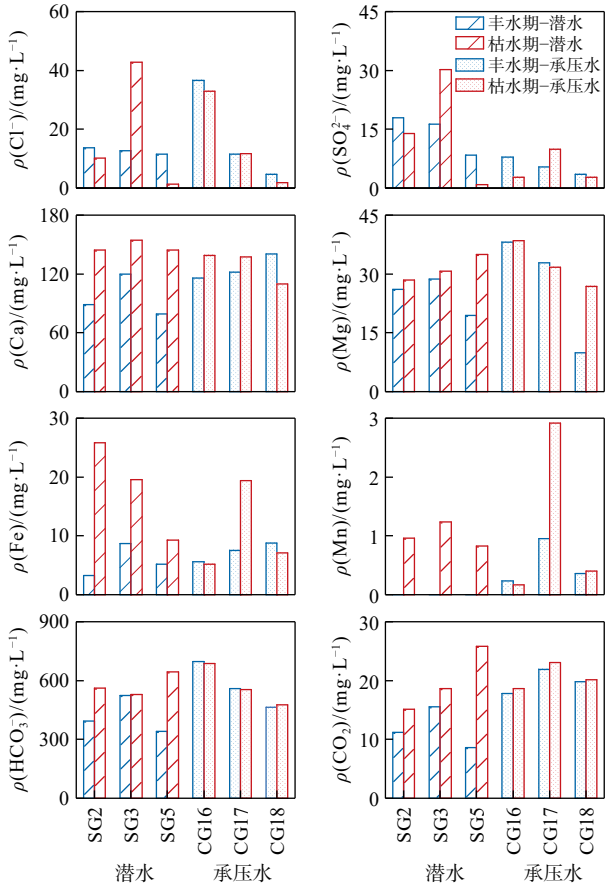


图 6　丰水期和枯水期承压水以及潜水中不同化学组分的变化图

Fig. 6　Change of different chemical component in confined groundwater and phreatic water during monsoon season and non-monsoon season

表 1　丰水期和枯水期承压水以及潜水中 COD 质量浓度

Table 1　Change of the concentration of COD in confined groundwater and phreatic water during monsoon season and non-monsoon season　ρ_B/(mg·L^{-1})

采样期	承压水			潜水		
	CG16	CG17	CG18	SG2	SG3	SG5
枯水期	2.22	3.04	0.98	5.18	5.92	3.29
丰水期	2.35	2.80	1.13	3.76	3.13	1.76

过程更利于 NH_4-N 的富集。另外，其硝态氮形态以低质量浓度亚硝态氮为主。在反硝化等微生物作用下，硝态氮可能在后续被还原为气态氮，因此水体中硝态氮质量浓度显著降低[16, 44]。此外，在枯水期 Fe, Mn 质量浓度也显著高于丰水期。相比丰水期，枯水期地表水补给地下水可给地下水带来氧气，该过程并不利于铁氧化物矿物的还原性溶解[45]。因此，推测显著的高质量浓度 Fe, Mn 可能与地下水铵氮源−汇中的生物地球化学过程相关，厌氧铁铵氧化过程的发生可促进地下水中 Fe(Ⅱ)的富集[27]。研究表明，地表水−地下水交互过程中氧化还原条件的波动以及外源有机质的输入是促进铁铵氧化过程发生的关键要素，且浅层地下水相比深层地下水更易发生此过程[18, 27-28]。此外，锰−氮组分的相互作用也可使不同氮组分之间的转化变得更为复杂[45]。

2.3　地下水中铵氮富集的控制要素及其环境指示意义

随机森林模型计算结果显示丰水期地下水中对 NH_4-N 富集影响程度较高的特征重要性分别为游离 CO_2(44.68%)、Fe(40.69%)、HCO_3^-(34.18%)、Cl^-(31.84%)、Mn(18.20%)(图 7)。

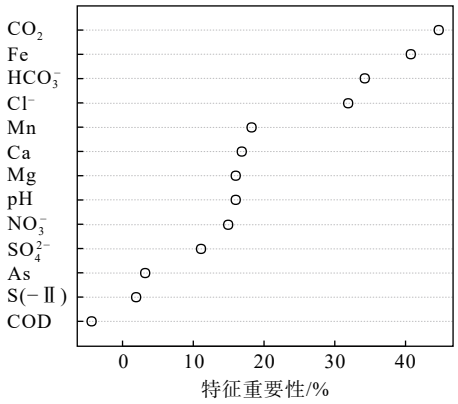


图 7　随机森林模型各影响因子对 NH_4-N 的特征重要性

Fig. 7　Characteristic importance of each influencing factor to ammonium by the random forest model

