

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

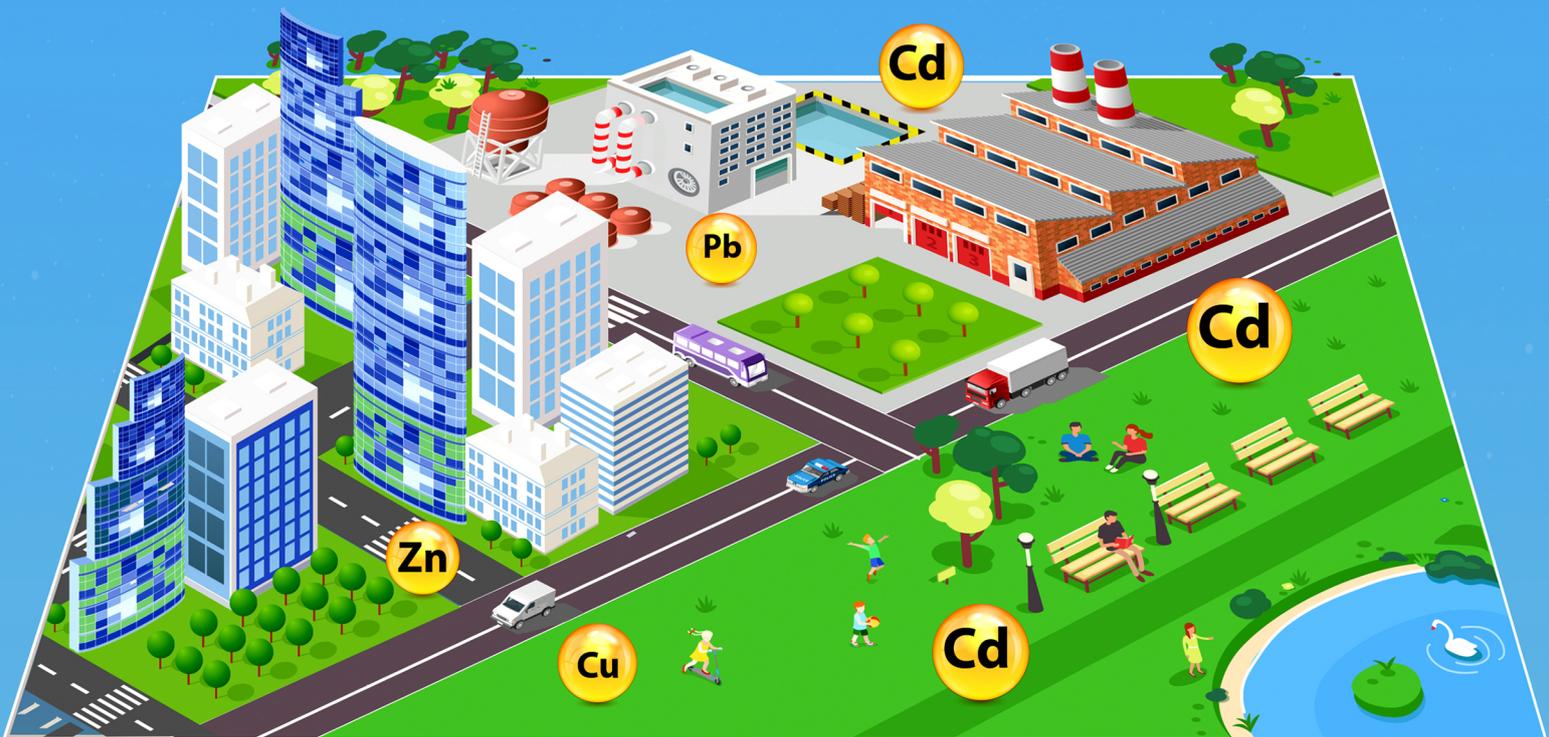
ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

中国主要城市土壤重金属累积特征与风险评价

彭驰, 何亚磊, 郭朝晖, 肖细元, 张严



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年1月

第43卷 第1期

Vol.43 No.1

目次

中国主要城市土壤重金属累积特征与风险评价 彭驰, 何亚磊, 郭朝晖, 肖细元, 张严 (1)

植物生长调节剂在土壤中的环境行为综述 陈亮, 侯杰, 胡晓蕾, 张纪兆, 王浩达 (11)

基于铁泥的磁性水处理材料制备及应用进展 曾辉平, 翟龙雪, 李冬, 张杰 (26)

不同臭氧度量指标对我国人群总死亡影响的 Meta 分析 阮芳芳, 刘纪新, 陈芷薇, 曾贤刚 (37)

北京市海坨山冬季不同污染过程下气溶胶化学组分及其潜在来源分析 赵德龙, 王飞, 刘丹彤, 田平, 盛久江, 周崑, 肖伟, 杜远谋, 卢俐, 黄梦宇, 何晖, 丁德平 (46)

武汉冬季大气 PM_{2.5} 小时分辨率源贡献识别及潜在影响域分析 蒋书凝, 孔少飞, 郑煌, 曾昕, 陈楠, 祁士华 (61)

运城市 PM_{2.5} 时空分布特征和潜在源区季节分析 王姝涛, 张强, 温肖宇, 冀乃超, 赵文婷, 罗淑贞, 陈志, 翟程凯 (74)

中国东部冷锋推进中的 PM_{2.5} 三维结构变化特征 牟南南, 朱彬, 卢文 (85)

粤港澳大湾区大气中硝基多环芳烃污染特征与风险评估 李彦希, 谢丹平, 黎玉清, 金梦, 丁紫荣, 闫雅楠, 赵波 (93)

西南地区大型综合工业区和周边区域大气 VOCs 污染特征及健康风险评估 李陵, 张丹, 胡伟, 徐芹, 吴虹, 袁睿, 蒲茜, 郝宇杭, 唐志欣, 赖明敏 (102)

拉萨市挥发性有机物的组成特征、季节变化和来源解析 余家燕, 韩燕, 陈木兰, 张惠芳, 陈阳, 刘建国 (113)

杭州 COVID-19 期间大气 VOCs 体积分数变化特征 林旭, 严仁嫦, 金嘉佳, 许凯儿, 何曦, 叶辉, 何纪平 (123)

上海城郊夏季大气 VOCs 在臭氧生成中的作用 金丹 (132)

铜川市秋冬季大气 VOCs 特征及其 O₃ 和 SOA 形成潜势分析 易宵霄, 李姜豪, 李光华, 路珍珍, 孙智钢, 高健, 邓顺熙 (140)

电子垃圾拆解回收 VOCs 排放特征与排放因子 谢丹平, 黄忠辉, 刘旺, 聂鹏, 黄钟坤, 贺辉, 陈晓燕 (150)

不同传输通道下珠江三角洲臭氧与前体物非线性响应关系 伍永康, 陈伟华, 颜丰华, 毛敬英, 袁斌, 王伟文, 王雪梅 (160)

淄博市城郊臭氧污染特征及影响因素分析 王雨燕, 杨文, 王秀艳, 王帅, 白瑾丰, 程颖 (170)

昭通市周边扬尘重金属污染特征及健康风险 庞晓晨, 韩新宇, 史建武, 包宇斋, 宁平, 张朝能, 向峰 (180)

城市路面积尘微塑料污染特征 方芹, 牛司平, 陈予东, 于江华 (189)

塔里木河流域东部降水稳定同位素特征与水汽来源 宋洋, 王圣杰, 张明军, 石玉东 (199)

赤水河流域水体抗生素污染特征及风险评估 吴天宇, 李江, 杨爱江, 李彦澄, 陈瑀, 何强, 马凯, 胡霞, 王斌, 艾佳, 钟雄 (210)

无定河流域地表地下水的水化学特征及控制因素 李书鉴, 韩晓, 王文辉, 李志 (220)

白洋淀府河影响区沉积物营养盐和重金属污染特征及风险评估 陈兴宏, 李立青, 张美一, 张伟军, 王东升, 王洪杰 (230)

九龙江口红树林湿地表层沉积物中微塑料赋存特征与重金属的关系 刘倡君, 罗专溪, 闫钰, 林惠荣, 胡恭任, 于瑞莲 (239)

北京市北运河水系底栖动物群落与水环境驱动因子的关系及水生态健康评价 胡小红, 左德鹏, 刘波, 黄振芳, 徐宗学 (247)

城市河道再生水特征水质因子空间变异机制分析 刘全忠, 彭柯, 苏振华, 邸琰茗, 郭道宇 (256)

苏州景观河道表层沉积物间隙水-上覆水中 DOM 特性分析 李超男, 何杰, 朱学惠, 李学艳 (267)

苏州城区雨水管道沉积物典型污染物分布特征 叶蓉, 盛铭军, 姜永波, 武宇圣, 黄天寅 (277)

信号分子强化改性挂膜沸石持续抑制沉积物中氨氮释放 徐金兰, 许洋, 李修民, 国森, 刘成海 (285)

三峡水库调度对支流水体叶绿素 a 和环境因子垂向分布的影响 田盼, 李亚莉, 李莹杰, 李虹, 王丽婧, 宋林旭, 纪道斌, 赵星星 (295)

李家河水库春季分层期 nirS 型反硝化菌群特征分析 梁伟光, 黄廷林, 张海涵, 杨尚业, 刘凯文, 李程遥, 温成成, 李伟涛, 蔡晓春 (306)

岗南水库沉积物好氧反硝化菌群落时空分布特征 张紫薇, 陈召莹, 张甜娜, 周石磊, 崔建升, 罗晓 (314)

宁夏地区地下水金属元素分布特征及健康风险评估 王晓东, 田伟, 张雪艳 (329)

快速城镇化三角洲地区高碘地下水赋存特征及驱动因素;以珠江三角洲为例 吕晓立, 刘景涛, 韩占涛, 周冰, 李备 (339)

长三角一体化示范区青浦区水环境中 22 种 PPCPs 的多介质分布特征及风险评估 张智博, 段艳平, 沈嘉豪, 俞文韬, 罗鹏程, 涂耀仁, 高峻 (349)

洞庭湖及入湖河流中 209 种多氯联苯同类物分布特征与风险评估 黄智峰, 郑丙辉, 尹大强, 崔婷婷, 赵兴茹 (363)

基于流量和溶存浓度的河流水系氧化亚氮释放量估算 李冰清, 胡敏鹏, 王铭烽, 张育福, 吴昊, 周佳, 吴锴彬, 戴之舟, 陈丁江 (369)

三峡库区万州段河流水-气界面 CO₂ 通量支干流对比及影响机制初探 秦宇, 欧阳常悦, 王雨潇, 方鹏 (377)

功能化凹凸棒吸附材料的制备及其对重金属废水中 Pb²⁺ 的吸附行为 廖晓峰, 钟静萍, 陈云嫩, 邱延省, 任嗣利 (387)

铁氮共掺杂生物炭对二级水溶解性有机物的吸附特性与长效性评价 吴晨曦, 许路, 金鑫, 石烜, 金鹏康 (398)

沸石悬浮填料生物移动床的亚硝化特性 邓翠兰, 郭露, 汪晓军, 陈振国 (409)

温度对 ANAMMOX 生物膜工艺的脱氮影响与菌群结构分析 吴珊, 王淑雅, 王芬, 季民 (416)

