

平原河网地区农田土壤重金属污染特征及来源解析

张旭峰, 冯韶华, 尚婷婷, 刘劲松, 孟祥周

引用本文:

张旭峰, 冯韶华, 尚婷婷, 刘劲松, 孟祥周. 平原河网地区农田土壤重金属污染特征及来源解析[J]. 农业环境科学学报, 2024, 43(4): 835–844.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2023-0370>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于APCS-MLR受体模型的农田土壤重金属源解析

霍明珠, 高秉博, 乔冬云, SainbuyanBayarsaikhan, 安毅, 霍莉莉

农业环境科学学报. 2021, 40(5): 978–986 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1277>

细河流域农田土壤重金属污染评价及来源解析

宁翠萍, 李国琛, 王颜红, 李波, 田莉, 王世成

农业环境科学学报. 2017, 36(3): 487–495 <https://doi.org/10.11654/jaes.2016-1222>

贵州省某县辣椒种植区土壤重金属空间分布特征及来源解析

曾庆庆, 付天岭, 邹洪琴, 滕浪, 吴康, 谢挺, 何腾兵

农业环境科学学报. 2021, 40(1): 102–113 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0665>

湘潭县农田土壤重金属污染及生态风险评价

刘瑞雪, 乔冬云, 王萍, 安毅, 霍莉莉

农业环境科学学报. 2019, 38(7): 1523–1530 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-1491>

三峡库区库尾典型农用地土壤重金属污染特征及潜在风险

王金霞, 罗乐, 陈玉成, 何清明, 詹玲玲

农业环境科学学报. 2018, 37(12): 2711–2717 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-0844>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

张旭峰, 冯韶华, 尚婷婷, 等. 平原河网地区农田土壤重金属污染特征及来源解析[J]. 农业环境科学学报, 2024, 43(4): 835–844.
ZHANG X F, FENG S H, SHANG T T, et al. Pollution characteristic and source apportionment of heavy metals in farmland soil from a plain river network region[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2024, 43(4): 835–844.



开放科学 OSID

平原河网地区农田土壤重金属污染特征及来源解析

张旭峰^{1,2}, 冯韶华³, 尚婷婷⁴, 刘劲松⁵, 孟祥周^{3*}

(1. 嘉兴职业技术学院现代农业学院, 浙江 嘉兴 314036; 2. 嘉兴市农产品质量与安全检测重点实验室, 浙江 嘉兴 314036; 3. 同济大学环境科学与工程学院, 上海 200092; 4. 嘉兴同济环境研究院, 浙江 嘉兴 314051; 5. 嘉兴南湖学院新材料工程学院, 浙江 嘉兴 314001)

摘要:为实现对平原河网地区农田土壤重金属的精准管控,保障农产品的质量安全,本研究以典型平原河网地区——嘉兴市为例,通过采集表层(0–20 cm)土壤样品($n=40$),分析土壤中重金属的含量水平与分布特征,利用地累积指数法和潜在生态风险指数法,评价重金属的污染风险,并结合相关性分析、绝对主成分得分–多元线性回归(APCS–MLR)和正定矩阵因子分解模型(PMF),定量解析重金属的污染来源。结果显示:土壤中铜(Cu)、镍(Ni)、铬(Cr)、锌(Zn)、铅(Pb)、镉(Cd)、砷(As)和汞(Hg)的含量分别为 (28.8 ± 3.73) 、 (36.5 ± 5.98) 、 (60.7 ± 5.38) 、 (70.5 ± 8.04) 、 (33.2 ± 6.25) 、 (0.08 ± 0.04) 、 (7.30 ± 1.52) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 (0.31 ± 0.15) $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。其中,部分点位Hg含量超过农用地土壤风险筛选值(超标率为12.5%)。研究区域主要污染元素为Hg,其地累积指数(I_{geo})为 (0.20 ± 0.77) ,呈轻微至轻度污染(67.5%);综合潜在生态风险(R/I)为 (122 ± 39.8) ,属于中度风险,Hg是主要风险因子(64.4%)。源解析结果表明,农田土壤重金属的来源为工业源(32.0%)、自然源(28.2%)、农业源(25.8%)和交通源(14.0%),其中Hg主要来源于农业源(62.9%)和工业源(37.1%)。未来可加强对农业投入品及工业三废的管控,降低农田土壤中Hg的输入,保障农田土壤的安全利用及农产品的质量安全。