无机碳(CO_2, HCO_3^-)较高的重要性指示着高浓度 NH_4-N 可能伴随着含氮有机质分解为无机碳的过程，即含氮有机质矿化过程，HCO_3^-和 NH_4-N 是上述过程主要的产物[7, 36-37]，CO_2 与 HCO_3^-之间可相互转化。此外，地下水中 Cl^- 与 NH_4-N 的富集也具有紧密联系。Cl^-质量浓度的高低指示着人为活动的影响程度[33]。在人为活动影响下外源有机质、氧气等的输入可通过促进氮矿化等过程的发生，从而进一步促进 NH_4-N 的富集[27]。Fe, Mn 对于 NH_4-N 富集的重要性，则可能主要体现在强还原且富有机质环境中高价态 Fe, Mn 的还原性溶解过程，该环境同时利于 NH_4-N 的富集[39]。此外，厌氧铁铵氧化等过程的发生，也可通过参与氮−铁循环相关的生物地球化学过程综合调控 NH_4-N 的质量浓度[27]。上述过程不仅会影响 Fe, Mn, NH_4-N 等的富集，还会进一步控制砷(As)等重金属的迁移转化[46]。

根据地下水位与地表水位的波动情况(图 4)，虽然丰水期地表水位显著高于地下水，因承压含水层上覆较厚的黏土层，外源物质不易输入深层含水层

(图 1)。枯水期与丰水期 DOC 质量浓度基本无变化(表 1)。因此，承压水中 NH_4-N 等的富集受原位的地球化学条件控制。承压水中高质量浓度 S(－Ⅱ)指示着地下水为较强的还原性环境[47] (图 8)。虽然地下水中 Fe(Ⅱ)质量浓度较低，As 质量浓度较高。承压含水层中铁氧化物矿物的还原性溶解可显著促进 As 的释放，该过程中生成的 Fe(Ⅱ)可与 S(－Ⅱ)结合形成硫化亚铁类矿物，可使 Fe(Ⅱ)质量浓度显著降低[47]。此外，伴随着 S(－Ⅱ)质量浓度的升高，地下水中 NH_4-N 的质量浓度也相对较高。该结果同长江中游沿岸地下水中 NH_4-N 的赋存规律一致，即高质量浓度 S(－Ⅱ)可伴生大量的 NH_4-N[7]。

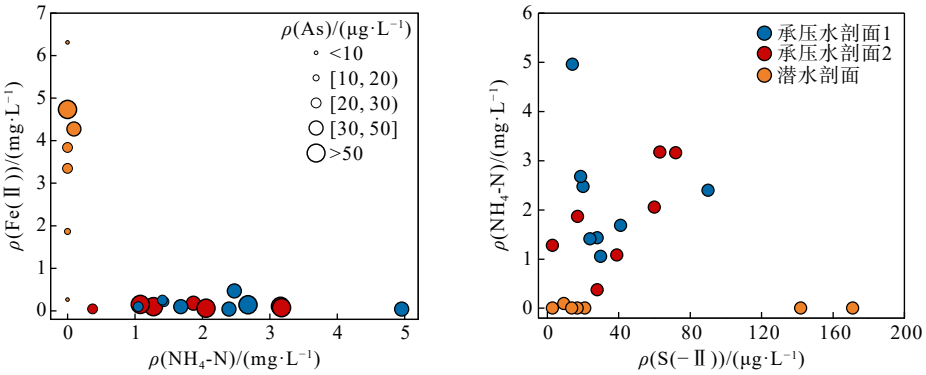


图 8　丰水期不同剖面地下水中 NH_4-N 与 As，Fe（Ⅱ），S（－Ⅱ）质量浓度的相关性图

Fig. 8　Relationship among NH_4-N and As, Fe(Ⅱ), S(－Ⅱ) mass concentration in groundwater of different profiles during monsoon season