填料对 ANAMMOX 污泥活性恢复的影响及菌群特征 罗景文, 杨津津, 李绍康, 赵昕宇, 杨一飞, 韩嘉琛, 李翔 (424)

基于 PMF 模型的宁南山区小流域土壤重金属空间分布及来源解析 夏子书, 白一茹, 王幼奇, 高小龙, 阮晓晗, 钟艳霞 (432)

浙中典型硫铁矿田土壤重金属含量特征及健康风险 成晓梦, 孙彬彬, 吴超, 贺灵, 曾道明, 赵辰 (442)

农产品视角的城郊黑土地田土壤重金属风险分区 吴松泽, 王冬艳, 李文博, 王兴佳, 闫卓冉 (454)

基于 DGT 技术的广西碳酸盐岩区稻米镉含量主控因素 宋波, 肖乃川, 马丽钧, 李龙, 陈同斌 (463)

调理剂耦合水分管理对双季稻镉和铅累积的阻控效应 李林峰, 王艳红, 李义纯, 唐明灯, 李奇, 艾绍英 (472)

设施叶菜类蔬菜重金属镉、铅和砷累积特征及健康风险评估 董俊文, 高培培, 孙洪欣, 周昶, 张香玉, 薛培英, 刘文菊 (481)

电子垃圾拆解固废渣-土壤-蔬菜中多氯联苯污染特征与健康风险评估 张亚萍, 吕占禄, 王先良, 张晗, 郭凌川, 丁秀丽, 张金良 (490)

雷州半岛南部典型农用地土壤-作物的有机氯农药残留特征和健康风险评估 梁晓晖, 解启来, 郑芊, 杨北辰, 叶金明, 唐成金 (500)

重金属含量对城市土壤真菌群落结构的影响 郭大陆, 张建, 申思, 余子洁, 杨军顺, 罗红燕 (510)

长期施肥对黄土高原梯田土壤养分特征和微生物资源限制的影响 吴春晓, 高小峰, 闫本帅, 梁彩群, 陈佳瑞, 王国梁, 刘国彬 (521)

土地利用变化后不同种植年限香榧土壤微生物群落的组成及多样性 姜霓雯, 梁辰飞, 张勇, 蒋仲龙, 董佳琦, 吴家森, 傅伟军 (530)

化肥和有机肥配施生物炭对土壤磷酸酶活性和微生物群落的影响 杨文娜, 余添, 罗东海, 熊子怡, 王莹燕, 徐曼, 王子芳, 高明 (540)

秦岭中段撂荒地植被恢复过程中土壤微生物代谢特征 薛悦, 康海斌, 杨航, 冰德叶, 晁志, 张凯, 王得祥 (550)

全生物降解地膜原料颗粒对土壤性质、小麦生长和养分吸收转运的影响 闵文豪, 王春丽, 王莉玮, 易廷辉, 卞京军, 支梅, 孙琪惠, 宿锦锦, 赵秀兰 (560)

秸秆还田对冬小麦-夏玉米农田土壤固碳、氧化亚氮排放和全球增温潜势的影响 万小楠, 赵珂悦, 吴雄伟, 白鹤, 杨学云, 顾江新 (569)

快速城镇化三角洲地区高碘地下水赋存特征及驱动因素：以珠江三角洲为例

吕晓立¹, 刘景涛^{2,3,*}, 韩占涛⁴, 周冰², 李备²

(1. 中国地质环境监测院, 北京 100081; 2. 中国地质科学院水文地质环境地质研究所, 石家庄 050061; 3. 河北省地下水污染机理与修复重点实验室, 石家庄 050061; 4. 生态环境部土壤与农业农村生态环境监管技术中心, 北京 100012)

摘要:沿海城镇化地区地下水中碘来源复杂,高碘地下水对生活饮用水安全存在潜在威胁.以城镇化快速发展的珠江三角洲为研究区,运用数理统计和主成分分析等方法探讨了珠江三角洲不同含水层和不同城镇化水平地区浅层地下水中碘的赋存特征及驱动因素.结果表明,研究区浅层地下水 $\rho(I^-)$ 介于未检出~ $2.34\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,主要以 I^- 的形式存在.研究区1567组地下水样品中, $\rho(I^-)>0.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的高碘地下水检出120组.其中,孔隙和裂隙高碘地下水分别检出84组和36组,岩溶含水层未检出高碘地下水.对比2005~2008年历史水化学数据,近10年新增建设用地浅层地下水 $\rho(I^-)$ 均值增加了30%.孔隙和裂隙高碘地下水均主要分布在城镇化地区,其比例均为非城市化地区的3倍以上.高碘地下水以 $\text{HCO}_3\cdot\text{Cl}\cdot\text{Ca}\cdot\text{Na}$ 和 $\text{Cl}\cdot\text{Na}$ 型水为主,高碘地下水具有pH较高氧化还原电位较低等特性.含碘铁锰(氧)氢氧化物的还原溶解和沉积物中富碘有机物的分解可能是珠江三角洲平原区浅层孔隙高碘地下水的主要来源.富含碳酸盐的岩石中有机物的降解和城市化伴随还原性污水的泄漏,可能为浅层裂隙高碘地下水的主要来源.三角洲平原区中性至弱碱性富含有机质的还原环境是高碘地下水赋存的主要成因.风化溶滤、阳离子交换和海陆交互作用是珠江三角洲高碘地下水演变的主要水化学过程.

关键词:高碘地下水; 赋存环境特征; 驱动因素; 珠江三角洲; 城镇化

中图分类号: X523 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)01-0339-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.202105247

Geochemical Characteristics and Driving Factors of High-Iodine Groundwater in Rapidly Urbanized Delta Areas: A Case Study of the Pearl River Delta

LÜ Xiao-li¹, LIU Jing-tao^{2,3,*}, HAN Zhan-tao⁴, ZHOU Bing², LI Bei²

(1. China Institute of Geo-Environmental Monitoring, Beijing 100081, China; 2. Institute of Hydrogeology and Environmental Geology, Chinese Academy of Geological Sciences, Shijiazhuang 050061, China; 3. Hebei Key Laboratory of Groundwater Remediation, Shijiazhuang 050061, China; 4. Technical Centre for Soil, Agriculture and Rural Ecology and Environment, Ministry of Ecology and Environment, Beijing 100012, China)

Abstract: The source of iodine in the groundwater of coastal urbanization areas is complex, and high-iodine groundwater is a potential threat to the safety of drinking water. Based on this, this study took the Pearl River Delta, which is developing rapidly in urbanization, as the research area. Additionally, the occurrence characteristics and driving factors of iodide in shallow groundwater of different aquifers and different urbanization levels in the Pearl River Delta were studied using mathematical statistics, principal component analysis, and other methods. The results showed that the concentration of iodide in the shallow groundwater was $2.34\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ and undetected in the form of I^- . Among 1567 groundwater samples in the study area, there were 120 groups of groundwater with high iodine content greater than $0.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, accounting for 7.7%. Among them, 84 and 36 groups were detected in shallow porous and shallow fissure high-iodine groundwater, respectively, whereas no high-iodine groundwater was detected in the karst aquifer. The proportion of high-iodine groundwater was 8.0% in the shallow porous aquifer and 7.5% in the shallow fissure aquifer. Both the porous aquifer and the fissured aquifer with high iodine content were mainly distributed in the urbanized areas, the proportion of which was more than three times that of the non-urbanized areas. The chemical types of the high-iodine groundwater were mainly $\text{HCO}_3\cdot\text{Cl}\cdot\text{Ca}\cdot\text{Na}$ and $\text{Cl}\cdot\text{Na}$ type water, which have the characteristics of high pH and low redox potential. The reduction and dissolution of iodine-containing Fe/Mn (oxygen) hydroxides and the decomposition of iodine-rich organics in sediments may be the main sources of high-iodine groundwater in the shallow porous aquifers of the Pearl River Delta Plain. The degradation and urbanization of organic matter in carbonate-rich rocks is accompanied by the leakage of reducing sewage, which may be the main source of high-iodine groundwater in shallow fissured aquifers. The neutral to weakly alkaline reduction environment with rich organic matter was the main cause of high-iodine groundwater in the Delta Plain area. Weathering, leaching, cation exchange, and sea-land interactions are the main hydrogeochemical processes in the evolution of high-iodine groundwater in the Pearl River Delta.

Key words: high-iodine groundwater; geochemical characteristics; driving factors; Pearl River Delta; urbanization

碘是人体必需的微量元素,但其摄入量不足或过多可导致人体相应的缺碘或碘过量,碘缺乏和过量都可能引起甲状腺肿大疾病^[1,2].相对于缺碘,高碘地下水对人体的危害更加难以控制.碘过量可诱发甲状腺功能亢进和甲状腺炎,并可能导致自身免疫性甲状腺疾病或智力丧失^[3].世界上很多国家存在高碘地下水,如:索马里^[4]、丹麦^[5]、智利^[6]、中

国^[7]、日本^[8]和俄罗斯^[9]等.据文献^[10],居民饮用水中 $\rho(I^-)>100\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 为水源性高碘地区.中

收稿日期: 2021-05-24; 修订日期: 2021-06-20

基金项目: 中国地质调查局地质调查项目(DD20190331, DD20160308); 国家自然科学基金项目(4207071759); 国家重点研发计划项目(2018YFC1803001)

作者简介: 吕晓立(1978~),女,硕士,高级工程师,主要研究方向为污染水文地质, E-mail: 2767398591@qq.com

* 通信作者, E-mail: 728881944@qq.com

国有 12 个省市存在高碘地下水,主要分布于黄淮海平原、干旱区内陆盆地和沿海地区^[11].

自然界中碘以稳定的形态存在于无机碘化物、碘酸盐和各种有机碘化物中^[12].高碘地下水的赋存与沉积环境、地下径流条件和气候类型相关,城镇化进程中人类活动输入成为其重要的影响因素^[13].氧化还原电位(Eh)和 pH 值是控制碘地球化学行为的两个重要参数,弱碱性还原环境有利于地下水中碘的赋存^[12~14].地下水中 $\rho(I^-)$ 升高通常为自然成因,富碘沉积物中含碘有机物的分解和含碘(氧)氢氧化物的还原性溶解将可溶性碘释放到地下水中,是富碘地下水的主要成因^[2,15].城镇化伴随的垃圾渗滤液和含碘工业废水泄漏成为地下水中 $\rho(I^-)$ 升高的重要影响因素.此外,在沿海地区,海洋碘通过大气输入或海水入侵进入含水层,近海地区富碘土壤的碘浸出、富碘海水的入侵以及海洋沉积物中富碘有机物或矿物的解吸是沿海三角洲地区富碘地下水的主要成因^[11,16].

近年来众多学者对于旱半干旱区内陆盆地和黄淮海平原等区域地下水中碘的来源和区内含碘矿物的风化溶滤成因研究较多^[2,7,11,15],但对沿海三角洲地区,尤其是快速城镇化影响下三角洲地区高碘地下水的赋存环境特征及成因关注较少.本文以珠江三角洲为例,研究城镇化进程中,滨海三角洲地区高碘地下水的演化特征、驱动因素和含水层中碘化物

的主要来源,以期为当地地下水资源的可持续开发与利用提供参考,也为我国沿海三角洲城镇化地区复杂含水层系统中碘的认识提供借鉴.

