

土壤学报
Acta Pedologica Sinica
ISSN 0564-3929, CN 32-1119/P

《土壤学报》网络首发论文

题目: 长江三角洲典型城市农田土壤重金属累积特征与来源
作者: 王信凯, 张艳霞, 黄标, 谢恩泽, 樊亚男, 胡文友, 赵永存
收稿日期: 2019-09-16
网络首发日期: 2020-05-06
引用格式: 王信凯, 张艳霞, 黄标, 谢恩泽, 樊亚男, 胡文友, 赵永存. 长江三角洲典型城市农田土壤重金属累积特征与来源. 土壤学报.
<http://kns.cnki.net/kcms/detail/32.1119.P.20200501.1633.002.html>



网络首发: 在编辑部工作流程中, 稿件从录用到出版要经历录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿等阶段。录用定稿指内容已经确定, 且通过同行评议、主编终审同意刊用的稿件。排版定稿指录用定稿按照期刊特定版式 (包括网络呈现版式) 排版后的稿件, 可暂不确定出版年、卷、期和页码。整期汇编定稿指出版年、卷、期、页码均已确定的印刷或数字出版的整期汇编稿件。录用定稿网络首发稿件内容必须符合《出版管理条例》和《期刊出版管理规定》的有关规定; 学术研究成果具有创新性、科学性和先进性, 符合编辑部对刊文的录用要求, 不存在学术不端行为及其他侵权行为; 稿件内容应基本符合国家有关书刊编辑、出版的技术标准, 正确使用和统一规范语言文字、符号、数字、外文字母、法定计量单位及地图标注等。为确保录用定稿网络首发的严肃性, 录用定稿一经发布, 不得修改论文题目、作者、机构名称和学术内容, 只可基于编辑规范进行少量文字的修改。

出版确认: 纸质期刊编辑部通过与《中国学术期刊 (光盘版)》电子杂志社有限公司签约, 在《中国学术期刊 (网络版)》出版传播平台上创办与纸质期刊内容一致的网络版, 以单篇或整期出版形式, 在印刷出版之前刊发论文的录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿。因为《中国学术期刊 (网络版)》是国家新闻出版广电总局批准的网络连续型出版物 (ISSN 2096-4188, CN 11-6037/Z), 所以签约期刊的网络版上网络首发论文视为正式出版。

DOI:10.11766/trxb201909160391

王信凯, 张艳霞, 黄标, 谢恩泽, 樊亚男, 胡文友, 赵永存. 长江三角洲典型城市农田土壤重金属累积特征与来源[J]. 土壤学报, 2020, 57

WANG Xinkai, ZHANG Yanxia, HUANG Biao, XIE Enze, FAN Ya'nan, HU Wenyu, ZHAO Yongcun. Accumulation and sources of heavy metals in agricultural soil in a city typical of the Yangtze River Delta, China[J]. Acta Pedologica Sinica, 2020, 57

长江三角洲典型城市农田土壤重金属累积特征与来源*

王信凯^{1,2}, 张艳霞^{1†}, 黄标¹, 谢恩泽^{2,3}, 樊亚男^{1,2}, 胡文友¹, 赵永存³

(1. 中国科学院土壤环境与污染修复重点实验室(南京土壤研究所), 南京 210008; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 土壤与农业可持续发展国家重点实验室(南京土壤研究所), 南京 210008)

摘要: 研究农田土壤重金属累积特征和来源对科学管理、安全利用土壤资源具有重要意义。通过野外采样与实验室分析研究了长江三角洲典型城市农田土壤重金属(Cd、Hg、As、Pb、Cr、Cu)含量、累积状况, 识别了农田土壤重金属来源。结果表明: (1) 六种土壤重金属的累积程度按照由重到轻的顺序为: Hg> Cd> Cu> As> Pb> Cr; (2) 以《土壤环境质量-农用地土壤污染风险管控标准》(GB 15618-2018)为参考, 土壤中Cu、Cd和Hg超过风险筛选值的比例分别为2.13%、1.06%和0.53%, As、Pb和Cr未超过风险筛选值; 利用地累积指数法进行土壤重金属污染评价发现, Cd和Hg的污染较其他四种元素严重, 其污染比例分别为12.83%和21.28%; (3) **地理探测器分析表明, 化肥和农药的使用量以及工业总产值均能解释六种重金属的空间分异, 其他环境因子能解释某些特定重金属的空间分异;** (4) 研究区土壤中As和Cr的主要来源为农业源和工业源; Cd和Hg的来源除了农业源与工业源外, 还有土壤母质; Cu来源与研究区农业活动、畜禽养殖活动以及工业活动有关, Pb主要来源于农业源、工业源和交通源。总之, 研究的六种重金属存在不同的累积趋势, 农业和工业活动是研究区土壤重金属累积的主要原因。研究区交通、社会活动等对土壤重金属累积的影响还需进一步研究与讨论。

关键词: 重金属; 污染源; **地理探测器**; 地累积指数; 张家港

中图分类号: X833 文献标志码: A

Accumulation and Sources of Heavy Metals in Agricultural Soil in a City Typical of the Yangtze River Delta, China

WANG Xinkai^{1,2}, ZHANG Yanxia^{1†}, HUANG Biao¹, XIE Enze^{2,3}, FAN Ya'nan^{1,2}, HU Wenyu¹, ZHAO Yongcun³

(1. Key Laboratory of Soil Environment and Pollution Remediation, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. State Key Laboratory of Soil &

*国家自然科学基金项目(41877512)、江苏省生态环境厅环保科研课题(2018013)和国家科技支撑计划项目(2015BAD05B04)资助
Supported by the National Natural Science Foundation of China (No.41877512), the Environmental Protection Research Project of Department of Ecology and Environment of Jiangsu Province (No.2018013) and the National Science-technology Support Plan Projects (Grant No. 2015BAD05B04)