不同于承压水，潜水水位与地表水水位差异较小(图 4)。在洪湖人为调蓄作用下，地表水–地下水频繁的交互作用使得 NH_4-N 的富集过程更为复杂多变，可能受人为活动影响下与氮循环相关的生物地球化学过程的综合调控[48-49]。丰水期潜水中氮素以低质量浓度亚硝态氮和 NH_4-N 为主(图 5, 8)。一方面该过程可能在反硝化以及厌氧氨氧化等脱氮过程作用下，硝态氮以及 NH_4-N 质量浓度显著降低[17-18]；另一方面，人为活动外源物质输入条件下低 NH_4-N 以及高 Fe(Ⅱ)质量浓度可能指示着厌氧铁铵氧化过程的发生[50](图 8)。该过程在微生物介导下，NH_4-N 被 Fe(Ⅲ)氧化，最终产生氮气以及 Fe(Ⅱ)[19-21]。此外，伴随着 Fe(Ⅱ)质量浓度增长，地下水中 As 质量浓度的增长表明厌氧铁铵氧化过程中铁氧化物矿物的还原性溶解可能在高砷地下水的形成中也发挥着重要作用(图 8)。相比之下，Fe(Ⅱ)质量浓度最高的地下水中 As 质量浓度则较低(图 8)。研究表明，当 S/Fe 比值较低时(图 8)，生成的次生矿物，如磁铁矿、针铁矿等，可将释放的 As 再次吸附至矿物表面[46,51]。

综上，季节性水动力条件的变化可通过改变原位含水层的地球化学条件而影响 NH_4-N 的富集过程，且该过程受多个与氮循环相关的生物地球化学过程综合调控，并可间接影响其他化学组分(As、Fe、Mn 等)的迁移转化过程。

3　结　论

(1)丰水期河湖–地下水交互带承压水中 NH_4-N 质量浓度显著高于潜水。承压水中 NH_4-N 的富集与天然地质成因条件下有机质矿化过程密切相关，潜水受人为活动输入的影响相对更大。

(2)水位波动条件下，由于人为对洪湖的调蓄作用，潜水在枯水期与地表水的交互作用频繁，NH_4-N 质量浓度显著高于丰水期，呈显著的季节性变化。该含水层中高 Fe, Mn 以及 NH_4-N 指示潜水中可发生厌氧铁铵氧化过程，其可显著影响 NH_4-N 的富集。

(3)NH_4-N 的富集受与氮循环相关的生物地球化学过程综合调控，其中厌氧铁铵氧化等过程的发生不仅会影响 NH_4-N 的富集，还可同时影响其他化学组分(As、Fe、Mn 等)的迁移转化过程。

所有作者声明无利益冲突。

The authors declare that no competing interests exist.

参考文献：

[1] HAVRIL T, TÓTH Á, MOLSON J W, et al. Impacts of predicted climate change on groundwater flow systems: Can wetlands disappear due to recharge reduction?[J]. Journal of Hydrology, 2018, 563: 1169-1180.

[2] REZANEZHAD F, COUTURE R M, KOVAC R, et al. Water table fluctuations and soil biogeochemistry: An experimental approach using an automated soil column system[J]. Journal of Hy-

drology, 2014, 509: 245-256.

[3] 张安广, 梁莹, 马瑞. 地表水−地下水相互作用下 NH_4-N 的吸附/解吸行为及其对 N 迁移转化的影响 [J]. 地球科学, 2024, 49(10): 3761-3772.
ZHANG A G, LIANG Y, MA R. Adsorption/desorption behavior of NH_4-N under surface water-groundwater interaction and its impact on N migration and transformation[J]. Earth Science, 2024, 49(10): 3761-3772. (in Chinese with English abstract)

[4] YANG W H, WEBER K A, SILVER W L. Nitrogen loss from soil through anaerobic ammonium oxidation coupled to iron reduction[J]. Nature Geoscience, 2012, 5(8): 538-541.

[5] XIONG Y J, DU Y, DENG Y M, et al. Feammox in alluvial-lacustrine aquifer system: Nitrogen/iron isotopic and biogeochemical evidences[J]. Water Research, 2022, 222: 118867.

[6] RAKHIMBEKOVA S, O'CARROLL D M, OLDFIELD L E, et al. Spatiotemporal controls on septic system derived nutrients in a nearshore aquifer and their discharge to a large lake[J]. Science of the Total Environment, 2021, 752: 141262.