1 材料与方法

1.1 研究区水文地质概况

珠江三角洲地区位于广东省中南部,三面低山丘陵环绕,中南部为三角洲平原区,陆地总面积约 $4.2 \times 10^4 \text{ km}^2$ (图 1).研究区属亚热带季风气候区,年平均气温 23.2°C ;年平均降水量 $1\ 800 \sim 2\ 200 \text{ mm}$,主要集中在 4~9 月.珠江三角洲地区河网密布,地表水资源丰富.珠江三角洲属华南褶皱系粤北、粤中拗陷带;地层以泥盆系、石炭系、二迭系、侏罗系和第四系为主.区内地下水可分为松散岩类孔隙水、碳酸盐岩类裂隙岩溶水和基岩裂隙水.三角洲冲洪积平原区以松散岩类孔隙水为主,厚度 3~40 m,岩性以粗中砂及卵砾石为主.自下而上颗粒由粗变细.三角洲下部为晚更新世三角洲沉积前古河流沉积相砂砾层、砂质黏土层,上部为晚全新世泛滥平原相和三角洲沉积相砂质黏土和粉砂层,中部为早-中全新世陆相过渡到三角洲浅海相沉积淤泥质黏土层.碳酸盐岩裂隙岩溶水主要分布于广花盆地和高明盆地,水量较丰富.基岩裂隙水广泛分布于低山丘陵区,包含红层碎屑岩类孔隙裂隙水、层状岩类裂隙水和块岩类裂隙水.大气降水、地表水

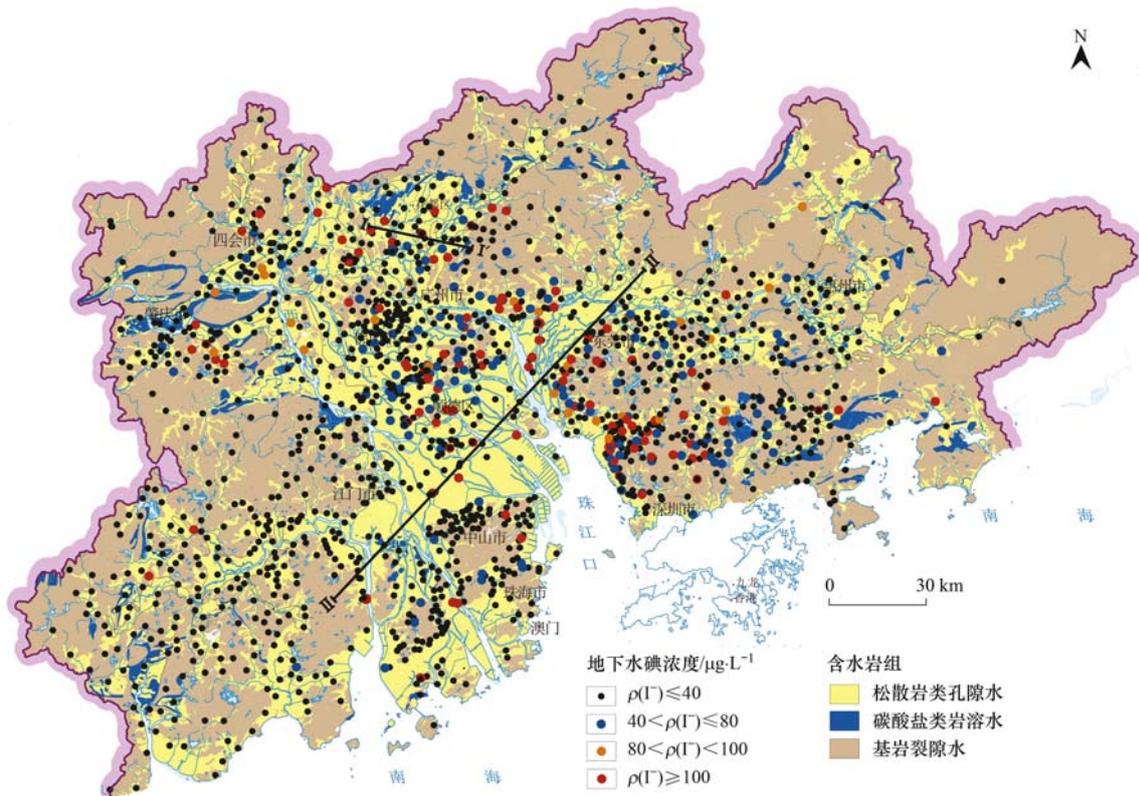


图 1 研究区概况及地下水采样点分布示意

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

和灌溉回归渗水是地下水的主要补给来源。河流排泄、人工开采和蒸发是地下水的主要排泄方式。地

下水总体上自北向南，自北西向南东汇流，经珠江口和伶仃洋汇入南海(图 1 和图 2)。

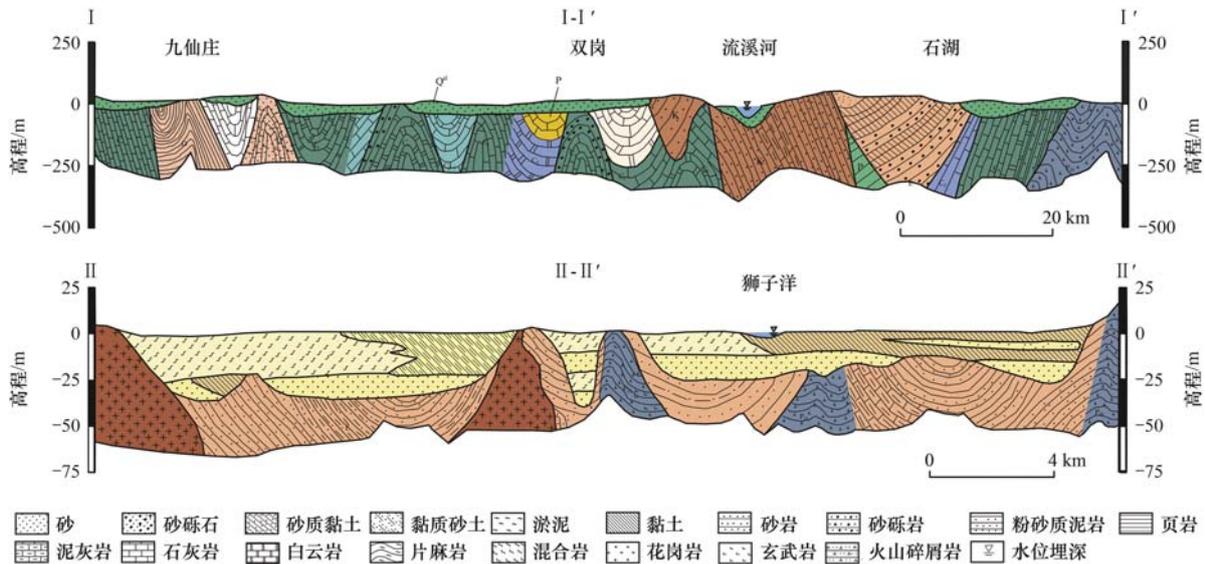


图 2 研究区水文地质剖面示意

Fig. 2 Hydrogeological profile of the study area

1.2 研究区城镇化扩张

珠江三角洲是中国经济发展最快的三大经济单元之一，根据城市化水平，珠江三角洲可分为城市化区、城郊过渡带、非城市化区和海域(图 3)。近 30 年来，珠江三角洲工业化和城镇化发展迅速，人口聚

集、建设用地扩张明显。常住人口从 1988 年的 2 370 万人增加到 2018 年的 6 300 万人^[17]，建设用地由 1988 年的 2 600 km² 增加到 2018 年的 13 100 km²，扩大了 4 倍多。新增的建设用地主要为工业区，工业化快速发展和市政建设的滞后，给当地地下水环境

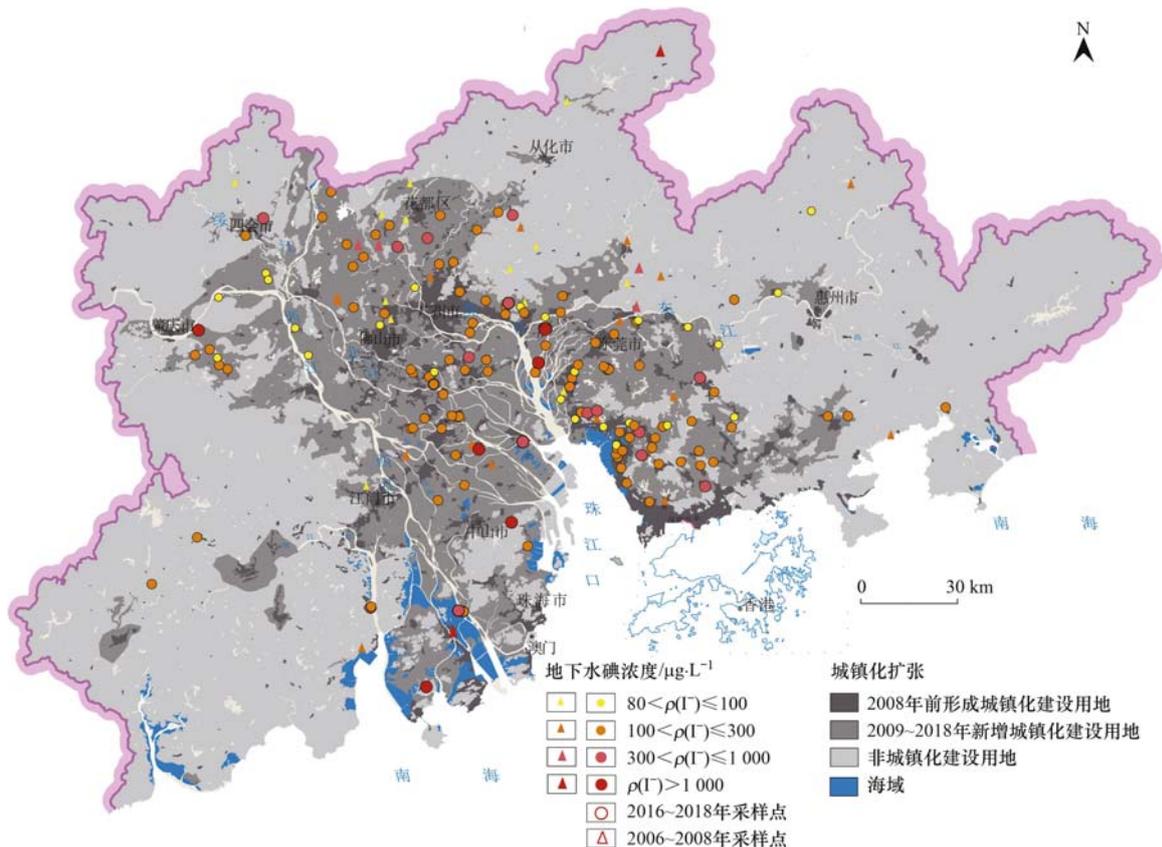


图 3 不同历史时期不同城镇化水平高碘地下水空间分布

Fig. 3 Distribution of high-iodine groundwater in different historical periods and different urbanization levels

带来严峻压力. 城市生活污水、工业废水和垃圾渗滤液的下渗是研究区地下水环境恶化的重要影响因素^[18]. 城镇化过程中, 城郊地区和非城镇化区已建成多处大型垃圾填埋场.