† 通讯作者 Corresponding author, E-mail: yxzhang@issas.ac.cn

作者简介: 王信凯(1994-), 男, 安徽霍邱人, 博士研究生, 主要从事土壤资源演变与评价研究。E-mail: wxk1704@163.com

收稿日期: 2019-09-16; 收到修改稿日期: 2020-03-09; 网络首发日期 (www.cnki.net):

<http://pedologica.issas.ac.cn>

Abstract: 【Objective】Zhangjiagang City, located at the Yangtze River Delta, China, has experienced rapid economic development since the unfolding of the reform and opening up policy, and consequently the economic development has brought about a series of environmental problems that have aroused concerns among the society in recent years. For the purpose of scientifically managing soil resources and providing to decision-making support in the effort to control the heavy metal pollution problems from the source and to remedy contaminated farmland soils, this study was carried out to explore how heavy metals accumulate and to identify sources of the heavy metal pollutions in this city. 【Method】Totally, a total of 188 sampling sites were set up for collection of samples of surface and subsurface soils in the study area, in the light of soil types, land uses, sampling homogeneity, and surrounding contamination conditions. Totals of the six elements, i.e. Cd, Hg, As, Pb, Cr, and Cu, soil pH, and soil organic matter in the samples were measured. Sources and driving factors of the heavy metal pollution in the soil were analyzed and identified with the aid of principal component analysis (PCA) and GeoDetector. 【Results】Results show that: (1) In terms of accumulation degree, the six heavy metals follow a descending order: $Hg > Cd > Cu > As > Pb > Cr$; (2) With reference to the “Soil Environmental Quality Risk Control Standard for Soil Contamination of Agricultural Land (GB 15618-2018)”, about 2.13%, 1.06% and 0.53%, respectively, of the farmland soils polluted with Cu, Cd and Hg had the elements exceed the criteria, while almost none of the farmland soils polluted with As, Pb, and Cr do. Pollution assessment with the Geo-accumulation index method shows that among the six heavy metals pollutants, Cd and Hg were the two major ones and detected in 12.83% and 21.28% of the sampling sites, respectively; (3) Performance of the GeoDetector shows that among all the nine factors (pH, soil organic matter, soil type, fertilization application rate, pesticide application rate, population density, GDP, distance from road, and industrial output) discussed in this study, fertilization and pesticide application rates as well as industrial output were the main factors contributing to spatial variation of the six pollutants, while population density, GDP and distance from road were the ones explaining spatial variation of Pb; and (4) As and Cr came mainly from agricultural and industrial activities, Cd and Hg came from soil parent materials in addition to agricultural and industrial activities, Cu in the surface soil came from agriculture, livestock breeding, and industrial activities, while Pb came mainly from agricultural, transportation and industrial activities. 【Conclusion】In summary, the six heavy metals in the study area vary in accumulation characteristics. Agricultural and industrial activities are the major causes leading heavy metals pollution of the soil. Nevertheless, further researches should be carried out to figure out influences of social and transportation activities on accumulation of some certain heavy metals, such as Pb.

Key words: Heavy metals; Pollution sources; GeoDetector; Index of geo-accumulation; Zhangjiagang

近年来,随着我国城市化、工业化不断推进,工业生产中废水、废气的排放以及农业活动中肥料、农药的使用导致土壤中重金属的累积与超标现象日益凸显^[1]。土壤重金属污染具有降解难、毒性大、生物累积等特点,而重金属在土壤中累积不仅会对土壤本身及其周边环境产生不利影响,也会对农产品安全与人体健康产生威胁^[1-2]。针对我国土壤重金属累积与污染问题,已有学者在土壤重金属污染评价^[3-4]、源解析^[5-7]、人体健康风险评估^[8-9]、污染土壤管控与修复等^[10-11]方面开展了大量研究。长江三角洲作为我国经济最发达、城市化进程最快、人口最密集的地区之一,其土壤重金属污染日趋严重,农田土壤重金属呈逐年累积趋势^[12]。

张家港市作为长江三角洲典型城市,工业企业类型多样,农业发达,其土壤重金属污染

的潜在风险较高。Huang 等^[13]研究了该区内离工厂不同距离处土壤中 Hg 的累积、迁移和生物有效性,发现农药投入和工业活动会导致土壤 Hg 的累积,而土壤性质的变化则增加了作物对 Hg 吸收;邵学新^[14]在该区通过企业周边采样与大田采样研究,发现土壤类型差异造成了重金属在空间上分布的差异,而人为活动会增加重金属在土壤中的累积;刘静等^[15]在研究该区不同土地利用方式下土壤重金属的时空分布特征时,发现农业活动和母质影响了土壤重金属的累积与分布;赵永存等^[16]利用序贯指示模拟方法定量评价了该区土壤 Cu 空间预测过程中的不确定性,并发现 Cu 含量高的区域其空间表达的波动性也较高。以上研究表明,该区土壤重金属空间变异较大,且含量受人为活动影响明显。本文拟在前人研究基础上,利用地理探测器定量研究各种因子对农田土壤重金属的影响,并结合主成分分析法识别土壤重金属污染来源,为管理部门在解决土壤重金属累积农田的安全利用、源头阻控以及污染农田土壤修复等问题时提供决策支撑。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

张家港市位于江苏省南部,地处长江三角洲冲积平原,是一座港口工业强市。市域总面积 999 km²,其中陆域面积 799 km²。气候上属于北亚热带季风气候,年降水量 1039 mm,年均温 15.2 °C。研究区土壤类型以北部的雏形土和南部的人为土为主^[17](图 1)。雏形土主要由长江冲积母质发育形成,土壤一般呈碱性,质地为中、轻壤质;人为土主要由古泻湖相沉积物经长期耕作而成,土壤呈中性至微酸性,质地较黏,为重壤和黏土。