关键词:农田;重金属;生态风险;来源解析;正定矩阵因子分解模型(PMF)

中图分类号:X53 文献标志码:A 文章编号:1672–2043(2024)04–0835–10 doi:10.11654/jaes.2023–0370

Pollution characteristic and source apportionment of heavy metals in farmland soil from a plain river network region

ZHANG Xufeng^{1,2}, FENG Shaohua³, SHANG Tingting⁴, LIU Jinsong⁵, MENG Xiangzhou^{3*}

(1. Modern Agriculture Branch, Jiaxing Vocational and Technical College, Jiaxing 314036, China; 2. Jiaxing Key Laboratory of Agricultural Product Quality and Safety Testing, Jiaxing 314036, China; 3. College of Environmental Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China; 4. Jiaxing–Tongji Environmental Research Institute, Jiaxing 314051, China; 5. College of Advanced Materials Engineering, Jiaxing Nanhu University, Jiaxing 314001, China)

Abstract: The purpose of this study is to achieve accurate control of heavy metals in farmland soil from the plain river network area, so as to ensure the quality and safety of agricultural products. In this study, we selected Jiaxing City, a typical plain river network area, as a study area. The concentration and distribution of heavy metals in soil were examined by collecting surface soil samples (0–20 cm, $n=40$); then, two methods [the geo-accumulation index (I_{geo}) and the potential ecological risk index] were used to evaluate the risks posed by heavy

收稿日期:2023–05–12 录用日期:2023–06–21

作者简介:张旭峰(1987—),男,浙江嘉兴人,博士,副教授,从事农产品产地环境污染识别与溯源研究。E-mail:zjzhangxufeng@163.com

*通信作者:孟祥周 E-mail:xzmeng@tongji.edu.cn

基金项目:浙江省教育厅科研项目(Y202248575);浙江省自然科学基金项目(LQ23D030002);嘉兴市公益性研究计划项目(2022AY10031, 2021AY10044)

Project supported: Scientific Research Fund of Zhejiang Provincial Education Department (Y202248575); Natural Science Foundation of Zhejiang Province, China (LQ23D030002); Jiaxing Public Welfare Research Project of Jiaxing Science and Technology Bureau (2022AY10031, 2021AY10044)

metals. Moreover, absolute principal component score-multiple linear regression and positive matrix factorization were combined to quantitatively analyze the sources of heavy metals. The content of copper(Cu), nickel(Ni), chromium(Cr), zinc(Zn), lead(Pb), cadmium(Cd), arsenic(As), and mercury(Hg) in soil were (28.8 ± 3.73) , (36.5 ± 5.98) , (60.7 ± 5.38) , (70.5 ± 8.04) , (33.2 ± 6.25) , (0.08 ± 0.04) , (7.30 ± 1.52) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, and (0.31 ± 0.15) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, respectively. Among these, the Hg content exceeded the screening value of soil pollution risk for agricultural land (the over-standard rate was 12.5%). The dominant element was $\text{Hg}[I_{\text{geo}} = (0.20 \pm 0.77)]$, showing slight to mild pollution (67.5%). Moreover, the comprehensive potential ecological risk $[RI = (122 \pm 39.8)]$ was found to be moderate, and Hg was established to be the main risk factor (64.4%). The sources of heavy metals in farmland soil were industrial sources with a contribution of 32.0%, followed by natural (28.2%), agricultural (25.8%), and transportation (14.0%) sources. Among these, Hg was mainly derived from agricultural (62.9%) and industrial (37.1%) sources. In the future, the control of agricultural inputs and industrial waste can be strengthened to reduce the input of Hg into farmland soil, ensuring the safe utilization of farmland soil and the quality and safety of agricultural products.