1.3 样品采集与分析

2016~2018年每年的8~10月(本研究)在研究区采集地下水样品1567组(图1), 其中, 孔隙、裂隙和岩溶含水层分别采集1053、483和31组; 城镇化地区1073组, 非城镇化地区494组. 搜集2005~2008年(首轮调查)历史水化学数据990组, 两轮调查采集重复样品387组. 地下水样品取自民井、监测井和泉, 采样井井深集中在0.2~40 m, 地下水水位埋深0.05~15 m. 采样设备主要有离心泵和潜水泵, 采样前对采样井进行抽水清洗, 等排出水量大于井孔储水量3倍且电导率稳定后再进行采样, 确保采集的样品具有代表性. 所用采样瓶为1.5 L的高密度聚乙烯瓶. 取样后, 贴标签并用Para film封口膜密封避光保存, 7 d内送达实验室测试. 样品由自然资源部广东省物料实验检测中心测定, 执行标准参照文献[19]. 利用DX-120型离子色谱仪和ICP-AES分别对阴、阳

离子进行测定. 酸碱度(pH)、溶解氧(DO)和氧化还原电位(Eh)等采用多功能便携式测试仪现场(Multi-340i/SET, 德国WTW)进行测试.

1.4 数据分析

主成分分析^[20]是分析高维水化学数据的有利工具, 其原理是通过线性组合对原始数据进行降维统计, 提取少数几个主成分来分析控制水化学演化的天然及人为因素. 吉布斯(Gibbs)图^[21]是利用半对数坐标直观地表示地表水化学组分特征、控制因素及其相互关系. 本文运用舒卡列夫分类法分析水化学类型, 运用SPSS和AquaChem等软件分析水化学数据, 运用Gibbs图、离子比和主成分分析法探讨高碘地下水赋存特征、来源和驱动因素.

2 结果与讨论

2.1 高碘地下水赋存特征

2.1.1 浅层高碘地下水化学特征

珠江三角洲浅层地下水总体上呈低溶解性总固体弱酸性特征, 阳离子以 Na^+ 和 Ca^{2+} 为主, 阴离子以 HCO_3^- 和 Cl^- 为主(图4). 沿着地下水流向, 从低

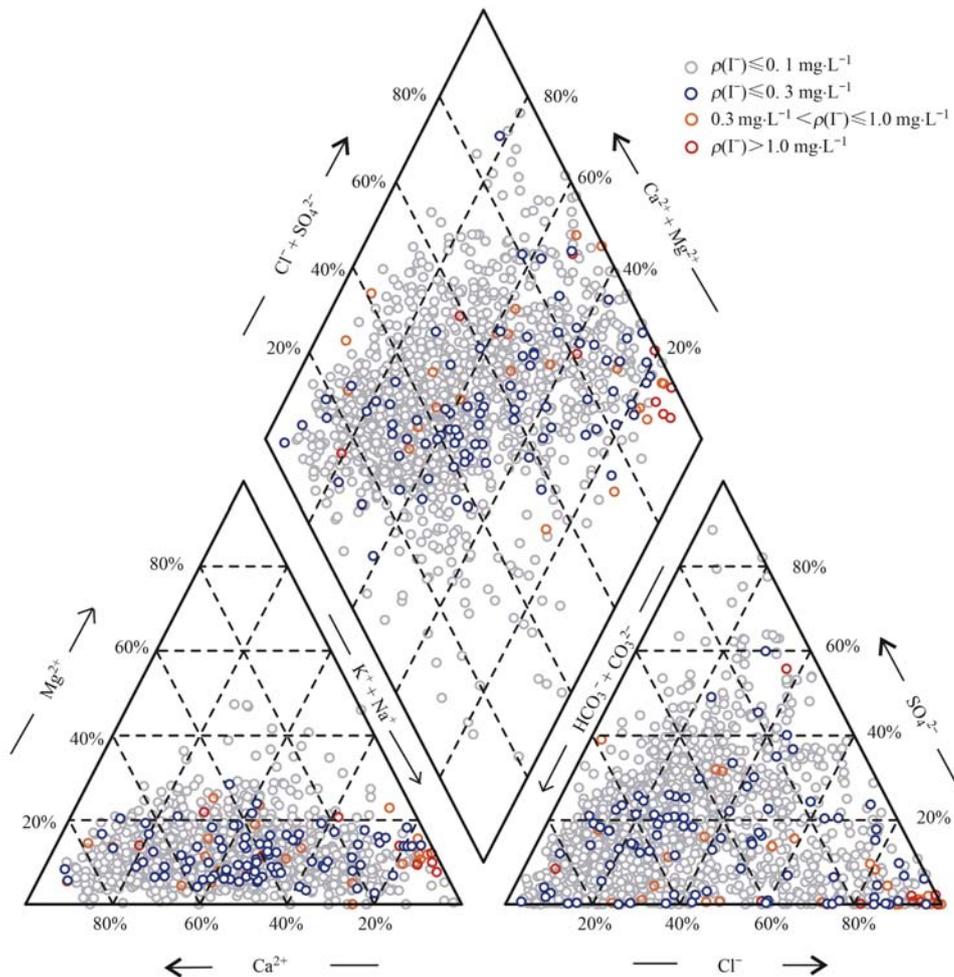


图4 研究区地下水化学 Piper 三线图

Fig. 4 Piper plots of groundwater from different geomorphic units

山丘陵淋溶迁移带到地下水径流缓慢的三角洲平原区,地下水化学类型由重碳酸型水向硫酸氯型水演化.由 Piper 图可见(图 4),研究区高碘地下水以 $\text{HCO}_3 \cdot \text{Cl} \cdot \text{Ca} \cdot \text{Na}$ 和 $\text{Cl} \cdot \text{Na}$ 型水为主,尤其是 $\rho(\text{I}^-) > 1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 超高碘地下水样品点分布在三角形的右下角,为高溶解性总固体 $\text{Cl} \cdot \text{Na}$ 型水.研究区地下水总体上属于稳态略偏还原水;受工业酸雨入渗补给影响,浅层地下水酸化明显,pH 集中于 4.72 ~ 7.76(图 5). $\rho(\text{I}^-) > 0.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的高碘地下水 pH 值集中于 5.1 ~ 8.7 之间(图 5 和图 6),厌氧还原环境不利于氧化态的 IO_3^- 形成^[22], I^- 是珠江三角洲高碘地下水中稳定存在的碘形态(图 5). I^- 易被含水介质中带正电的物质吸附^[14,23],pH 值的增大会使胶体和黏土矿物带更多负电荷,降低对 I^- 的吸附^[24,25].当 pH > 6.0 后,地下水中 $\rho(\text{I}^-)$ 明显升高,但是在 pH 值高到 8.5 以后,地下水中 $\rho(\text{I}^-)$ 随着 pH 值升高呈下降趋势[图 6(a)],这种趋势在三角洲平原区孔隙含水层表现得更为明显.研究区高碘地下水 Eh 集中于 -200 ~ 200 mV,变化幅度较大;

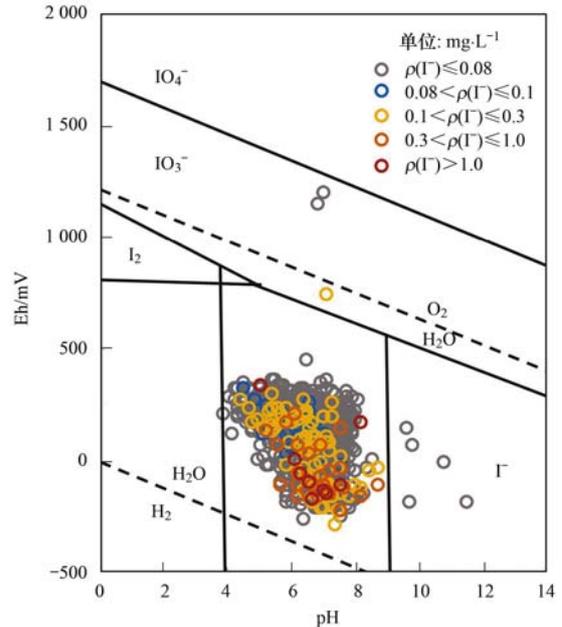


图 5 研究区高碘地下水 Eh-pH 图

Fig. 5 Eh-pH plots of high-iodine groundwater in the study area
高碘地下水中 NH_4^+ 和 COD 浓度高[图 6(b)和 6(c)],溶解氧(DO)、 NO_3^- 浓度和 Eh 均较低[图 6

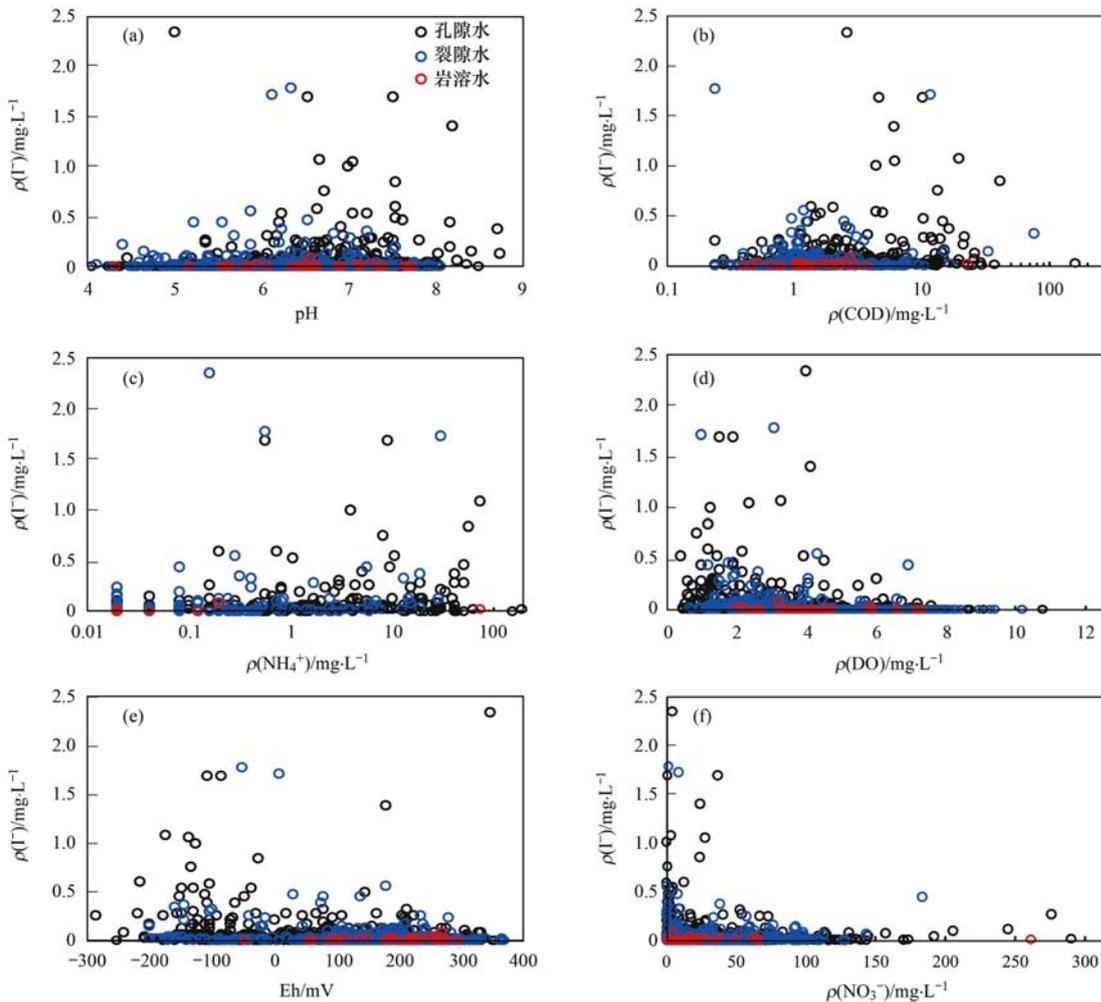


图 6 研究区高碘地下水 I^- 与 pH、COD、 NH_4^+ 、DO、Eh 和 NO_3^- 的关系

Fig. 6 Relationship between I^- vs. pH, COD, NH_4^+ , DO, Eh, and NO_3^- in the study area

(d)、图 6(e) 和图 6(f)], 尤其是 $\rho(I^-) > 0.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的超高碘地下水 Eh 均小于 0 [图 6(e)]. 因此, 氧化还原环境和 pH 值是研究区地下水中 $\rho(I^-)$ 的重要影响因素, 弱碱性还原环境有利于地下水碘的富集.