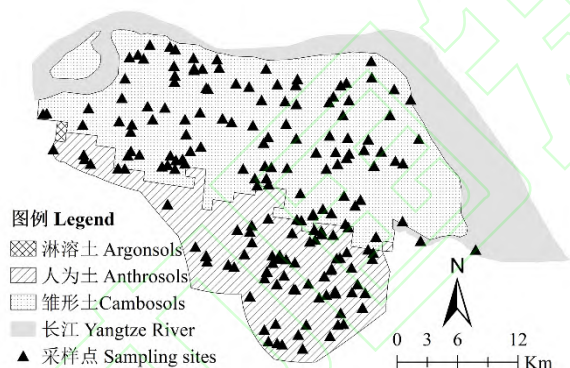


图 1 采样点分布与研究区土壤类型

Fig. 1 Spatial distribution of sampling sites and soil types in study area

1.2 样品采集与分析

样品采集时间为 2004—2005 年。根据土壤类型、土地利用方式、采样均匀性以及企业排污类型等,在企业周边大田上共布设 188 个样点(图 1)。取样时采用 GPS 记录每个点的经纬度信息并记录样点周围环境特征,每个采样点周围采集 6~8 处耕作层土壤(0~20 cm)与亚表层土壤(20~40 cm),拣去动植物残体、石块,混匀后缩分至 1~2 kg 装袋,送回实验室风干磨碎后待测。

土壤样品经室温风干后磨碎至 10 目、100 目等粒径供分析测试用。pH 采用玻璃电极法^[18]测定:称取 10 g 通过 10 目孔筛的风干土样,加 25 mL 去 CO₂ 水,搅拌 1 min,放置 30 min 后采用 PHS-3C 型酸度计测定。土壤有机质采用重铬酸钾外加热法测定^[18]。

Cd、Pb、Cr 和 Cu 全量的测定采用硝酸-盐酸(v:v, 3:1)消化^[19],具体步骤:称取 0.5~1.0 g 过 100 目孔筛的土壤样品放入聚四氟乙烯坩埚中,加 6~12 mL 硝酸-盐酸混合液(v:v, 3:1),摇匀放置过夜;然后将消化坩埚放置烘箱内消化 4~5 h,温度范围为 100~170 °C,接着在电热

板上加热（不需沸腾）至残留约 1 mL 消化液；冷却至室温后，用 1%硝酸溶解残留物，过滤至 25 mL 容量瓶中定容。其中 Cd 采用石墨炉原子吸收法测定，Pb、Cr 和 Cu 采用火焰原子吸收法测定。Hg 经硝酸—硫酸—五氧化二钒消解后采用冷原子吸收测汞仪测定；As 采用硫酸-硝酸-高氯酸消解，二乙基二硫代氨基甲酸银分光光度法测定^[20]。

1.3 土壤重金属污染评价方法

地累积指数法（Index of Geo-accumulation, I_{geo} ）由德国科学家 Muller^[21]在 1969 年提出，早先用于沉积物中重金属污染评价。由于土壤重金属污染除了受到人类活动、环境地球化学背景值影响之外，还可能受到自然成岩作用扰动的影响，而地累积指数法则将这种影响考虑到评价体系中。因此，地累积指数法现也常用于土壤重金属污染评价。其计算公式如下：

$$I_{geo} = \log_2 \frac{C_n}{K \cdot B_n} \tag{1}$$

式中， I_{geo} 为地累积指数， C_n 为样品中重金属浓度， B_n 为当地土壤环境背景值（由于重金属在土壤中迁移性较弱，亚表层土壤受外界影响较小，本研究选用亚表层土壤重金属含量代替背景值）， K 为考虑到各地岩石差异会引起背景值变动而选取的系数，本文 K 值取 1.5^[22]。地累积指数的分级与相应的污染程度划分见表 1。

表 1 地累积指数分级与污染程度
Table 1 Grading of Geo-accumulation index (I_{geo}) and contamination degree

地累积指数分级 Grade of I_{geo}	≤ 0	0~1	1~2	2~3	3~4	4~5	> 5
污染程度 Contamination degree	无污染	轻度-中等 污染	中等 污染	中度-强 污染	强污 染	强-极严重 污染	极严重 污染

1.4 地理探测器

地理探测器（GeoDetector）是探测变量空间分异性，揭示变量间相互关联并反映其背后驱动力的一组统计学分析方法^[23]。地理探测器主要用于研究环境因子与人体健康之间的关系^[24-25]，但近年来也用于土壤重金属空间变异的驱动因素研究^[26-27]。地理探测器模型由因子探测器、交互作用探测器、风险探测器和生态探测器四个子模型组成，本文主要利用地理探测器的核心模块因子探测器来定量研究不同因子对研究区农田土壤重金属空间分异的影响，因子探测器 q 值计算方法详见文献^[23]。

1.5 数据来源与分析

土壤重金属主要来源于成土母质和人类活动，而农田土壤重金属污染的来源主要有工业生产过程中“三废”的排放、交通污染、农业面源污染等^[26]。考虑到研究区自然地理环境特征、城市发展背景，本研究选取的因子主要包括以下五类：（1）土壤因子（pH，有机质，土壤类型）；（2）农业因子（化肥、农药使用量）；（3）社会因子（人口密度，GDP）；（4）交通因子（与道路距离）和（5）工业因子（工业总产值）。各因子与土壤重金属含量的相关性关系（表 2），结果表明选取的因子与六种重金属含量具有显著或极显著相关关系。其中土壤有机质数据参考已发表文献^[28]，农药、化肥使用量和工业总产值数据来自当地统计年鉴^[29]，土壤类型、人口密度和 GDP 等数据来自中国科学院资源环境科学数据中心，道路网数据来自 OpenStreetMap（www.openstreetmap.org）。

表 2 土壤重金属含量与各因子之间的相关性
Table 2 Relationships between soil heavy metals and various factors

因子 Factors	Pb	Hg	Cu	Cr	Cd	As
土壤有机质 Soil organic matter	-0.21**	0.62**	-0.34**	-0.11**	-0.43**	-0.09*

pH	0.23**	-0.57**	0.24**	-0.12**	0.59**	0.09*
化肥使用量 Fertilization application rate	0.29**	-0.25**	0.27**	0.13**	0.22**	-0.03
农药使用量 Pesticide application rate	0.29**	-0.25**	0.27**	0.13**	0.22**	-0.03
国内生产总值 GDP	0.23**	0.16**	-0.16**	-0.07	-0.12**	-0.18**
人口密度 Population density	0.23**	0.17**	-0.16**	-0.07	-0.11**	-0.18**
与道路距离 Distance from road	-0.17**	0.08*	-0.11**	-0.07	-0.07*	0.03
工业总产值 Industrial output	0.29**	-0.25**	-0.10**	-0.35**	0.48**	-0.07*

注: **表示 $P < 0.01$, *表示 $P < 0.05$ 。 Note: ** indicates $P < 0.01$, * indicates $P < 0.05$.