Keywords: farmland; heavy metal; ecological risk; source apportionment; positive matrix factorization (PMF)

土壤是构成生态系统的基本环境要素,是人类赖以生存和生活的物质基础,也是经济社会发展不可或缺的重要资源。土壤环境状况不仅直接影响到经济发展和生态安全,而且直接关系到农产品安全和人类自身健康。全国土壤污染状况专项调查结果显示,我国耕地土壤超标率为19.4%,其中镉(Cd)、汞(Hg)、砷(As)、铜(Cu)、铅(Pb)、铬(Cr)、锌(Zn)、镍(Ni)均有不同程度超标,且以Cd污染最为严重,点位超标率为7.0%^[1]。降低农田土壤污染风险是实现农产品安全的基本保障,因此亟需对农田土壤中高含量的重金属污染物进行有效管控和治理。其中,开展农田土壤重金属风险评估与来源解析是土壤污染风险精准管控的重要基础,也是实现土壤环境安全和农产品安全的重要保障^[2]。

土壤重金属风险评估方法主要包括单因子污染指数法、地累积指数法、富集因子法、内梅罗综合污染指数法、污染负荷指数法和潜在生态风险指数法等^[3-4]。地累积指数法由德国科学家Muller于1969年提出,该方法通过比较地球化学背景值和环境中的重金属含量来估算污染程度,在土壤重金属污染程度量化研究中得到广泛应用^[5]。潜在生态风险指数法由瑞典科学家Hakanson于1980年提出,该方法是将重金属的生态效应、环境效应与毒理效应联系起来,评价环境中重金属含量所造成的生态风险程度,被广泛应用于土壤中重金属的生态风险评估^[6]。土壤重金属源解析技术主要包括多元统计分析^[7]、地统计分析^[8]、受体模型法^[9]和稳定同位素比值法^[10]。其中,受体模型法已成为土壤重金属源解析中应用最广泛的技术之一^[11-13],包括正定矩阵因子分解模型(PMF)^[14]、主成分分析-多元线性回归(PCA-MLR)^[15]、绝对因子

得分-多元线性回归(APCS-MLR)^[16]和UNMIX模型^[17]等。PMF是基于最小二乘法的一种改进的因式分解方法,在数据预处理方面具有较大优势,是受体模型法中最常用的技术^[18-20]。PMF考虑不确定度数据,同时在迭代运算时会对异常值重新加权,并采用非负约束避免负值的出现,因此结果具有较强的可解释性^[21]。然而,对异常值的重新加权会使PMF高估或者低估污染源的贡献。PCA-MLR在PCA基础上,通过提取特征值大于1的主因子得分,以因子得分为自变量,重金属含量为因变量进行多元线性回归,得出因子贡献度^[22-23]。然而,PCA-MLR经常会给出负值及贡献超过100%的结果。APCS-MLR改进了PCA-MLR的缺点,降低了负值出现的概率,不仅可以同时定量每个源的平均贡献度和在每个采样点的贡献度,而且可以定量每个变量在源上的载荷^[24],因此得到了较广泛的应用^[25]。由于源解析技术存在各自的局限性,在实际研究中通常将两种或多种技术联合使用,共同探讨土壤重金属的污染来源^[26]。

目前,农田土壤重金属来源解析研究开展较多,涵盖了工业区、矿区、农业区和城市地区^[27-28]。然而,尚未发现关于平原河网地区农田土壤重金属来源解析研究的报道。平原河网地区独特的地理环境条件和农业生产活动导致农田土壤污染来源组成较复杂,难以实现精准溯源,不利于该地区受污染农田的风险管控与安全利用。本研究以典型平原河网地区——嘉兴市为例,综合利用相关性分析、APCS-MLR和PMF,明确农田土壤重金属的污染特征,阐明重金属的主要来源,揭示污染源的相对贡献,为平原河网地区农田土壤重金属的精准管控提供理论依据,为农产品质量安全保障提供技术支撑。

1 材料与方法

1.1 样品采集与分析

1.1.1 样品采集

本研究以嘉兴市某一受污染的农田为研究区域(30.758°~30.768°N, 120.820°~120.828°E), 区域面积54.9 hm², 种植方式为水稻和小麦轮作。

本研究于2022年4月采集受污染农田土壤样品。研究区域共设置40个采样区, 每个采样区按照梅花布点法采集表层(0~20 cm)土壤样品1个, 共采集40个土壤样品(图1)。