2.1.2 各含水层不同城镇化水平地区地下水中碘化物分布特征

研究区浅层地下水中 $\rho(I^-)$ 介于未检出 ~ $2.34 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (表 1). 1 567 组地下水样品中, $\rho(I^-) > 0.1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的高碘地下水检出 120 组 (占比 7.7%). 其中, 浅层孔隙和裂隙高碘地下水分别检出 84 组 (占比 8.0%) 和 36 组 (占比 7.5%), 浅层岩溶含水层未检出高碘水. 各含水层地下水中 $\rho(I^-)$ 中位值介

于 $0.004 \sim 0.020 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 低于 2017 年发布的地下水碘化物 I 类水标准限值^[26] ($0.04 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$); 各含水层地下水碘化物浓度变异系数介于 143% ~ 617% (表 1). 结果表明, 研究区各含水层地下水样品中 50% 以上 $\rho(I^-) < 0.04 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 高碘地下水的分布差异较大, 表现为碘含量分布较为离散. 孔隙和裂隙高碘地下水均大部分出现在城镇化地区, 其比例均为非城市化地区的 3 倍以上. 高碘地下水主要分布于城镇化扩张明显的三角洲平原区以及三角洲周缘的丘陵台地与河谷平原区交接城乡过渡带 (图 1 和图 3). 由于高碘地下水主要赋存于孔隙和裂隙含水层中, 因此, 本文重点研究孔隙和裂隙高碘地下水的赋存环境特征及城镇化扩张对其 $\rho(I^-)$ 的影响.

表 1 各含水层不同城镇化水平地区地下水碘统计¹⁾

Table 1 Statistics of groundwater iodine in various aquifers and different urbanization levels areas

类别	样品数 /组	最小值 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	最大值 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	平均值 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	中位值 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	变异系数 /%	检出率 /%	高碘地下水率/%
孔隙水	1 053	ND	2.34	0.046	0.012	315	95.9	8.0
含水层类型								
裂隙水	483	ND	1.78	0.035	0.008	367	89.4	7.5
岩溶水	31	ND	0.09	0.013	0.008	143	77.4	0
城镇化水平								
2008 年建设用地	383	ND	1.69	0.054	0.018	294	96.9	9.1
2009 ~ 2018 年新增建设用地	690	ND	2.34	0.048	0.012	296	94.1	10.3
非城镇建设用地	494	ND	1.78	0.024	0.006	475	90.3	2.8
各含水层不同 城镇化水平								
2008 年前形成城镇区孔隙水	314	ND	1.69	0.06	0.02	293	96.1	8.9
2009 ~ 2018 年新增城镇区孔隙水	471	ND	2.34	0.048	0.015	296	94.1	9.8
非城镇区孔隙水	290	ND	1.4	0.026	0.008	387	91.4	3.4
2008 年前形成城镇区裂隙水	71	ND	0.25	0.033	0.012	158	90.9	9.9
2009 ~ 2018 年新增城镇区裂隙水	217	ND	1.72	0.049	0.01	294	88.3	11.5
非城镇区裂隙水	203	ND	1.78	0.022	0.004	617	85.6	2.0
珠三角地区合计	1 567	ND	2.34	0.042	0.01	331	91.7	7.7

1) 高碘地下水率表示 $\rho(I^-) > 0.1 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 所占比例; ND 表示未检出, 计算时 ND 作 0 处理

2.1.3 城镇化扩张对地下水中 $\rho(I^-)$ 影响

将本次水化学数据与 2005 ~ 2008 年历史水化学数据对比研究, 选取 387 组重复样品与土地利用类型叠加, 利用数理统计、箱型图分析不同历史时期不同城镇化水平地区 $\rho(I^-)$ 演变特征. 由图 7 可见, 城镇化建设用地地下水 $\rho(I^-)$ 高, 数据离散程度高, 样品 $\rho(I^-)$ 高值点较多. 尤其是 2009 ~ 2018 年的新增城镇建设用地, 地下水 $\rho(I^-)$ 呈显著上升态势, 其平均值从 10 年前的 $27 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 增加到 $35 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. 这是由于随着城镇化和工业化快速推进, 生活污水、工业废水和垃圾渗滤液的泄漏入渗成为地下水中碘化物的重要来源. 同时, 还原性污水的泄漏诱发富碘地层中有机质解析释放碘离子. 相比之下, 2008 年以前形成的建设用地, 近 10 年来地下水中 $\rho(I^-)$ 呈下降趋势, 其均值从 $53 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 下降为 $24 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. 这是由于近 10 年来, 随着老城工业区的环境规划治理, 很多分散污染企业统一规划搬迁到城郊工业区, 老城区地下水水质有所改善, 地下水

$\rho(I^-)$ 下降. 另外, 非城镇化建设用地地下水中 $\rho(I^-)$ 升高, 其均值从 10 年前的 $22 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 增加为 $33 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$.

2.2 高碘地下水的成因分析

2.2.1 高碘地下水来源

Cl^- 和 Br^- 作为自然界中相对稳定的保守元素, 不受环境中物理、化学和微生物作用影响, 氯溴系数 $n(\text{Cl}^-)/n(\text{Br}^-)$ 常作为成因系数判断水动力条件和溶质来源及其迁移过程^[27,28]. 地下水 $n(\text{Cl}^-)/n(\text{Br}^-) > 650$ 为海相成因, 否则小于 650 为蒸发来源^[29,30]. 研究区高碘地下水样品 $n(\text{Cl}^-)/n(\text{Br}^-)$ 介于 53 ~ 17 619 (图 8), 反映了珠江三角洲地区高碘地下水的海洋源和蒸发源. 随着 $\rho(\text{Cl}^-)$ 的增加, 岩盐溶解导致 $n(\text{Cl}^-)/n(\text{Br}^-)$ 迅速增加. 相比之下, 蒸发浓缩并未改变 $n(\text{Cl}^-)/n(\text{Br}^-)$, 直到发生岩盐饱和. 由图 8 可见, 相较于裂隙高碘水, 孔隙高碘地下水样品 $n(\text{Cl}^-)/n(\text{Br}^-)$ 更大, 其离散程度更高. 因此, 海相沉积地层溶滤、岩盐溶解和蒸发浓缩

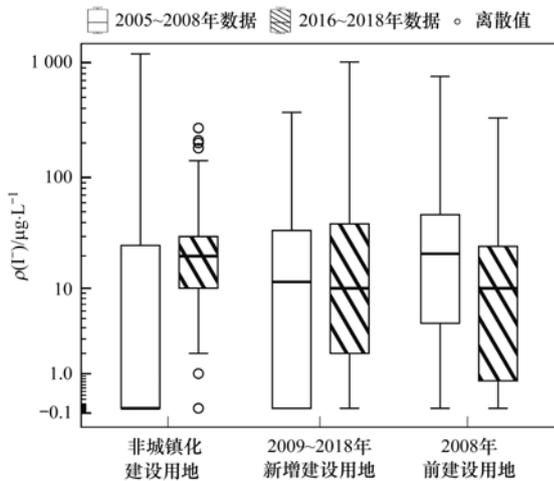


图7 不同时期不同城镇化水平地下水 $\rho(I^-)$ 箱图

Fig. 7 The $\rho(I^-)$ box diagram of groundwater in different periods and urbanization levels

(海水入侵)是孔隙高碘地下水的重要驱动力,而垂向淋溶是裂隙浅层含水层高碘地下水的主要水化学演变过程。

由 Gibbs 图可见(图 9),研究区孔隙高碘地下水样品点主要分布在岩石风化和蒸发浓缩(海咸水入侵)两个区域, $\rho(I^-) > 0.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的超高碘地下水更靠近蒸发浓缩(海咸水入侵)区域。孔隙超高碘地下水的 $\rho(\text{Na}^+) / [\rho(\text{Na}^+) + \rho(\text{Ca}^{2+})]$ 主要集中在 0.94 ~ 0.98 之间, $\rho(\text{TDS})$ 介于 3 330 ~ 19 530 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。说明,孔隙高碘地下水尤其是超高碘地下水与海水具有相似的特征,高碘地下水的形成与历史上的海咸水入侵密切相关,表现为地下水 $\rho(\text{TDS})$ 、 $\rho(\text{Na}^+)$ 和 $\rho(\text{Cl}^-)$ 同时升高。广州南部、深圳和东莞等沿海地区,处于地下水径流缓慢的排泄区,含水层为更新统海冲积砂黏土,阳离子交替吸附与蒸发浓缩作用有利于地下水中碘离子富集。研

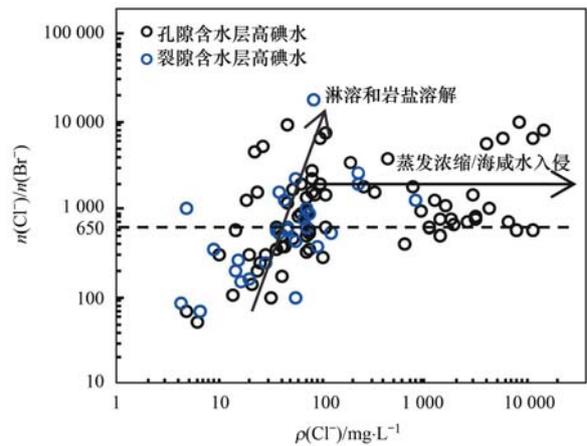


图8 不同含水层高碘地下水 $\rho(\text{Cl}^-)$ 与 $n(\text{Cl}^-)/n(\text{Br}^-)$ 关系

Fig. 8 Relationship between $\rho(\text{Cl}^-)$ and $n(\text{Cl}^-)/n(\text{Br}^-)$ in high-iodine groundwater in various aquifers

究区裂隙高碘地下水主要位于岩石风化和阳离子交换区域,其 $\rho(I^-)$ 主要介于 0.1 ~ 0.5 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$,进一步说明,水岩相互作用以及城镇化伴随的还原性污水的淋溶下渗透诱发富碘有机质降解可能是裂隙浅层高碘地下水演变的主要水化学过程。