[7] 冷智超, 杜尧, 陶艳秋, 等. 长江中游沿岸地下水中铵氮与磷的共存规律及其控制因素 [J]. 地质科技通报, 2022, 41(1): 300-308.
LENG Z C, DU Y, TAO Y Q, et al. Coexistence and controlling factors of ammonium and phosphorus in groundwater along the middle reaches of the Yangtze River[J]. Bulletin of Geological Science and Technology, 2022, 41(1): 300-308. (in Chinese with English abstract)

[8] YU L, ROZEMEIJER J C, BROERS H P, et al. Drivers of nitrogen and phosphorus dynamics in a groundwater-fed urban catchment revealed by high-frequency monitoring[J]. Hydrology and Earth System Sciences, 2021, 25(1): 69-87.

[9] DU Y, DENG Y M, LIU Z H, et al. Novel insights into dissolved organic matter processing pathways in a coastal confined aquifer system with the highest known concentration of geogenic ammonium[J]. Environmental Science & Technology, 2021, 55(21): 14676-14688.

[10] JELLALI S, DIAMANTOPOULOS E, KALLALI H, et al. Dynamic sorption of ammonium by sandy soil in fixed bed columns: Evaluation of equilibrium and non-equilibrium transport processes[J]. Journal of Environmental Management, 2010, 91(4): 897-905.

[11] JIANG Q H, JIN G Q, TANG H W, et al. Ammonium (NH_4^+) transport processes in the riverbank under varying hydrologic conditions[J]. Science of the Total Environment, 2022, 826: 154097.

[12] YAN A L, GUO X Y, HU D H, et al. Reactive transport of NH_4^+ in the hyporheic zone from the ground water to the surface water[J]. Water, 2022, 14(8): 1237.

[13] RÜTTING T, BOECKX P, MÜLLER C, et al. Assessment of the importance of dissimilatory nitrate reduction to ammonium for the terrestrial nitrogen cycle[J]. Biogeosciences, 2011, 8(7): 1779-1791.

[14] KRAFT B, TEGETMEYER H E, SHARMA R, et al. The environmental controls that govern the end product of bacterial nitrate respiration[J]. Science, 2014, 345: 676-679.

[15] 杜尧. 江汉平原地表水−地下水相互作用及其对铵氮迁移转化的影响 [D]. 武汉: 中国地质大学(武汉), 2017.
DU Y. Surface water-groundwater interaction and its effect on ammonium transport and fate in Jianghan Plain, central China[D]. Wuhan: China University of Geosciences (Wuhan), 2017. (in Chinese with English abstract)

[16] LUTZ S R, TRAUTH N, MUSOLFF A, et al. How important is denitrification in riparian zones? combining end-member mixing and isotope modeling to quantify nitrate removal from riparian groundwater[J]. Water Resources Research, 2020, 56(1): e2019WR025528.

[17] ZHU G B, WANG S Y, WANG W D, et al. Hotspots of anaerobic ammonium oxidation at land-freshwater interfaces[J]. Nature Geoscience, 2013, 6(2): 103-107.

[18] ZHAO Y Q, XIA Y Q, KANA T M, et al. Seasonal variation and controlling factors of anaerobic ammonium oxidation in freshwater river sediments in the Taihu Lake region of China[J]. Chemosphere, 2013, 93(9): 2124-2131.

[19] 郭华明, 高志鹏, 修伟. 地下水氮循环与砷迁移转化耦合的研究现状和趋势 [J]. 水文地质工程地质, 2022, 49(3): 153-163.
GUO H M, GAO Z P, XIU W. Research status and trend of coupling between nitrogen cycle and arsenic migration and transformation in groundwater systems[J]. Hydrogeology & Engineering Geology, 2022, 49(3): 153-163. (in Chinese with English abstract)

[20] BUSS S R, HERBERT A W, MORGAN P, et al. A review of ammonium attenuation in soil and groundwater[J]. Quarterly Journal of Engineering Geology and Hydrogeology, 2004, 37(4): 347-359.

[21] GUAN Q S, CAO W Z, WANG M, et al. Nitrogen loss through anaerobic ammonium oxidation coupled with iron reduction in a mangrove wetland[J]. European Journal of Soil Science, 2018, 69(4): 732-741.