1.1.2 样品分析

本研究对土壤样品中8种重金属的含量进行了检测, 其中, Cu、Ni、Zn、Cr含量采用《土壤和沉积物铜、锌、铅、镍、铬的测定 火焰原子吸收分光光度法》(HJ 491—2019)中的方法测定, Pb、Cd含量采用《土壤质量 铅、镉的测定 石墨炉原子吸收分光光度法》(GB/T 17141—1997)中的方法测定, As、Hg含量采用《土壤和沉积物 汞、砷、硒、铋、锑的测定 微波消解/原子荧光法》(HJ 680—2013)中的方法测定。

1.2 污染风险评估

土壤环境质量依据《土壤环境质量 农用地土壤

污染风险管控标准(试行)》(GB 15618—2018)进行评估。此外, 本研究利用地累积指数法和潜在生态风险指数法对土壤重金属污染风险进行综合评价。

地累积指数法主要考虑人为活动和成岩作用等自然因素, 评价重金属的污染状况^[29]。计算公式为:

$$I_{geo} = \log_2 \frac{C_i}{1.5G} \quad (1)$$

式中: I_{geo} 为地累积指数; C_i 为重金属 i 的实测值, mg·kg⁻¹; G 为重金属的土壤背景值, mg·kg⁻¹; 1.5 为修正系数。地累积指数和分级标准见表1。

表1 地累积指数和分级标准

Table 1 Geo-accumulation index and classification standard		
等级 Level	I_{geo}	污染程度 Degree of pollution
0	$I_{geo} \leq 0$	无污染
1	$0 < I_{geo} \leq 1$	轻微污染
2	$1 < I_{geo} \leq 2$	轻度污染
3	$2 < I_{geo} \leq 3$	中度污染
4	$3 < I_{geo} \leq 4$	重度污染
5	$4 < I_{geo} \leq 5$	严重污染
6	$I_{geo} > 5$	极严重

潜在生态风险指数法是从沉积学角度提出的对土壤中重金属污染进行评价的方法^[30]。该方法将生



图1 农田土壤采样布点图

Figure 1 Distribution of sampling points for farmland soil

态和环境影响与毒理学相结合,能更准确地评估重金属污染的潜在风险。计算公式如下:

$$E_i = T_r^i \frac{C_n}{B_n} \quad (2)$$

$$RI = \sum_{i=1}^n E_i \quad (3)$$

式中: E_i 为目标元素的单一潜在生态风险指数; RI 为综合潜在生态风险指数; C_n 为样品重金属的实测含量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; B_n 为评价元素的背景值, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; T_r^i 为单个污染物的毒性系数。

潜在生态风险指数的分级如表2所示。

表2 潜在生态风险指数分级表

Table 2 Classification of potential ecological risk index

E_i	RI	潜在生态风险等级 Degree of potential ecological risk
$E_i < 40$	$RI < 90$	低风险
$40 \leq E_i < 80$	$90 \leq RI < 180$	中度风险
$80 \leq E_i < 160$	$180 \leq RI < 360$	重度风险
$160 \leq E_i < 320$	$360 \leq RI < 720$	强风险
≥ 320	≥ 720	极强风险

1.3 源解析方法

1.3.1 APCS-MLR 模型

首先对原始数据进行标准化处理:

$$Z_{ij} = \frac{C_{ij} - \bar{C}_i}{\sigma_i} \quad (4)$$

式中: Z_{ij} 为标准化后的含量值,无量纲; C_{ij} 为重金属元素含量实测值, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; $\bar{C}_i$ 和 σ_i 分别为重金属元素 i 的平均含量和标准偏差, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

接着,引入0含量的人为样本,计算得到该0含量样本的因子分数:

$$(Z_0)_i = \frac{0 - \bar{C}_i}{\sigma_i} = -\frac{\bar{C}_i}{\sigma_i} \quad (5)$$

然后,计算绝对因子得分 APCS:

$$APCS = Z_{ij} - (Z_0)_i \quad (6)$$

最后,计算绝对主成分的贡献率:

$$C_i = b_{0i} + \sum_{p=1}^n (APCS_p \times b_{pi}) \quad (7)$$

式中: C_i 为重金属元素 i 的实测值, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; b_{0i} 为对重金属元素 i 做多元线性回归所得到的常数项; b_{pi} 为源 p 对重金属元素 i 的回归系数; $APCS_p$ 为调整后的因子 p 的得分。