2.2.2 基于“主成分分析”的高碘地下水驱动因素

应用主成分分析法(PCA)对研究区各含水层地下水主要离子间的关系进行分析,探讨各含水层高碘地下水的赋存特征及控制因素。本研究选择影响地下水水质的 17 个指标(K^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- 、TDS、总硬度、电导率 EC、TFe、 Mn^{2+} 、COD、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、pH 和 I^-),分别对孔隙水($n = 1\ 053$ 组)和裂隙水($n = 482$ 组)化学数据进行了 KMO 检验和 Barlett 球形检验,结果显示(表 2),KMO 值分别为 0.619 和 0.605, Barlett 球形检验值分别为 42 061.270 和 11 676.730 ($P < 0.001$)。基于特征值大于 1 的筛

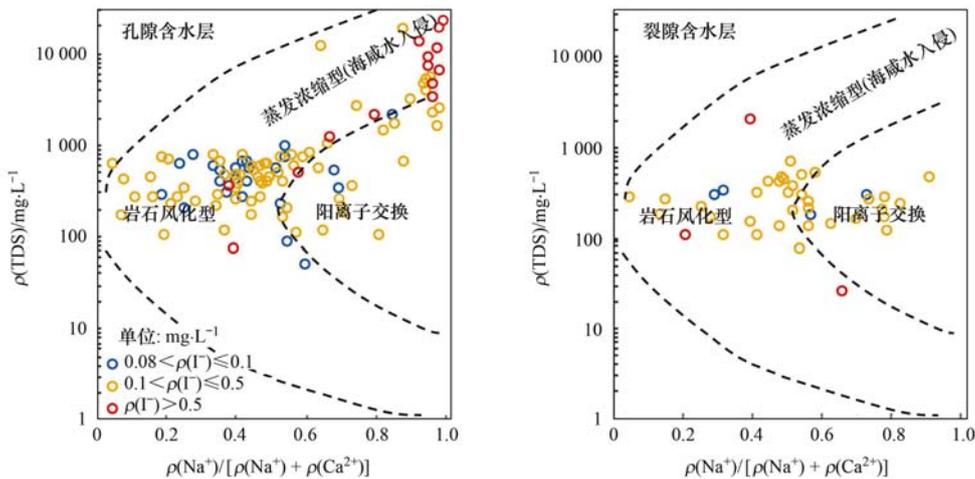


图9 不同含水层高碘地下水化学组分 Gibbs 图

Fig. 9 Gibbs graphs of hydrochemical composition of high-iodine groundwater in various aquifers

选要求,分别识别出影响珠江三角洲孔隙和裂隙高碘地下水水质演化 4 个主控因子,累积方差分别为 83.195% 和 77.023%。因子载荷矩阵详见表 2。

2.2.2.1 孔隙含水层高碘地下水驱动因素

孔隙水主成分分析显示(表 2),主成分 1(PC1)的贡献率为 30.071%。碘离子荷载较大,Na⁺、Cl⁻、TDS、Mg²⁺、I⁻ 和 EC 呈强正相关关系。结果表明,研究区孔隙地下水 ρ(I⁻) 较高,I⁻ 已经成为地下水的重要组成部分之一。已有研究表明^[31],蒸发岩盐溶解、海水入侵和城镇化伴随的污水泄漏可为地下水中的 Na⁺、Mg²⁺、Cl⁻ 和 I⁻ 提供来源;珠江三角洲孔隙含水层历史上发生过 3 次海咸水入侵,因此,

PC1 代表海侵因素,研究区孔隙高碘地下水受蒸发盐岩溶解和海咸水入侵影响明显。另外,近 10 年来,伴随城镇化扩张,珠江三角洲毗邻南海的珠江口地区地下水 ρ(I⁻) 升高明显,且高碘地下水比例明显增高(图 1)。调查显示,近年来沿海地区养殖业发达,且河道人工挖沙现象普遍^[32]。挖沙过程中,孔隙含水层遭到破坏,历史沉积层富碘土壤淋溶解析^[16,33] 促使孔隙含水层中碘富集。同时,还原性污水(如化粪池废水和生活污水)通常富含高浓度的 I⁻ 和 NH₄⁺^[34]。因此,靠近海洋的富碘土壤的淋滤可能是研究区孔隙高碘地下水的主要来源,城市化进程中还原性富碘污水渗漏入渗可能是孔隙水中碘的另一重要来源。

表 2 研究区各含水层地下水主要离子主成分分析¹⁾

Table 2 Principal component analysis of main ions in various aquifers in the study area

孔隙水 指标	主成分					裂隙水 指标	主成分			
	PC1	PC2	PC3	PC4	PC5		PC1	PC2	PC3	PC4
Na ⁺	0.913	0.045	0.335	0.089	0.024	Cl ⁻	0.853	0.325	0.021	0.084
Cl ⁻	0.880	0.174	0.397	0.042	0.003	Mg ²⁺	0.778	0.283	0.339	-0.077
TDS	0.869	0.162	0.425	0.112	0.040	I ⁻	0.763	-0.123	-0.010	0.062
Mg ²⁺	0.816	0.208	0.469	0.113	-0.006	EC	0.724	0.510	0.317	0.065
I ⁻	0.784	0.002	-0.146	0.037	-0.013	总硬度	0.689	0.377	0.560	-0.097
EC	0.735	0.147	0.061	0.026	0.005	TDS	0.669	0.656	0.329	0.022
TFe	0.022	0.939	0.124	-0.114	-0.012	NH ₄ ⁺	0.665	0.003	0.056	-0.392
Mn ²⁺	0.045	0.911	0.207	-0.117	-0.038	Na ⁺	0.634	0.553	0.024	0.136
COD	0.176	0.897	0.019	0.179	0.001	Mn ²⁺	0.625	-0.134	-0.039	0.225
NH ₄ ⁺	0.227	0.761	-0.096	0.321	-0.010	K ⁺	0.074	0.848	0.084	0.011
SO ₄ ²⁻	0.252	-0.102	0.784	0.001	0.145	NO ₃ ⁻	0.044	0.758	-0.379	-0.119
Ca ²⁺	0.243	0.484	0.704	0.172	-0.028	SO ₄ ²⁻	0.023	0.727	0.306	0.058
总硬度	0.582	0.391	0.660	0.160	-0.020	pH	-0.107	-0.085	0.840	0.080
HCO ₃ ⁻	0.202	0.122	0.004	0.864	-0.008	HCO ₃ ⁻	0.531	0.233	0.745	-0.014
pH	-0.020	-0.001	0.129	0.828	-0.073	Ca ²⁺	0.607	0.385	0.608	-0.096
NO ₃ ⁻	-0.104	-0.027	0.048	-0.175	0.924	COD	0.173	0.069	0.081	0.911
K ⁺	0.573	-0.029	0.139	0.280	0.608	TFe	0.080	-0.035	-0.038	0.866
特征值	5.112	3.633	2.348	1.795	1.255	特征值	5.302	3.396	2.528	1.868
方差贡献率/%	30.071	21.373	13.809	10.560	7.382	方差贡献率/%	31.189	19.978	14.870	10.986
累计贡献率/%	30.071	51.444	65.253	75.813	83.195	累计贡献率/%	31.189	51.166	66.036	77.023

1) 黑体字为各主成分主要影响指标; TFe 表示总铁

主成分 2(PC2) 的贡献率为 21.373%, TFe、Mn²⁺、COD 和 NH₄⁺ 呈显著正相关。PC2 为还原因子,表明在天然沉积环境和有机污染物输入综合作用下,三角洲平原区形成了有利于高碘地下水赋存的还原环境。珠江三角洲第四纪沉积物中含有丰富的铁锰(氧)氢氧化物^[35],由于其对碘的高吸附能力,因此,认为富含铁锰(氧)氢氧化物的淤泥质沉积层可能是珠江三角洲地区沉积物碘的主要储层^[36,37]。另外,城镇化伴随的生活污水和工业废水的泄漏促使耗氧量进一步升高,还原环境下,铁锰(氧)氢氧化物被还原溶解,导致吸附在其表面的碘释放富集。

主成分 3(PC3) 的贡献率为 13.809%, SO₄²⁻、

Ca²⁺、总硬度、TDS 和 Mg²⁺ 呈较强-中等正相关关系,三角洲孔隙含水层还原环境下 SO₄²⁻ 主要来源于工业酸雨的入渗,因子 F3 代表了工业污染^[38] 对该区地下水化学组分的影响。而因子中 I⁻ 荷载低,说明工业污染对孔隙含水层地下水中碘的富集影响相对较小。主成分 4(PC4) 的贡献率为 10.560%, HCO₃⁻ 和 pH 值呈较强的正相关关系, NH₄⁺ 呈弱正相关关系。表明孔隙含水层弱碱性还原环境有利于高碘地下水的赋存。主成分 5(PC5) 的贡献率为 7.382%, NO₃⁻ 和 K⁺ 具有较强的正荷载, I⁻ 荷载低,表明农业活动对孔隙水高碘水影响较小。

2.2.2.2 裂隙含水层高碘地下水驱动因素

裂隙水主成分 1 (PC1) 的贡献率为 31.189%, I^- 与 NH_4^+ 、 HCO_3^- 和 Ca^{2+} 呈较好的正相关关系. 珠江三角洲裂隙高碘地下水主要分布于富含碳酸盐岩的泥盆系-二叠系沉积地层中,沿海地区富含碳酸盐的岩石通常富含碘和氮有机质^[39]. 研究区裂隙高碘地下水主要为重碳酸型水. 表明还原条件下,珠江三角洲裂隙含水层沉积地层中富碘、富氮有机质的降解导致地下水中 I^- 、 NH_4^+ 和 HCO_3^- 富集. 另外, PC1 显示, Cl^- 、 Mg^{2+} 、 I^- 、EC、总硬度、TDS、 Na^+ 和 Mn^{2+} 呈良好的正相关关系. 表明城市化伴随还原性污水的泄漏可能是裂隙含水层高碘地下水的主要来源之一. 调查显示,城郊地区城市化过程中还原性污水渗漏较为普遍,化粪池、工业废水和生活污水均含有高浓度的 I^- 和 NH_4^+ ^[36]. 同时,生活污水和工业废水的泄漏也促使地下水耗氧量升高,因此,城镇化过程中的低氧污水下渗透发了富碳海相岩层中富碘有机质的降解,可能是珠江三角洲裂隙含水层高碘地下水分布的主要驱动因素.

主成分 2 (PC2) 的贡献率为 19.978%. K^+ 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 具有较强的荷载, TDS、 Na^+ 、EC 具有中等荷载, Ca^{2+} 、总硬度、 Cl^- 和 Mg^{2+} 具有较弱的荷载, 均与 PC2 呈正相关关系. PC2 代表生活污水、工业废水的泄漏入渗. 主成分 3 (PC3) 的贡献率为 14.870%. pH、 HCO_3^- 、 Ca^{2+} 和总硬度呈较强-中等正相关关系. PC3 指示富含碳酸盐岩的裂隙含水层在水岩相互作用下,地下水中 HCO_3^- 和 Ca^{2+} 离子富集. 主成分 4 (PC4) 的贡献率为 10.986%. COD 和 TFe 具有强荷载, NH_4^+ 和 Mn^{2+} 呈弱荷载, PC4 代表还原因子. PC3 和 PC4 指示裂隙含水层弱碱性还原环境有利于高碘地下水的赋存.