为便于数据在地理探测器中的分析,所有因子在预处理时均统一空间分辨率为 $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$ 。土壤 pH 和有机质数据采用逆距离权重法进行插值以获取其在全区的分布;研究区内各镇农药和化肥使用量根据各镇耕地面积占研究区耕地总面积比例与总使用量进行换算;所有因子在正式分析前均进行离散化处理。

2 结果与讨论

2.1 土壤重金属含量特征

六种重金属在表层土壤的含量显著高于亚表层,表层土壤中 Hg、Cd、Cu、As、Pb 和 Cr 分别有 79.79%、71.28%、64.89%、57.98%、57.45%和 45.21%的点位高于亚表层土壤,且由图 2 可见表层土壤重金属的变异性高于亚表层土壤,表明表层土壤重金属含量受外界活动影响大。表层土壤中 Hg 和 Cd 的变异性最大,Cu 和 Pb 的变异性次之,As 和 Cr 则表现出较弱的变异性。

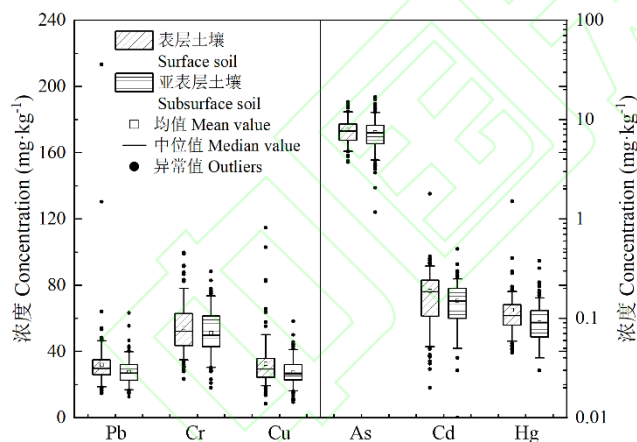


图 2 研究区表层 (0~20 cm)、亚表层 (20~40 cm) 土壤重金属含量

Fig. 2 Heavy metal concentrations in the surface (0~20 cm) and subsurface (20~40 cm) soil of the study area

2.2 土壤重金属含量的空间特征

Cd 和 Hg 的含量在空间上分别呈现出“北高南低”和“南高北低”的分布特征,Cd 高浓度点主要集中分布在北部,而 Hg 的高浓度点除南部分布比较集中外,中部也有较高浓度点位分布。土壤中 Cu 含量在空间上的总体特征为北部高于南部,但高浓度点主要分布在研究区东南部、中部和西部。As 在研究区南部和北部均有高浓度点位分布,且高浓度点位主要分布在西北、中部和东部区域。Pb 的含量在空间上的分布特征并不明显,其高浓度的点在研究区各部均有分布,其中在研究区西北部、中部和东部分布较为集中。Cr 的高浓度点主要分布在研究区中部、东部和南部 (图 3)。

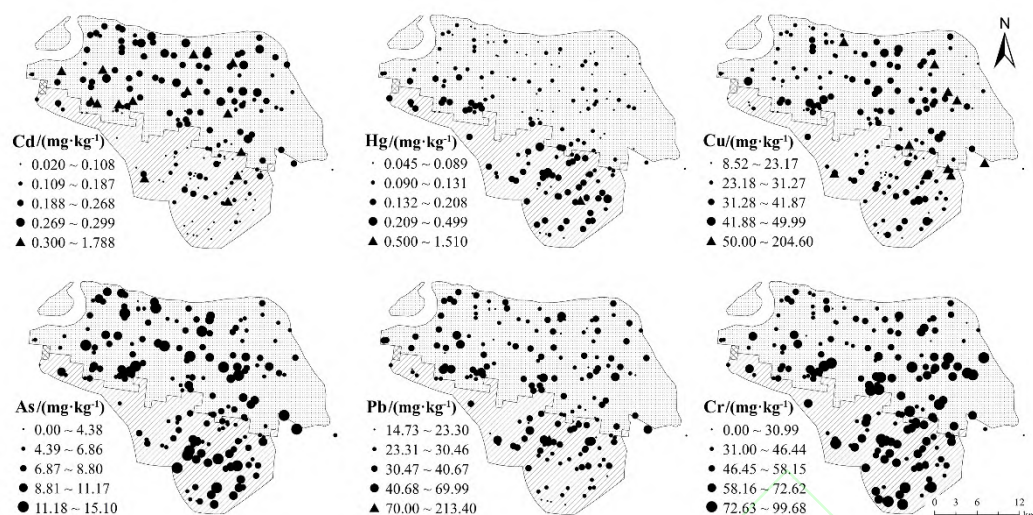


图3 研究区表层土壤重金属含量的空间分布特征

Fig. 3 Spatial distribution characteristics of heavy metal concentrations in the surface soil of the study area