[22] MOSLEY O E, GIOS E, CLOSE M, et al. Nitrogen cycling and microbial cooperation in the terrestrial subsurface[J]. The ISME Journal, 2022, 16(11): 2561-2573.

[23] 朱鹏光, 甘义群, 赖咏毅, 等. 海南东寨港红树林湿地沉积物氮形态空间分布特征及影响因素 [J]. 地质科技通报, 2023, 42(1): 369-377.
ZHU P G, GAN Y Q, LAI Y Y, et al. Spatial distribution and controlling factors of sediment nitrogen forms in the mangrove wetland at Dongzhai Port, Hainan Province[J]. Bulletin of Geological Science and Technology, 2023, 42(1): 369-377. (in Chinese with English abstract)

[24] DU Y, DENG Y M, LI Y P, et al. Paleo-geomorphology determines spatial variability of geogenic ammonium concentration in quaternary aquifers[J]. Environmental Science & Technology, 2023, 57(14): 5726-5738.

[25] SHEN S, LUO K W, MA T, et al. Nitrogen burial characteristics of Quaternary sediments and its controls on high ammonium groundwater in the Central Yangtze River Basin[J]. Science of the Total Environment, 2022, 842: 156659.

[26] SHEN S, MA T, DU Y, et al. Contrastive mechanisms of groundwater ammonium enrichment in different hydrogeologic settings[J]. Science of the Total Environment, 2023, 875: 162542.

[27] 罗可文. 天鹅洲湿地区地下水中铵氮源−汇的动态变化机制 [D]. 武汉: 中国地质大学(武汉), 2023.
LUO K W. Dynamic change mechanism of NH_4^+ source-sink in the groundwater of Tianezhou wetland area[D]. Wuhan: China University of Geosciences (Wuhan), 2023. (in Chinese with English abstract)

[28] 熊耀劲. 典型冲湖积平原地下水系统中厌氧铁铵氧化过程的识别与控制因素研究 [D]. 武汉：中国地质大学(武汉), 2023.
XIONG Y J. Identification and controlling factors of feammox in groundwater system of typical alluvial-lacustrine plain [D]. Wuhan: China University of Geosciences (Wuhan), 2023. (in Chinese with English abstract)

[29] 中华人民共和国自然资源部. 地下水质分析方法第 47 部分：游离二氧化碳的测定滴定法：DZ/T0064.47-2021[S]. 北京：中国标准出版社, 2021.
Ministry of Natural Resources of the People's Republic of China. Part 47 of the analytical methods for groundwater quality-titration method for determination of free carbon dioxide: DZ/T0064.47-2021[S]. Beijing: Standards Press of China, 2021. (in Chinese)

[30] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 地下水质量标准：GB/T14848-2017[S]. 北京：中国标准出版社, 2017.
General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, National Standardization Administration. Standard for groundwater quality: GB/T14848-2017[S]. Beijing: Standards Press of China, 2017. (in Chinese)

[31] MCARTHUR J M, SIKDAR P K, HOQUE M A, et al. Waste-water impacts on groundwater: Cl/Br ratios and implications for arsenic pollution of groundwater in the Bengal Basin and Red River Basin, Vietnam[J]. Science of the Total Environment, 2012, 437: 390-402.

[32] 吴海燕, 傅世锋, 蔡晓琼, 等. 东山岛地下水“三氮”空间分布特征 [J]. 环境科学, 2015, 36(9): 3203-3211.
WU H Y, FU S F, CAI X Q, et al. Spatial variation of ammonia-N, nitrate-N and nitrite-N in groundwater of Dongshan Island[J]. Environmental Science, 2015, 36(9): 3203-3211. (in Chinese with English abstract)

[33] 黄艳雯, 杜尧, 徐宇, 等. 洞庭湖平原西部地区浅层承压水中铵氮的来源与富集机理 [J]. 地质科技通报, 2020, 39(6): 165-174.
HUANG Y W, DU Y, XU Y, et al. Source and enrichment mechanism of ammonium in shallow confined aquifer in the west of Dongting Plain[J]. Bulletin of Geological Science and Technology, 2020, 39(6): 165-174. (in Chinese with English abstract)

[34] 沈帅, 马腾, 杜尧, 等. 江汉平原东部浅层地下水氮的空间分布特征 [J]. 环境科学与技术, 2018, 41(2): 47-56.
SHEN S, MA T, DU Y, et al. The spatial distribution characteristic and genesis of nitrogen of shallow groundwater in the east of Jianghan Plain[J]. Environmental Science & Technology, 2018, 41(2): 47-56. (in Chinese with English abstract)

[35] DU Y, MA T, DENG Y M, et al. Sources and fate of high levels of ammonium in surface water and shallow groundwater of the Jianghan Plain, central China[J]. Environmental Science (Processes & Impacts), 2017, 19(2): 161-172.