1.3.2 PMF 模型

PMF 的计算公式如下:

$$X_{ij} = \sum_{k=1}^p G_{ik} F_{kj} + E_{ij} \quad (8)$$

式中: X_{ij} 是第 i 个样品的第 j 个元素的含量; F_{kj} 是源 k 中第 j 个元素的含量,即源成分谱矩阵; G_{ik} 是源 k 对第 i 个样品的贡献,即源的贡献率矩阵; E_{ij} 是残差矩阵。

PMF 基于 Multilinear Engine 2 算法进行迭代计算,不断分解原始矩阵 X ,获得最优的矩阵 G 和 F ,最优化目标是使目标函数 Q 最小化。目标函数 Q 的表达式如下:

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left(\frac{E_{ij}}{U_{ij}} \right)^2 \quad (9)$$

式中: U_{ij} 表示第 i 个样品的第 j 个元素的不确定度。

1.4 质量控制与质量保证

本研究实验过程中采用的质量控制措施包括方法空白、过程空白和设立平行样等。针对重金属检测分析,每一个批次的实验都测定空白样品(每批2个)和质控标准样品(每种做3个平行),同时将不低于总数10%(每10个样品,2个平行双样)的样品进行重复平行实验和分析。本研究标准样品的回收率在71.5%~110%之间,平行样品的相对标准偏差小于10%。测试3次平行空白值,分别计算检测结果的标准偏差,取3倍标准偏差作为检出限(LOD),10倍标准偏差作为定量限(LOQ)。

2 结果与讨论

2.1 农田土壤重金属污染特征

农田土壤重金属含量的检测结果如表3所示。由表3可知,土壤中 Cu、Ni、Cr、Zn、Pb、Cd、As 和 Hg 的含量分别为 (28.8 ± 3.73) 、 (36.5 ± 5.98) 、 (60.7 ± 5.38) 、 (70.5 ± 8.04) 、 (33.2 ± 6.25) 、 (0.08 ± 0.04) 、 (7.30 ± 1.52) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $(0.31 \pm 0.15) \text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,其中,Pb 和 Hg 含量明显高于嘉兴市土壤背景值^[31]。与《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》(GB 15618—2018)中重金属风险筛选值相比,Hg 含量存在部分超标,超标率为12.5%,其余重金属均未超标。变异系数反映重金属受人为干扰程度,变异系数越大,受人为因素干扰越强烈。结果显示,Hg 和 Cd 的变异系数较大,属于强变异,可能受到较为强烈的外部因素影响,导致其累积不均匀。

图2显示了研究区域重金属的空间分布规律。由图2可知,农田土壤8种重金属的空间分布呈现一定的差异性。Cu、Ni、Cr 高值区主要分布在西南部,Zn 高值区主要分布在东部及东北部,Pb 高值区主要

表3 农田土壤重金属的含量水平

Table 3 Contents of heavy metals in farmland soils

重金属 Heavy metal	最小值 Min/(mg·kg ⁻¹)	最大值 Max/(mg·kg ⁻¹)	平均值 Mean/(mg·kg ⁻¹)	标准差 S.D./(mg·kg ⁻¹)	变异系数 Coefficient of variation	超标率(GB 15618—2018) Over standard rate/%
Cu	19.0	38.0	28.8	3.73	0.13	0
Ni	24.0	48.0	36.5	5.98	0.16	0
Cr	49.0	71.0	60.7	5.38	0.09	0
Zn	55.0	85.0	70.5	8.04	0.11	0
Pb	21.8	51.1	33.2	6.25	0.19	0
Cd	0.01	0.16	0.08	0.04	0.46	0
As	4.45	11.3	7.30	1.52	0.21	0
Hg	0.09	0.68	0.31	0.15	0.48	12.5