2.3 土壤重金属污染评价

与《土壤环境质量-农用地土壤污染风险管控标准》(GB 15618-2018)的风险筛选值相比, Cu、Cd 和 Hg 超过风险筛选值的比例依次为 2.13%、1.06%和 0.53%, As、Cr 和 Pb 无点位超过筛选值。利用地累积指数法对研究区农田土壤重金属污染进行评价(图 4)。Cd 和 Hg 的污染程度较重, Cd 有 3.21%的样点处于中度污染状态, 8.56%的点位处于轻度-中度污染状态; Hg 有 20.86%的样点处于轻度-中度污染状态。As、Cu、Pb 和 Cr 各有 12.23%、11.17%、9.63%和 4.79%的样点处于污染状态。综上, 研究区农田土壤重金属污染的地累积指数评价结果按照由重至轻顺序依次为: Cd> Hg> As> Cu> Pb> Cr。

以上分析可以看出, 研究区表层土壤中六种重金属含量均显著高于亚表层, 表明这六种元素在表层土壤中存在累积现象, 但累积程度明显不同。Hg 和 Cd 累积程度最高, Cu、As、Pb 次之, Cr 最弱。地累积指数评价结果与累积趋势较为一致, 其显示 Cd 和 Hg 污染状况较其他四种重金属严重, Hg 污染点位较 Cd 多, Cd 污染状况较 Hg 严重; 而 As、Cu、Pb 和 Cr 污染状况相对较轻, 部分点位处于污染状态, 个别样点处于中度污染和中度-强污染状态。

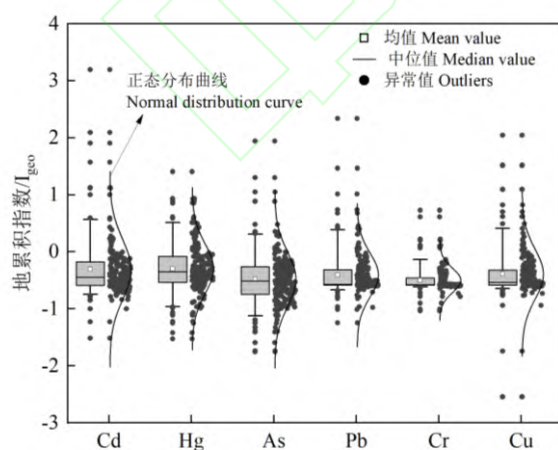


图4 重金属的地累积指数评价结果

Fig. 4 Assessment of Geo-accumulation index (I_{geo}) of heavy metals

2.4 土壤重金属影响因子探测

因子探测分析表明（表 3），化肥和农药的使用以及工业总产值对六种重金属空间分异均有较大的解释力，表明人类活动对研究区土壤重金属含量的影响明显。其他因子对土壤重金属的空间分异也有影响，如 GDP、人口密度及与道路距离对 Pb 的解释力最大，说明社会活动和交通活动对土壤中 Pb 的空间变异影响最大，李雨等^[27]研究湘潭县农田土壤重金属污染的驱动因子时，也发现 GDP 影响了重金属 Pb 的空间分异。此外，土壤本身性质也会对某些重金属的空间分异有影响，如 pH、土壤有机质和土壤类型对 Hg 和 Cd 空间分异的解释力最大。

表 3 环境因子对六种重金属的解释力 q 值

Table 3 Explanatory power (q value) of the studied factors for the six soil heavy metals

因子 Factors	As	Cr	Hg	Cd	Cu	Pb
土壤有机质 Soil organic matter	0.06**	0.07**	0.40**	0.24**	0.17**	0.07**
pH	0.12**	0.03	0.40**	0.38**	0.07**	0.07**
土壤类型 Soil type	0.04	0.03	0.34**	0.34**	0.05*	0.03
化肥使用量 Fertilization application rate	0.27**	0.40**	0.43**	0.44**	0.26**	0.17**
农药使用量 Pesticide application rate	0.27**	0.27**	0.43**	0.42**	0.23**	0.17**
国内生产总值 GDP	0.07**	0.02	0.05**	0.03**	0.07**	0.08**
人口密度 Population density	0.05**	0.03	0.05**	0.03**	0.08**	0.08**
与道路距离 Distance from road	0.00	0.02	0.01	0.01	0.02	0.03**
工业总产值 Industrial output	0.10**	0.38**	0.30**	0.35**	0.23**	0.13**

注：**表示 $P < 0.01$ ，*表示 $P < 0.05$ 。Note: ** indicates $P < 0.01$, * indicates $P < 0.05$.

2.5 土壤重金属来源

主成分分析提取四个主成分的累积方差占总方差的 77.63%，基本上能够解释原始变量，其中第一主成分的方差贡献率为 22.58%，第二、三和四主成分的方差贡献率分别为 20.49%、17.45%和 17.10%。同一个主成分下具有较高因子载荷的重金属具有相同的来源。

As 和 Cr 在第一主成分下具有较高的因子载荷，其分别为 0.75 和 0.85。因子探测结果显示研究区内的农业活动对土壤中 As 和 Cr 的空间分异具有较大的影响，结合该地统计年鉴^[29]发现，研究区在 21 世纪初具有较高的农药与化肥使用背景，因此认为研究区土壤中 As 和 Cr 主要来源于农业活动中使用的化肥与农药；此外，因子探测结果还显示工业活动也会影响土壤中 As 和 Cr 的空间分异。Matschullat^[30]指出冶炼铜、燃煤及使用含砷农药是砷进入环境中的主要途径，Cai 等^[31]研究表明无机砷化合物如砷酸钙、砷酸钠等物质常用于杀虫剂中以提高杀虫效率；鲍丽然等^[32]认为工业生产中煤炭燃烧释放的 Cr 会以干湿沉降的方式进入土壤，刘志红等^[33]在研究进口化肥中重金属元素的含量时发现复混肥中 Cr 含量超标，Luo 等^[34]发现 Cr 通过化肥使用途径进入农田的比例为 20.1%，这均说明农业活动与工业活动会导致土壤中 As 与 Cr 的累积。因此，第一主成分代表 As 和 Cr 的来源为农业源和工业源。