3 结论

(1) 珠江三角洲浅层孔隙含水层 $\rho(I^-) > 0.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的高碘地下水占比 8.0%, 浅层裂隙高碘地下水占比 7.5%, 浅层岩溶含水层高碘地下水未检出. 浅层孔隙和裂隙高碘地下水主要分布在城镇化快速发展的三角洲平原区、三角洲周缘丘陵台地和河谷平原交接带城郊地区. 城镇化地区高碘地下水比例为非城镇化地区的 3 倍以上.

(2) 三角洲平原区第四系淤泥质沉积地层中富碘有机质的降解以及含碘铁锰(氧)氢氧化物的还原性溶解是浅层孔隙高碘地下水的主要来源,城市化伴随的富碘污水的泄漏是浅层孔隙水中碘化物的重要来源. 相比之下,城镇化过程中富碘工业废水以及还原性生活污水泄漏入渗透发了富碳酸盐海相地

层中富碘有机质的降解是浅层裂隙地下水中碘富集的主要驱动力. 三角洲平原区封闭-半封闭的富含有机质的中性-弱碱性还原环境是高点碘地下水赋存的主要成因,城镇化过程中人为活动的输入加剧了地下水中碘的富集.

参考文献:

- [1] Laurberg P, Cerqueira C, Ovesen L, *et al.* Iodine intake as a determinant of thyroid disorders in populations[J]. *Best Practice & Research Clinical Endocrinology & Metabolism*, 2010, **24** (1): 13-27.
- [2] Tang Q F, Xu Q, Zhang F C, *et al.* Geochemistry of iodine-rich groundwater in the Taiyuan Basin of central Shanxi Province, North China [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2013, **135**: 117-123.
- [3] World Health Organization (WHO). Assessment of iodine deficiency disorders and monitoring their elimination: a guide for programme managers, (3rd ed) [M]. Geneva: World Health Organization, 2007.
- [4] Kassim I A R, Moloney G, Busili A, *et al.* Iodine intake in Somalia is excessive and associated with the source of household drinking water [J]. *The Journal of Nutrition*, 2014, **144** (3): 375-381.
- [5] Vouchkova D D, Ernsten V, Hansen B, *et al.* Assessment of spatial variation in drinking water iodine and its implications for dietary intake: a new conceptual model for Denmark [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **493**: 432-444.
- [6] Álvarez F, Reich M, Snyder G, *et al.* Iodine budget in surface waters from Atacama: Natural and anthropogenic iodine sources revealed by halogen geochemistry and iodine-129 isotopes [J]. *Applied Geochemistry*, 2016, **68**: 53-63.
- [7] Zhang E Y, Wang Y Y, Qian Y, *et al.* Iodine in groundwater of the North China Plain: Spatial patterns and hydrogeochemical processes of enrichment [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2013, **135**: 40-53.
- [8] Togo Y S, Takahashi Y, Amano Y, *et al.* Age and speciation of iodine in groundwater and mudstones of the Horonobe area, Hokkaido, Japan: implications for the origin and migration of iodine during basin evolution [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2016, **191**: 165-186.
- [9] Korobova E, Kolmykova L, Ryzhenko B, *et al.* Distribution and speciation of iodine in drinking waters from geochemically different areas of Bryansk region contaminated after the Chernobyl accident in relation to health and remediation aspects [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2018, **184**: 311-317.
- [10] GB/T 19380-2016, 水源性高碘地区和高碘病区的划定[S].
- [11] 张二勇, 张福存, 钱永, 等. 中国典型地区高碘地下水分布特征及启示[J]. *中国地质*. 2010, **37**(3): 797-802.
- [12] Zhang E Y, Zhang F C, Q Y, *et al.* The distribution of high iodine groundwater in typical areas of China and its inspiration [J]. *Geology in China*, 2010, **37**(3): 797-802.
- [13] Huang G X, Liu C Y, Li L P, *et al.* Spatial distribution and origin of shallow groundwater iodide in a rapidly urbanized delta: a case study of the Pearl River Delta [J]. *Journal of Hydrology*, 2020, **585**, doi: 10.1016/j.jhydrol.2020.124860.
- [13] 吴飞, 王曾祺, 童秀娟, 等. 我国典型地区浅层高碘地下水分布特征及其赋存环境[J]. *水资源与水工程学报*, 2017, **28**(2): 99-104.
- [13] Wu F, Wang Z Q, Tong X J, *et al.* The distribution characteristics and storage environments of rich iodine in shallow

- groundwater of typical areas in China [J]. *Journal of Water Resources and Water Engineering*, 2017, **28**(2): 99-104.
- [14] Liu W, Yang H X, Li B, *et al.* Determination of bromine and iodine speciation in drinking water using high performance liquid chromatography-inductively coupled plasma-mass spectrometry [J]. *Geostandards and Geoanalytical Research*, 2011, **35**(1): 69-74.
- [15] Li J X, Wang Y X, Guo W, *et al.* Iodine mobilization in groundwater system at Datong basin, China: evidence from hydrochemistry and fluorescence characteristics [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **468-469**: 738-745.
- [16] Voutchkova D D, Ernstsens V, Kristiansen S M, *et al.* Iodine in major Danish aquifers [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2017, **76**(13), doi: 10.1007/s12665-017-6775-6.
- [17] 广东省统计局. 广东统计年鉴 2019 年 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2019.
- [18] Huang G X, Sun J C, Zhang Y, *et al.* Impact of anthropogenic and natural processes on the evolution of groundwater chemistry in a rapidly urbanized coastal area, South China [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **463-464**: 209-221.
- [19] GB/T 8538-1995, 饮用天然矿泉水检验方法 [S].
- [20] Zhang F E, Huang G X, Hou Q X, *et al.* Groundwater quality in the Pearl River Delta after the rapid expansion of industrialization and urbanization: distributions, main impact indicators, and driving forces [J]. *Journal of Hydrology*, 2019, **577**, doi: 10.1016/j.jhydrol.2019.124004.
- [21] Gibbs R J. 1970. Mechanisms controlling world water chemistry [J]. *Science*, **170**(3962): 1088-1090.
- [22] 张伟娜. 环境水体中碘的存在形态及其影响因素研究 [D]. 长春: 吉林大学, 2012.
- Zhang W N. Studies on speciation and influencing factors of iodine in environmental water system [D]. Changchun: Jilin University, 2012.
- [23] Yang H X, Liu W, Li B, *et al.* Speciation analysis for iodine in groundwater using high performance liquid chromatography-inductively coupled plasma-mass spectrometry (HPLC-ICP-MS) [J]. *Geostandards and Geoanalytical Research*, 2007, **31**(4): 345-351.
- [24] Hu Q H, Zhao P H, Moran J E, *et al.* Sorption and transport of iodine species in sediments from the Savannah River and Hanford Sites [J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2005, **78**(3): 185-205.
- [25] Dai J L, Zhang M, Hu Q H, *et al.* Adsorption and desorption of iodine by various Chinese soils: II. Iodide and iodate [J]. *Geoderma*, 2009, **153**(1-2): 130-135.
- [26] GB/T 14848-2017, 地下水质量标准 [S].
- [27] Beekman H E, Eggenkamp H G M, Appelo C A J. An integrated modelling approach to reconstruct complex solute transport mechanisms—Cl and $\delta^{37}\text{Cl}$ in pore water of sediments from a former brackish lagoon in the Netherlands [J]. *Applied Geochemistry*, 2011, **26**(3): 257-268.
- [28] Katz B G, Eberts S M, Kauffman L J. Using Cl/Br ratios and other indicators to assess potential impacts on groundwater quality from septic systems: a review and examples from principal aquifers in the United States [J]. *Journal of Hydrology*, 2011, **397**(3-4): 151-166.
- [29] Davis S N, Cecil L D, Zreda M, *et al.* Chlorine-36, bromide, and the origin of spring water [J]. *Chemical Geology*, 2001, **179**(1-4): 3-16.
- [30] Sanders L L. Geochemistry of formation waters from the Lower Silurian Clinton Formation (Albion Sandstone), eastern Ohio [J]. *AAPG Bulletin*, 1991, **75**(10): 1593-1608.
- [31] 张昌延, 何江涛, 张小文, 等. 珠江三角洲高砷地下水赋存环境特征及成因分析 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(8): 3631-3639.
- Zhang C Y, He J T, Zhang X W, *et al.* Geochemical characteristics and genesis analyses of high-arsenic groundwater in the Pearl River Delta [J]. *Environmental Science*, **39**(8): 3631-3639.
- [32] 王训明. 人工挖沙对珠江水系水情的影响研究 [D]. 南京: 河海大学, 2007.
- [33] Xue X B, Li J X, Xie X J, *et al.* Impacts of sediment compaction on iodine enrichment in deep aquifers of the North China Plain [J]. *Water Research*, 2019, **159**: 480-489.
- [34] Umezawa Y, Hosono T, Onodera S I, *et al.* Sources of nitrate and ammonium contamination in groundwater under developing Asian megacities [J]. *Science of the Total Environment*, 2008, **404**(2-3): 361-376.
- [35] Wang Y, Jiao J J, Cherry J A. Occurrence and geochemical behavior of arsenic in a coastal aquifer-aquitard system of the Pearl River Delta, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **427-428**: 286-297.
- [36] Shetya W H, Young S D, Watts M J, *et al.* Iodine dynamics in soils [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2012, **77**: 457-473.
- [37] Li J X, Zhou H L, Qian K, *et al.* Fluoride and iodine enrichment in groundwater of North China Plain: evidences from speciation analysis and geochemical modeling [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **598**: 239-248.
- [38] 张涛, 王明国, 张智印, 等. 然乌湖流域地表水水化学特征及控制因素 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(9): 4003-4010.
- Zhang T, Wang M G, Zhang Z Y, *et al.* Hydrochemical characteristics and possible controls of the surface water in Ranwu Lake Basin [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(9): 4003-4010.
- [39] Fuge R, Johnson C C, Phillips W J. An automated method for the determination of iodine in geochemical samples [J]. *Chemical Geology*, 1978, **23**(1-4): 255-265.