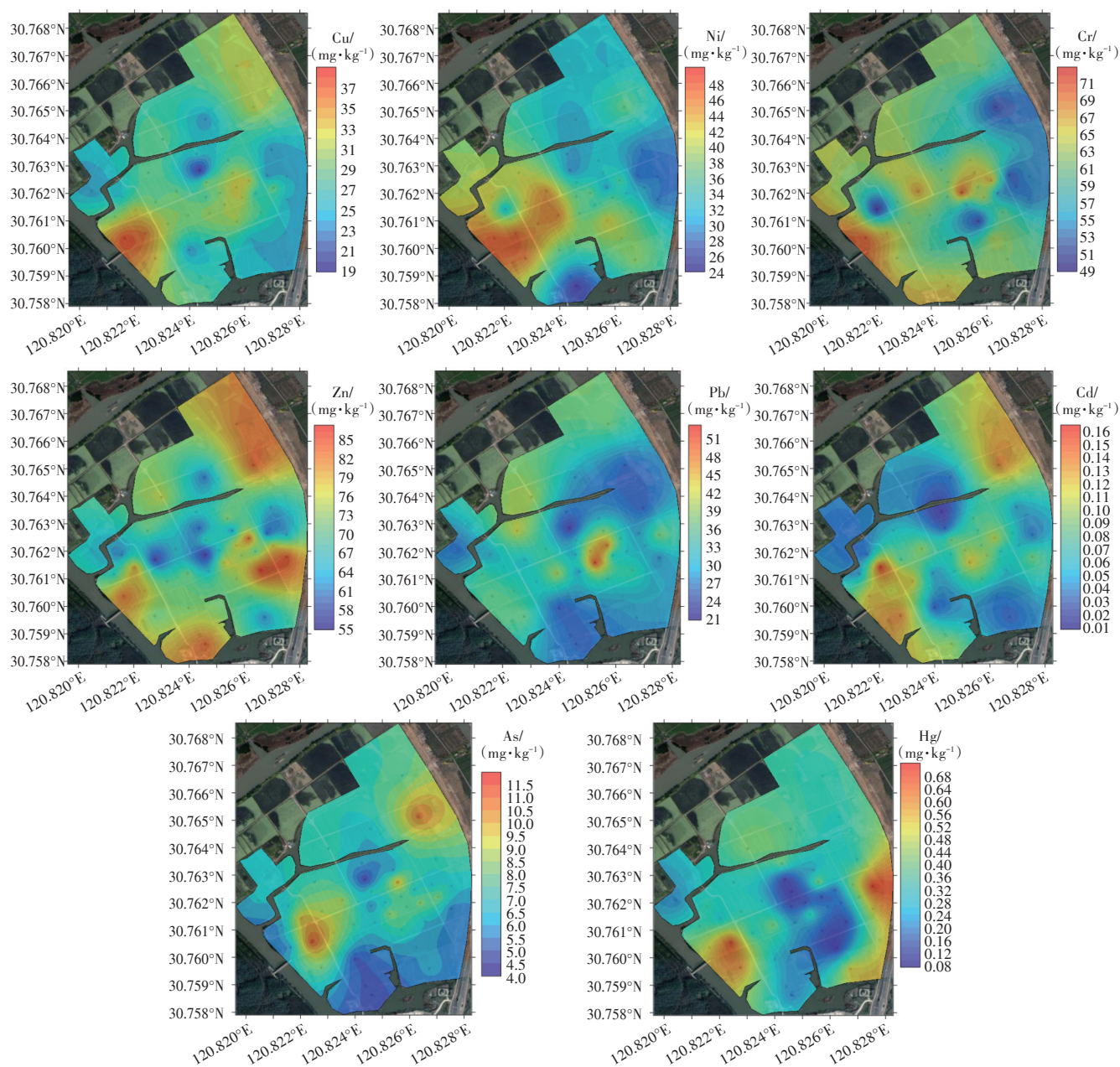


图2 农田土壤重金属的空间分布

Figure 2 Spatial distribution of heavy metals in farmland soils

分布在中部,Cd和As高值区主要分布在西南部和东北部,Hg高值区主要分布在东部和西南部。研究区域西侧紧邻主航道,东侧环绕主干道,交通活动对土壤中重金属的空间分布产生了重要影响。戴文博^[32]研究发现,Pb、Cu和Zn的含量随着与道路距离的增加而降低,表明交通活动是影响其空间分布的主要因素。然而,本研究发现,Pb与Cu、Zn的空间分布存在较大差异,可能存在不同的来源。此外,农业活动是造成土壤中重金属积累的重要因素,对重金属的空间分布也产生了较大影响^[33]。