第二主成分与 Hg 和 Cd 具有较高的相关性，因子载荷分别为 0.86 和 -0.68。因子探测结果显示研究区农业活动对土壤中 Hg 和 Cd 的空间分异影响较大，结合前文已提及研究区具有高投入的农药与化肥使用背景，这说明农业活动会造成土壤中 Hg 和 Cd 的累积。由此可见，在研究区内降低农药和化肥使用量的同时，结合农业工程措施开展精准施肥与施药技术显得尤为必要。对比采样时期该区内各镇工业总产值^[29]与土壤 Hg 和 Cd 的空间分布特征（图 3）发现，工业总产值高的区域其土壤中 Hg 和 Cd 的含量亦较高，由此可见土壤中 Hg 和 Cd 的来源还与研究区内的工业活动相关。这与 Luo 等^[34]在研究中发现大气沉降和化学肥料的

使用是 Hg 进入土壤的主要方式, Streets 等^[35]在对汞排放的研究中指出煤燃烧和有色金属冶炼是主要的汞排放途径, Micó 等^[36]指出农业生产中磷肥的使用会导致 Cd 在土壤中累积等研究结论相似。因此在工业生产中应当鼓励发展清洁生产技术、提倡工业废物集中处理等措施以降低企业生产对土壤的影响。此外, 研究区土壤中 Hg、Cd 在表层 (图 3) 和亚表层 (图 5) 中的分布均表现出一致性, 说明二者在土壤中的来源还与母质有很大关系。因此, 第二主成分除了受到农业活动和工业活动的影响外, 还受到土壤母质的影响。

Cu 在第三主成分下载荷最高, 为 0.95。从因子探测结果来看, 农业活动和工业活动对土壤中 Cu 空间分异的影响较大。该地统计年鉴^[29]数据显示, 研究区东部乡镇农业投入较大, 而该地土壤中 Cu 含量亦较其他地区高, 因此认为土壤中 Cu 的来源与研究区农业活动有关。Luo 等^[34]对中国农田土壤重金属输入/输出平衡研究中发现农业投入 (禽畜粪便^[37]、杀虫剂和化肥) 和大气沉降中 Cu 的含量分别占农田土壤 Cu 总输入量的 79.28% 和 18.30%, 这说明土壤中 Cu 含量除受农业活动影响外, 工业活动也存在一定的影响, 这与本文因子探测结果一致。此外在采样过程中还发现研究区中部集中分布着一些养殖场, 养殖活动与动物粪肥的使用也是研究区中部土壤 Cu 累积的原因之一。这均表明第三主成分能够反映农业和工业活动对土壤 Cu 含量的影响。

第四主成分与土壤 Pb 相关性较高, 因子载荷为 0.98。Ni 和 Ma^[38]在研究中发现大气沉降是 Pb 进入土壤中的主要方式, 华明等^[39]和 Chen 等^[40]在研究中指出交通活动造成了道路两旁土壤中 Pb 的累积。这说明工业排放与汽车尾气是土壤中 Pb 的主要来源。本研究通过因子探测器发现工业活动、社会活动以及交通活动对土壤中 Pb 的空间变异解释力较大, 这与文献研究结论类似。Ni 和 Ma^[38]指出近年来农业生产中使用的氮肥中 Pb 的含量有增加的趋势, 说明化肥的使用也会导致土壤中 Pb 的累积, 本研究的因子探测结果也显示该区农业活动影响土壤 Pb 的空间分异。因此, 第四主成分主要受到了研究区农业活动、工业活动、交通活动以及社会活动的共同影响。

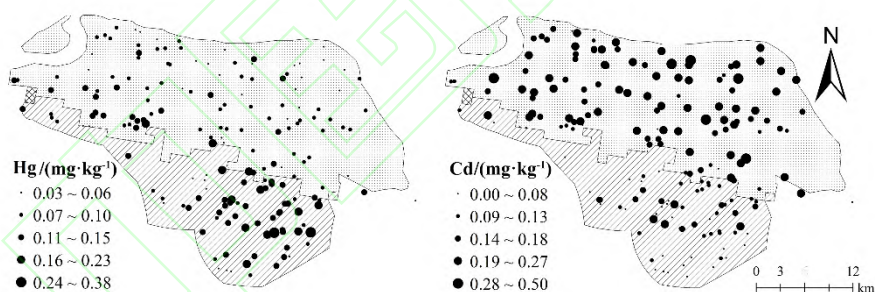


图 5 土壤亚表层中 Hg 与 Cd 含量的空间分布

Fig. 5 Spatial distribution of Hg and Cd concentrations in the subsurface soil

3 结论

研究区农田表层土壤重金属呈现出不同程度的累积趋势, 表层土壤中 Hg、Cd、Cu、As、Pb 和 Cr 各有 79.79%、71.28%、64.89%、57.98%、57.45% 和 45.21% 的点位高于底层土壤, 其累积程度按由重到轻的顺序为: Hg> Cd> Cu> As> Pb> Cr。表层土壤中 Cu、Cd 和 Hg 超过《土壤环境质量-农用地土壤污染风险管控标准》(GB 15618-2018) 中风险筛选值的比例依次为 2.13%、1.06% 和 0.53%, As、Cr 和 Pb 无点位超过筛选值。地累积指数污染评价结果表明 Cd 与 Hg 污染较其他四种重金属严重, Cd 和 Hg 各有 12.83% 和 21.28% 的样点处于污染状态, 而 As、Cu、Pb 和 Cr 各有 12.23%、11.17%、9.63% 和 4.79% 的样点处于污染状态。因子探测分析显示, 农药和化肥的使用量以及工业总产值对六种土壤重金属的空间分异有更好的解释力, 其他因子能解释某些特定重金属的空间分异。土壤来源分析表明, 土壤中

As 和 Cr 的来源为农业源和工业源; Cd 和 Hg 的来源除了受农业活动和工业活动影响外, 土壤母质对二者含量的影响也较明显; 研究区内畜禽养殖、农业和工业生产活动等导致土壤中 Cu 的累积; 土壤中 Pb 的来源与变异则受到研究区内农业活动、工业活动、交通活动和社会活动的共同影响。总之, 研究区土壤重金属总体上存在累积趋势, 但程度不同, 人类活动(农业活动和工业活动)是导致研究区内土壤重金属累积的主要因素, 研究区内的交通和社会因素等对土壤中特定重金属累积的影响则需更进一步地探讨与研究。