[36] MENG L, ZUO R, BRUSSEAU M L, et al. Groundwater pollution containing ammonium, iron and manganese in a riverbank filtration system: Effects of dynamic geochemical conditions and microbial responses[J]. Hydrological Processes, 2020, 34(22): 4175-4189.

[37] CLINE L C, HUGGINS J A, HOBBIE S E, et al. Organic nitrogen addition suppresses fungal richness and alters community composition in temperate forest soils[J]. Soil Biology and Biochemistry, 2018, 125: 222-230.

[38] HUANG Y W, DU Y, MA T, et al. Dissolved organic matter characterization in high and low ammonium groundwater of Dongting Plain, central China[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2021, 208: 111779.

[39] DU Y, DENG Y M, MA T, et al. Enrichment of geogenic ammonium in Quaternary alluvial-lacustrine aquifer systems: Evidence from carbon isotopes and DOM characteristics[J]. Environmental Science and Technology, 2020, 54(10): 6104-6114.

[40] WANG H L, LI P, LIU X H, et al. An overlooked influence of reactive oxygen species on ammonia-oxidizing microbial communities in redox-fluctuating aquifers[J]. Water Research, 2023, 233: 119734.

[41] HAN L L, WANG H L, GE L H, et al. Transition of source/sink processes and fate of ammonium in groundwater along with redox gradients[J]. Water Research, 2023, 231: 119600.

[42] LIANG Y, MA R, WANG Y X, et al. Hydrogeological controls on ammonium enrichment in shallow groundwater in the central Yangtze River Basin[J]. Science of the Total Environment, 2020, 741: 140350.

[43] 刘波, 李红梅, 石长柏, 等. 基于洪湖湿地生态水位控制的地下水位响应关系研究 [J]. 资源环境与工程, 2021, 35(6): 827-833.
LIU B, LI H M, SHI C B, et al. Study on response relationship of groundwater level based on ecological water level control of Honghu wetland[J]. Resources Environment & Engineering, 2021, 35(6): 827-833. (in Chinese with English abstract)

[44] LIANG Y, MA R, NGHIEM A, et al. Sources of ammonium enriched in groundwater in the central Yangtze River Basin: Anthropogenic or geogenic?[J]. Environmental Pollution, 2022, 306: 119463.

[45] ZHAI Y Z, HAN Y F, LU H, et al. Interactions between anthropogenic pollutants (biodegradable organic nitrogen and ammonia) and the primary hydrogeochemical component Mn in groundwater: Evidence from three polluted sites[J]. Science of the Total Environment, 2022, 808: 152162.

[46] 徐雨潇, 郑天亮, 高杰, 等. 江汉平原浅层含水层中土著硫酸盐还原菌对砷迁移释放的影响 [J]. 地球科学, 2021, 46(2): 652-660.
XU Y X, ZHENG T L, GAO J, et al. Effect of indigenous sulfate reducing bacteria on arsenic migration in shallow aquifer of Jianghan Plain[J]. Earth Science, 2021, 46(2): 652-660. (in Chinese with English abstract)

[47] ZHENG T L, DENG Y M, WANG Y X, et al. Microbial sulfate reduction facilitates seasonal variation of arsenic concentration in groundwater of Jianghan Plain, central China[J]. Science of the Total Environment, 2020, 735: 139327.