2.2 农田土壤重金属风险评估

地累积指数显示(图3),8种重金属的 I_{geo} 值依次为Hg(0.20 ± 0.77)>Pb(-0.45 ± 0.26)>Ni(-0.52 ± 0.24)>As(-0.73 ± 0.30)>Cu(-0.78 ± 0.19)>Cr(-1.00 ± 0.13)>Zn(-1.02 ± 0.17)>Cd(-1.69 ± 0.80)。结果表明,农田土壤主要污染元素为Hg,主要污染程度为轻微至轻度污染(占67.5%)。黄安香等^[34]利用地累积指数法评价了贵州油茶主产区土壤重金属污染的风险,发现Cd和Hg的含量超过管制值,污染程度主要为轻度和中度污染,比本研究中Hg污染严重,这主要是因为贵州是矿产区,矿产开采使重金属释放进入农田土壤,造成土壤重金属含量升高。崔云霞等^[35]利用地累积指数法对长三角地区太溇河流域农田土壤重金属风险进行评价,结果显示,Cd、Cu、Zn、Ni和Pb的含量超过了江苏省土壤背景值,且Cd和Pb呈轻微污染,该结果与本研究中污染元素的种类不一致,表面农田土壤重金属受区域环境条件和污染源的影响较大。

单因子潜在生态风险指数显示,8种重金属的 E_r 值依次为Hg(78.3 ± 37.4)>Cd(15.9 ± 7.28)>As(9.21 ± 1.92)>Pb(5.59 ± 1.05)>Ni(5.29 ± 0.87)>Cu(4.41 ± 0.57)>Cr(1.50 ± 0.13)>Zn(1.49 ± 0.17),其中,Hg呈现中度风

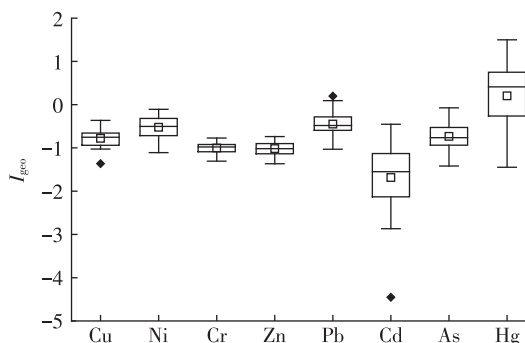


图3 农田土壤重金属的地累积指数

Figure 3 Geo-accumulation index of heavy metals in farmland soils

险,其余重金属为低风险(图4)。结果显示,研究区域重金属的 RI 值为(122 ± 39.8),属于中度风险,Hg(64.4%)和Cd(12.9%)是 RI 的主要贡献因子(图5)。周亚龙等^[36]利用潜在生态风险指数法评价了雄安新区农田土壤重金属的风险,发现Cd的潜在生态危害最大,其次为Hg,总潜在生态风险以轻微和中等等级为主,该结果与本研究的结论有一定的相似性。王茜等^[37]利用潜在生态风险指数法对皖江经济区农田土壤重金属的风险进行了评价,结果显示重金属的 RI 为164.5,且Cd和Hg为主要影响元素,该结果与本研究的结论较相似,表明两个地区农田土壤重金属的污染源及其污染强度可能较为类似。

2.3 农田土壤重金属来源解析

2.3.1 相关性分析

相关性分析可用于探讨重金属之间的同源性,重金属之间相关性显著,表明同源的可能性较大。结果

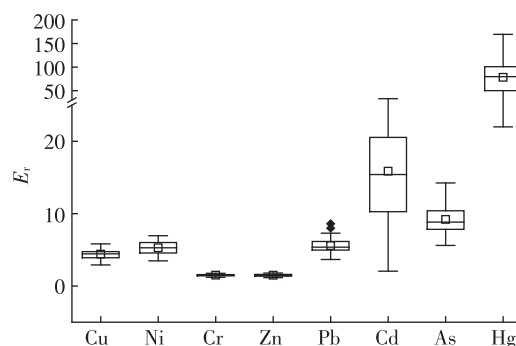


图4 农田土壤重金属的单因子潜在生态风险指数

Figure 4 Single factor potential ecological risk index of heavy metals in farmland soils