CONTENTS

Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in Urban Soils of Major Cities in China	PENG Chi, HE Ya-lei, GUO Zhao-hui, <i>et al.</i> (1)
Environmental Behaviors of Plant Growth Regulators in Soil; A Review	CHEN Liang, HOU Jie, HU Xiao-lei, <i>et al.</i> (11)
Preparation and Application of Magnetic Water Treatment Materials Based on Iron Sludge	ZENG Hui-ping, ZHAI Long-xue, LI Dong, <i>et al.</i> (26)
Meta-analysis of the Impact of Different Ozone Metrics on Total Mortality in China	RUAN Fang-fang, LIU Ji-xin, CHEN Zhi-wei, <i>et al.</i> (37)
Variation Characteristics and Potential Sources of the Mt. Haituo Aerosol Chemical Composition in Different Pollution Processes During Winter in Beijing, China	ZHAO De-long, WANG Fei, LIU Dan-tong, <i>et al.</i> (46)
Real-time Source Apportionment of PM _{2.5} and Potential Geographic Origins of Each Source During Winter in Wuhan	JIANG Shu-ning, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (61)
Spatiotemporal Distribution and Seasonal Characteristics of Regional Transport of PM _{2.5} in Yuncheng City	WANG Yun-tao, ZHANG Qiang, WEN Xiao-yu, <i>et al.</i> (74)
Three-dimensional Structure Variation of PM _{2.5} During Cold Front Advance in Eastern China	MOU Nan-nan, ZHU Bin, LU Wen (85)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Atmosphere of Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area	LI Yan-xi, XIE Dan-ping, LI Yu-qing, <i>et al.</i> (93)
Atmospheric VOCs Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Large-scale Integrated Industrial Area and Surrounding Areas in Southwest China	LI Ling, ZHANG Dan, HU Wei, <i>et al.</i> (102)
Characteristics and Source Apportionment of Ambient VOCs in Lhasa	YU Jia-yan, HAN Yan, CHEN Mu-lan, <i>et al.</i> (113)
Variation Characteristics of Ambient Volatile Organic Compounds (VOCs) Volume Fraction During Hangzhou COVID-19 Period	LIN Xu, YAN Ren-chang, JIN Jia-jia, <i>et al.</i> (123)
Role of Atmospheric VOCs in Ozone Formation in Summer in Shanghai Suburb	FANG Qin, NIU Si-ping, CHEN Yu-dong, <i>et al.</i> (132)
Characteristics of VOCs and Formation Potentials of O ₃ and SOA in Autumn and Winter in Tongchuan, China	YI Xiao-xiao, LI Jiang-hao, LI Guang-hua, <i>et al.</i> (140)
Emission Characteristics and Emission Factors of Volatile Organic Compounds from E-waste Dismantling and Recycling Processes	XIE Dan-ping, HUANG Zhong-hui, LIU Wang, <i>et al.</i> (150)
Nonlinear Response Relationship Between Ozone and Precursor Emissions in the Pearl River Delta Region Under Different Transmission Channels	WU Yong-kang, CHEN Wei-hua, YAN Feng-hua, <i>et al.</i> (160)
Characteristics of Ozone Pollution and Influencing Factors in Urban and Suburban Areas in Zibo	WANG Yu-yan, YANG Wen, WANG Xiu-yan, <i>et al.</i> (170)
Pollution Characteristics and Health Risk of Heavy Metals in Fugitive Dust Around Zhaotong City	PANG Xiao-chen, HAN Xin-yu, SHI Jian-wu, <i>et al.</i> (180)
Characteristics of Microplastic Present in Urban Road Dust	FANG Qin, NIU Si-ping, CHEN Yu-dong, <i>et al.</i> (189)
Stable Isotopes of Precipitation in the Eastern Tarim River Basin and Water Vapor Sources	SONG Yang, WANG Sheng-jie, ZHANG Ming-jun, <i>et al.</i> (199)
Characteristics and Risk Assessment of Antibiotic Contamination in Chishui River Basin, Guizhou Province, China	WU Tian-yu, LI Jiang, YANG Ai-jiang, <i>et al.</i> (210)
Hydrochemical Characteristics and Controlling Factors of Surface Water and Groundwater in Wuding River Basin	LI Shu-jian, HAN Xiao, WANG Wen-hui, <i>et al.</i> (220)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Nutrients and Heavy Metals in Sediments of the Fuhe River Influenced Area, Baiyangdian Lake	CHEN Xing-hong, LI Li-qing, ZHANG Mei-yi, <i>et al.</i> (230)
Occurrence Characteristics of Microplastics in Mangrove Sediments in the Jiulong River Estuary and the Association with Heavy Metals	LIU Chang-jun, LUO Zhuan-xi, YAN Yu, <i>et al.</i> (239)
Quantitative Analysis of the Correlation Between Macroenthos Community and Water Environmental Factors and Aquatic Ecosystem Health Assessment in the North Canal River Basin of Beijing	HU Xiao-hong, ZUO De-peng, LIU Bo, <i>et al.</i> (247)
Analysis on the Spatial Variability Mechanism of the Characteristic Water Quality Factors of Urban River Channel Reclaimed Water	LIU Quan-zhong, PENG Ke, SU Zhen-hua, <i>et al.</i> (256)
DOM Characteristics Analysis of Surface Sediment-overlying Water in Suzhou Landscape River Course	LI Chao-nan, HE Jie, ZHU Xue-hui, <i>et al.</i> (267)
Distribution of Typical Pollutants from Rainwater Sewer Sediments in Suzhou City	YE Rong, SHENG Ming-jun, JIANG Yong-bo, <i>et al.</i> (277)
Persistent Inhibition of Ammonium Released from Contaminated Sediments Through a Modified Zeolite and Biofilm System Enhanced by Signaling Molecules	XU Jin-lan, XU Yang, LI Xiu-min, <i>et al.</i> (285)
Effects of the Three Gorges Reservoir Operation on Vertical Distribution of Chlorophyll a and Environmental Factors in Tributaries	TIAN Pan, LI Ya-li, LI Ying-jie, <i>et al.</i> (295)
Characteristic Analysis of <i>nirS</i> Denitrifying Bacterial Community in Lijiahe Reservoir During Stratification	LIANG Wei-guang, HUANG Ting-lin, ZHANG Hai-han, <i>et al.</i> (306)
Spatial and Temporal Distribution of Aerobic Denitrification Bacterial Community in Sediments of Gangan Reservoir	ZHANG Zi-wei, CHEN Zhao-ying, ZHANG Tian-na, <i>et al.</i> (314)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Metal Elements for Groundwater in the Ningxia Region of China	WANG Xiao-dong, TIAN Wei, ZHANG Xue-yan (329)
Geochemical Characteristics and Driving Factors of High-Iodine Groundwater in Rapidly Urbanized Delta Areas: A Case Study of the Pearl River Delta	LU Xiao-li, LIU Jing-tao, HAN Zhan-tao, <i>et al.</i> (339)
Multimedia Distribution Characteristics and Risk Assessment of 22 PPCPs in the Water Environment of Qingpu District, Yangtze River Delta Demonstration Area	ZHANG Zhi-bo, DUAN Yan-ping, SHEN Jia-hao, <i>et al.</i> (349)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of 209 Polychlorinated Biphenyls in Dongting Lake and the Inflow Rivers	HUANG Zhi-feng, ZHENG Bing-hui, YIN Da-qiang, <i>et al.</i> (363)
Estimation of Nitrous Oxide Emission from River System Based on Water Discharge and Dissolved Nitrous Oxide Concentration	LI Bing-qing, HU Min-peng, WANG Ming-feng, <i>et al.</i> (369)
Comparison Between Tributary and Main Stream and Preliminary Influence Mechanism of CO ₂ Flux Across Water-air Interface in Wanzhou in the Three Gorges Reservoir Area	QIN Yu, OUYANG Chang-yue, WANG Yu-xiao, <i>et al.</i> (377)
Preparation of Functional Attapulgite Composite and Its Adsorption Behaviors for Congo Red	LIAO Xiao-feng, ZHONG Jing-ping, CHEN Yun-nen, <i>et al.</i> (387)
Adsorption Characteristics and Long-term Effectiveness Evaluation of Iron-nitrogen Co-doped Biochar for Secondary Water-Soluble Organic Matter	WU Chen-xi, XU Lu, JIN Xin, <i>et al.</i> (398)
Nitritation Performance of Zeolite Moving Bed Biofilm Reactor for Ammonium Wastewater Treatment	DENG Cui-lan, GUO Lu, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (409)
Effect of Temperature on ANAMMOX Process in Sequencing Batch Biofilm Reactors; Nitrogen Removal Performance and Bacterial Community	WU Shan, WANG Shu-ya, WANG Fen, <i>et al.</i> (416)
Effects of Carriers on ANAMMOX Sludge Activity Recovery and Microbial Flora Characteristics	LUO Jing-wen, YANG Jin-jin, LI Shao-kang, <i>et al.</i> (424)
Spatial Distribution and Source Analysis of Soil Heavy Metals in a Small Watershed in the Mountainous Area of Southern Ningxia Based on PMF Model	XIA Zi-shu, BAI Yi-ru, WANG You-qi, <i>et al.</i> (432)
Heavy Metal Concentration Characteristics and Health Risks of Farmland Soils in Typical Pyrite Mining Area of the Central Zhejiang Province, China	CHENG Xiao-meng, SUN Bin-bin, WU Chao, <i>et al.</i> (442)
Risk Zoning of Heavy Metals in a Peri-urban Area in the Black Soil Farmland Based on Agricultural Products	WU Song-ze, WANG Dong-yan, LI Wen-bo, <i>et al.</i> (454)
Main Control Factors of Cadmium Content in Rice in Carbonate Rock Region of Guangxi Based on the DGT Technique	SONG Bo, XIAO Nai-chuan, MA Li-jun, <i>et al.</i> (463)
Inhibitory Effects of Soil Amendment Coupled with Water Management on the Accumulation of Cd and Pb in Double-Cropping Rice	LI Lin-feng, WANG Yan-hong, LI Yi-chun, <i>et al.</i> (472)
Characteristics and Health Risk Assessment of Cadmium, Lead, and Arsenic Accumulation in Leafy Vegetables Planted in a Greenhouse	DONG Jun-wen, GAO Pei-pei, SUN Hong-xin, <i>et al.</i> (481)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Polychlorinated Biphenyls in E-waste Disposal Residue-Soil-Vegetable	ZHANG Ya-ping, LU Zhan-lu, WANG Xian-jiang, <i>et al.</i> (490)
Soil-crop Distribution and Health Risk Assessment of Organochlorine Pesticides on Typical Agricultural Land in Southern Leizhou Peninsula	LIANG Xiao-hui, XIE Qi-lai, ZHENG Qian, <i>et al.</i> (500)
Effects of Heavy Metal Content on Fungal Community Structure in Urban Soil	GUO Da-lu, ZHANG Jian, SHEN Si, <i>et al.</i> (510)
Effects of Long-term Fertilization on Soil Nutrient Characteristics and Microbial Resource Restrictions in a Terrace on the Loess Plateau	WU Chun-xiao, GAO Xiao-feng, YAN Ben-shuai, <i>et al.</i> (521)
Microbial Composition and Diversity in Soil of <i>Torreya grandis</i> cv. <i>Merrillii</i> Relative to Different Cultivation Years After Land Use Conversion	JIANG Ni-wen, LIANG Chen-fei, ZHANG Yong, <i>et al.</i> (530)
Effect of Combined Application of Biochar with Chemical Fertilizer and Organic Fertilizer on Soil Phosphatase Activity and Microbial Community	YANG Wen-na, YU Luo, LUO Dong-hai, <i>et al.</i> (540)
Extracellular Enzyme Stoichiometry and Microbial Metabolism Limitation During Vegetation Restoration Process in the Middle of the Qinling Mountains, China	XUE Yue, KANG Hai-bin, YANG Hang, <i>et al.</i> (550)
Effects of Biodegradable Film Raw Material Particles on Soil Properties, Wheat Growth, and Nutrient Absorption and Transportation	MIN Wen-hao, WANG Chun-li, WANG Li-wei, <i>et al.</i> (560)
Effects of Stalk Incorporation on Soil Carbon Sequestration, Nitrous Oxide Emissions, and Global Warming Potential of a Winter Wheat-Summer Maize Field in Guanzhong Plain	WAN Xiao-nan, ZHAO Ke-yue, WU Xiong-wei, <i>et al.</i> (569)