参考文献 (References)

- [1] Zeng X B, Xu J M, Huang Q Y, et al. Some deliberations on the issues of heavy metals in farmlands of China[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2013, 50(1): 186-194.[曾希柏, 徐建明, 黄巧云, 等. 中国农田重金属问题的若干思考[J]. *土壤学报*, 2013, 50(1): 186-194.]
- [2] Hough R L, Breward N, Young S D, et al. Assessing potential risk of heavy metal exposure from consumption of home-produced vegetables by urban populations[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2004, 112(2): 215-221.
- [3] Ma C L, Zhou J M, Wang H Y, et al. Methods for assessment of heavy metal pollution in cropland soils - A case study of Changshu[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2006, 22(1): 48-53. [马成玲, 周健民, 王火焰, 等. 农田土壤重金属污染评价方法研究——以长江三角洲典型县级市常熟市为例[J]. *生态与农村环境学报*, 2006, 22(1): 48-53.]
- [4] Zhao H A, Zang L, Zhang G J, et al. Soil heavy metal pollution characteristics and source apportionment at county scale - Take Zhaoxian County as an example[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2018, 49(3): 710-719.[赵红安, 臧亮, 张贵军, 等. 县域尺度土壤重金属污染特征及源解析——以赵县为例[J]. *土壤通报*, 2018, 49(3): 710-719.]
- [5] Hu W Y, Wang H F, Dong L R, et al. Source identification of heavy metals in peri-urban agricultural soils of southeast China: An integrated approach[J]. *Environmental Pollution*, 2018, 237: 650-661.
- [6] Dong B, Zhang R Z, Gan Y D, et al. Multiple methods for the identification of heavy metal sources in cropland soils from a resource-based region[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 651: 3127-3138.
- [7] Li F, Liu S Y, Li Y, et al. Spatiotemporal variability and source apportionment of soil heavy metals in a industrially developed city[J]. *Environmental Science*, 2019, 40(2): 934-944.[李锋, 刘思源, 李艳, 等. 工业发达城市土壤重金属时空变异与源解析[J]. *环境科学*, 2019, 40(2): 934-944.]
- [8] Hu W Y, Huang B, He Y, et al. Assessment of potential health risk of heavy metals in soils from a rapidly developing region of China[J]. *Human and Ecological Risk Assessment*, 2016, 22(1): 211-225.
- [9] Li N, Kang Y, Pan W J, et al. Concentration and transportation of heavy metals in vegetables and risk assessment of human exposure to bioaccessible heavy metals in soil near a waste-incinerator site, South China[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 521: 144-151.
- [10] Chen W P, Yang Y, Xie T, et al. Challenges and countermeasures for heavy metal pollution control in farmlands of China[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2018, 55(2): 261-272.[陈卫平, 杨阳, 谢天, 等. 中国农田土壤重金属污染防治挑战与对策[J]. *土壤学报*, 2018, 55(2): 261-272.]
- [11] Li Y Z, Dong J, Liu S Y, et al. Prospect and research of soil pollution control based on risk management[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2017, 26(6): 1075-1084.[李云祯, 董荐, 刘姝媛, 等. 基于风险管控思路的土壤污染防治研究与展望[J]. *生态环境学报*, 2017, 26(6): 1075-1084.]
- [12] Hang X S, Wang H Y, Zhou J M. Prevention and regulation countermeasures of soil heavy metal contamination in Yangtze River Delta[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2013, 44(1): 245-251.[杭小帅, 王火焰, 周健民. 长江三角洲地区土壤重金属污染的防治与调控[J]. *土壤通报*, 2013, 44(1): 245-251.]
- [13] Huang B, Wang M, Yan L X, et al. Accumulation, transfer, and environmental risk of soil mercury in a rapidly industrializing region of the Yangtze River Delta, China[J]. *Journal of Soils Sediments*, 2011, 11: 607-618.
- [14] Shao X X. Impacts of human activities on soil heavy metal distribution and their ecological response in a rapid developing region of China[D]. Nanjing: Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, 2006.[邵学新. 经济高速发展地区人为作用对土壤