[48] 曹益, 李逸凡, 周传富, 等. 武汉蔡甸区浅层地下水氮污染来源识别及其迁移转化过程解析 [J]. 地质科技通报, 2025, 44(1): 262-273.
CAO Y, LI Y F, ZHOU C F, et al. Sources, transport and transformation of nitrogen pollution in shalllow groundwater in Caidian District, Wuhan, China[J]. Bulletin of Geological Science and Technology, 2025, 44(1): 262-273. (in Chinese with English abstract)

[49] 韩鹏, 甘义群, 杜尧, 等. 洪湖地下水排泄及其携带营养盐通量量化的方法学研究 [J]. 地质科技通报, 2025, 44(1): 285-297.

HAN P, GAN Y Q, DU Y, et al. A methodological study on the quantification of lacustrine groundwater discharge and nutrient fluxes to Honghu Lake[J]. Bulletin of Geological Science and Technology, 2025, 44(1): 285-297. (in Chinese with English abstract)

[50] DING B J, CHEN Z H, LI Z K, et al. Nitrogen loss through anaerobic ammonium oxidation coupled to iron reduction from ecosystem habitats in the Taihu estuary region[J]. Science of the Total Environment, 2019, 662: 600-606.

[51] HUANG F G, JIA S Y, LIU Y, et al. Reductive dissolution of ferrihydrite with the release of As(V) in the presence of dissolved S(-II)[J]. Journal of Hazardous Materials, 2015, 286: 291-297.

Summary for "长江中游河湖–地下水交互带地下水中氮素的时空分布特征及控制因素"

Spatial-temporal distribution characteristics and driving factors of nitrogen in groundwater of river-lake-groundwater interaction zone along middle reaches of the Yangtze River

GAO Jie[1,2], GUO Jing[1,2], CAI Aimin[1,2], YANG Hucheng[3], LI Yayun[1,2], WANG Yilin[1,2], CHI Zeyong[4], LI Wei[1,2], ZHAO Dejun[1,2*]

1. Hubei Key Laboratory of Resources and Eco-Environment Geology, Hubei Geological Bureau, Wuhan 430034, China;
2. Geological Environmental Center of Hubei Province, Wuhan 430034, China;
3. Wuhan Dongxihu District Ecological Environment Affairs Service Station, Wuhan 430034, China;
4. Institute of Microbiology, Jiangxi Academy of Sciences, Nanchang 330096, China

First author, E-mail: 2580343027@qq.com

* Corresponding author, E-mail: zdjzby@163.com

Abstract: [**Objective**] The complex structure of river-lake-groundwater interaction zone governs the migration and transformation and the fate of nutrients. Investigating the spatial-temporal distribution characteristic and controlling factors of nitrogen in groundwater holds significant implications for water quality and ecosystem protection. [**Methods**] This study focus on the river-lake-groundwater interaction zone along the middle reaches of the Yangtze River. Groundwater samples were collected from two confined aquifer profile and one phreatic aquifer profile during both monsoon season and non-monsoon season. Hydrogeochemical analysis was conducted, and the controlling factors of nitrogen enrichment were identified using random forest regression. [**Results**] The results indicate that the main form of nitrogen in groundwater is ammonium (NH_4-N). The content of NH_4-N in confined groundwater during monsoon season (0.37−4.96 mg/L, average 2.07 mg/L) was significantly higher than that in the pore phreatic water (0−0.096 mg/L, average 0.012 mg/L).Low concentration of Cl^- / SO_4^{2-} and high concentration of CO_2 / HCO_3^- indicate that NH_4-N enrichment is closely related to the mineralization of nitrogen-bearing organic matter under natural condition. In contrast, in pore phreatic groundwater during the non-monsoon season, the NH_4-N concentration (average 1.25 mg/L) was significantly higher than during monsoon season(average 0.032 mg/L), displaying prominent seasonal variation. The concentration of Fe / Mn was also relatively high in this aquifer during the non-monsoon season. Combined with water-level fluctuation data, the pore phreatic water is significantly influenced by human activities. Following NH_4-N enrichment within the aquifer, feammox can occur. [**Conclusion**] This study enhances understanding of the occurrence patterns of nitrogen within river-lake-groundwater interaction zone and provides a theoretical basis for studying biogeochemical processes associated with the nitrogen cycle.

Key words: river-lake-groundwater interaction zone; water-level fluctuation; groundwater; ammonium; organic matter mineralization; feammox; middle reaches of the Yangtze River

Received: 2024-10-10; Revised: 2025-06-03; Accepted: 2025-06-23

doi: 10.19509/j.cnki.dzkq.tb20240595