- 重金属污染的影响及其生态效应研究[D]. 南京: 中国科学院南京土壤研究所, 2006.]
- [15] Liu J, Huang B, Sun W X, et al. Spatial-temporal distribution and prediction of heavy metals under different soil use patterns in an economically developed area[J]. *Soils*, 2011, 43(2): 210-215.[刘静, 黄标, 孙维侠, 等. 经济发达区不同土壤利用方式下重金属的时空分布及预测[J]. *土壤*, 2011, 43(2): 210-215.]
- [16] Zhao Y C, Huang B, Sun W X, et al. Uncertainty assessment of the spatial patterns of copper contents in topsoil in Zhangjiagang City, China[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2007, 44(6): 974-981.[赵永存, 黄标, 孙维侠, 等. 张家港土壤表层铜含量空间预测的不确定性评价研究[J]. *土壤学报*, 2007, 44(6): 974-981.]
- [17] Office of Soil Survey in Shazhou County, Agriculture Bureau of Suzhou City, Office of Survey in Jiangsu Province. The soils of Shazhou County[M]. 1984. [沙洲县土壤普查办公室, 苏州农业局. 江苏省沙洲县土壤志[M]. 江苏张家港市: 江苏省沙洲县土壤普查办公室, 1984.]
- [18] Lu R K. Analytical methods for soil and agro-chemistry[M]. Beijing: China Agricultural Science and Technology Press, 2000. [鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000.]
- [19] Burt R, Wilson M A, Mays M D, et al. Major and trace elements of selected pedons in the USA[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2003, 32(6): 2109-2121.
- [20] China National Environmental Monitoring Center. Ed. Recent analytical methods of soil elements[M]. Beijing: China Environment Science Press, 1992. [中国环境监测总站. 土壤元素的近代分析方法[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1992.]
- [21] Muller G. Index of geoaccumulation in sediments of the Rhine River[J]. *Geochemical Journal*, 1969, 2(3): 108-118.
- [22] Guo X X, Liu C Q, Zhu Z Z, et al. Evaluation methods for soil heavy metals contamination: A review[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2011, 30(5): 889-896.[郭笑笑, 刘丛强, 朱兆洲, 等. 土壤重金属污染评价方法[J]. *生态学杂志*, 2011, 30(5): 889-896.]
- [23] Wang J F, Xu C D. Geodetector: Principle and prospective[J]. *Acta Geographica Sinica*, 2017, 72(1): 116-134.[王劲峰, 徐成东. 地理探测器: 原理与展望[J]. *地理学报*, 2017, 72(1): 116-134.]
- [24] Wang J F, Li X H, Christakos G, et al. Geographical detectors-based health risk assessment and its application in the neural tube defects study of the Heshun region, China[J]. *International Journal of Geographical Information Science*, 2010, 24(1): 107-127.
- [25] Wang H F, Wu Q M, Hu W Y, et al. Using multi-medium factors analysis to assess heavy metal health risks along the Yangtze River in Nanjing, Southeast China[J]. *Environmental Pollution*, 2018, 243: 1047-1056.
- [26] Xiao W, Sui T, Wang X, et al. Assessment and geographical detection of heavy metal pollution in typical farmland soil in Chaohu lake basin[J]. *Transactions of the Chinese Society for Agricultural Machinery*, 2018, 49(7): 144-152. [肖武, 隋涛, 王鑫, 等. 巢湖流域典型农田土壤重金属污染评价与地理探测分析[J]. *农业机械学报*, 2018, 49(7): 144-152.]
- [27] Li Y, Han P, Ren D, et al. Influence factor analysis of farmland soil heavy metal based on the geographical detector[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2017, 50(21): 4138-4148.[李雨, 韩平, 任东, 等. 基于地理探测器的农田土壤重金属影响因子分析[J]. *中国农业科学*, 2017, 50(21): 4138-4148.]
- [28] Gu Z Q, Shao X X, Qian W F, et al. Quantitative evaluation of soil productivity of farmland in Zhangjiagang City, Jiangsu Province and its significance[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2007, 44(2): 354-359.[顾志权, 邵学新, 钱卫飞, 等. 江苏省张家港市耕地地力量化评价及其意义[J]. *土壤学报*, 2007, 44(2): 354-359.]
- [29] Suzhou Statistics Bureau. Suzhou statistical yearbook (2002-2006) [M]. Beijing: China Statistic Press, 2002-2006. [苏州统计局. 苏州统计年鉴(2002-2006) [M]. 北京: 中国统计出版社, 2002-2006.]
- [30] Matschullat J. Arsenic in the geosphere- A review[J]. *Science of the Total Environment*, 2000, 249(1/2): 297-312.
- [31] Cai L M, Xu Z C, Bao P, et al. Multivariate and geostatistical analyses of the spatial distribution and source of arsenic and heavy metals in the agricultural soils in Shunde, Southeast China[J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2015, 148: 189-195.
- [32] Bao L R, Yang L C, Dong J X, et al. Atmospheric deposition characteristic and its influence on the earth surface in western Chongqing agricultural area[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2016, 38(1): 41-46.[鲍丽然, 杨乐超, 董金秀, 等. 重庆西部农业区大气沉降特征及其对地表的影响[J]. *环境污染与防治*, 2016, 38(1): 41-46.]
- [33] Liu Z H, Liu L, Li Y. Investigation on the toxic element As, Cd, Pb, and Cr in imported fertilizers[J]. *Phosphate & Compound*

- Fertilizer, 2007, 22(2): 77-78.] [刘志红, 刘丽, 李英. 进口化肥中有害元素砷、镉、铅、铬的普查分析[J]. 磷肥与复肥, 2007, 22(2): 77-78.]
- [34] Luo L, Ma Y B, Zhang S Z, et al. An inventory of trace element inputs to agricultural soils in China[J]. Journal of Environmental Management, 2009, 90(8): 2524-2530.
- [35] Streets D G, Hao J M, Wu Y, et al. Anthropogenic mercury emissions in China[J]. Atmospheric Environment, 2005, 39(40): 7789-7806.
- [36] Micó C, Recatalá L, Peris M, et al. Assessing heavy metal sources in agricultural soils of an European Mediterranean area by multivariate analysis[J]. Chemosphere, 2006, 65(5): 863-872.
- [37] Zhang S Q, Zhang F D, Liu X M, et al. Determination and analysis on main harmful composition in excrement of scale livestock and poultry feedlots[J]. Plant Nutrition and Fertilizer Science, 2005, 11(6): 822-829.[张树清, 张夫道, 刘秀梅, 等. 规模化养殖畜禽粪主要有毒成分测定分析研究[J]. 植物营养与肥料学报, 2005, 11(6): 822-829.]
- [38] Ni R X, Ma Y B. Current inventory and changes of the input/output balance of trace elements in farmland across China[J]. PLoS One, Plos One, 2018, 13(6): e0199460. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0199460>.
- [39] Hua M, Zhu B W, Liao Q L, et al. Preliminary research on pollution level of heavy metals in farmland soils along both sides of main roads in Jiangsu[J]. Journal of Geology, 2008, 32(3): 165-171.[华明, 朱佰万, 廖启林, 等. 江苏主要公路两侧农田土壤重金属污染现状初步研究[J]. 地质学刊, 2008, 32(3): 165-171.]
- [40] Chen T, Chang Q R, Liu J, et al. Identification of soil heavy metal sources and improvement in spatial mapping based on soil spectral information: A case study in northwest China[J]. Science of the Total Environment, 2016, 565: 155-164.

(责任编辑: 檀满枝)