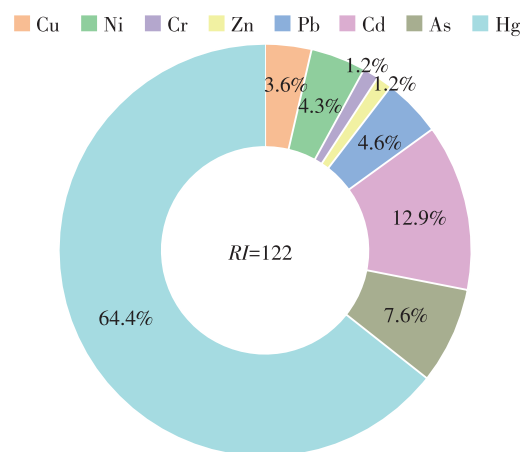


图5 重金属对综合潜在生态风险指数的贡献

Figure 5 Comprehensive potential ecological risk index of heavy metals in farmland soils

显示(图6):Cu与Cd、As、Pb、Zn之间存在极显著的正相关关系($P<0.01$),表明它们可能存在相同的来源;Cr与Ni之间存在显著的正相关关系($P<0.05$),表明Cr与Ni可能来源于同一污染源。此外,Hg与其他重金属均不具有显著相关性,表明Hg可能存在单一来源。

2.3.2 APCS-MLR

APCS-MLR的源解析共得到3个因子(表4)。源1载荷较大的重金属为Zn、Cd、Cu、As和Pb,贡献率分别为108%、93.2%、80.4%、75.3%和71.2%。Cd常用于工业生产,如颜料、塑料和电镀^[38],农田土壤Cd污染与工业三废的排放密切相关^[39]。研究显示,我国部分化工厂的废水存在Cd和Pb污染,超标率最高可达94.0%^[40]。Yang等^[41]的研究表明,工业排放是农用地

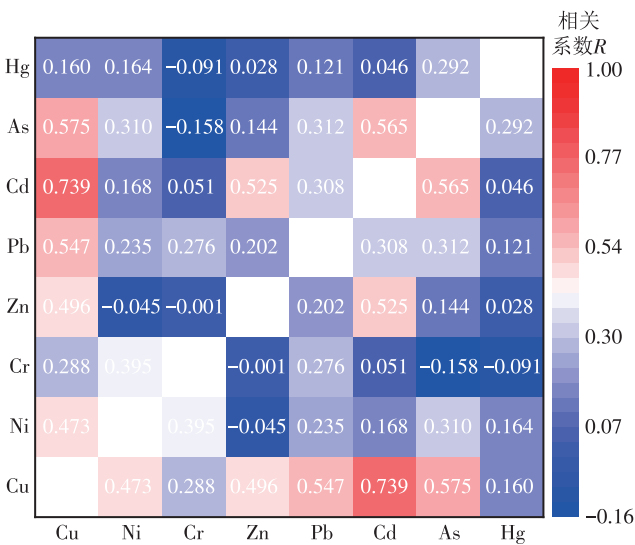


图6 农田土壤重金属的相关性分析

Figure 6 Correlation of heavy metals in farmland soils

表4 APCS-MLR中重金属的因子贡献

Table 4 Factor contribution of heavy metals based on APCS-MLR

项目 Item	源绝对贡献量 Absolute contribution of sources/(mg·kg ⁻¹)			源相对贡献率 Relative contribution rate of sources/%		
	源1	源2	源3	源1	源2	源3
	Source 1	Source 2	Source 3	Source 1	Source 2	Source 3
Cu	15.0	2.64	1.01	80.4	14.1	5.43
Ni	0.47	6.63	2.13	5.07	71.9	23.0
Cr	-0.33	6.55	-1.84	-7.43	149	-42.0
Zn	34.3	-1.23	-1.35	108	-3.86	-4.26
Pb	13.7	4.61	0.93	71.2	24.0	4.85
Cd	0.16	0.01	0.01	93.2	3.32	3.51
As	3.92	0.19	1.10	75.3	3.63	21.1
Hg	-0.05	0.01	0.12	-72.2	7.97	164
总体Total	8.40	2.43	0.26	44.2	33.8	22.0

土壤As积累的重要因素,其贡献率为48.7%。调查发现,研究区域周边10 km范围内存在多家工业企业,包括电力、石化、化工、水泥、电镀、印染、新材料、金属制品等企业,其可能对农田土壤中Cd、Pb和As的积累影响较大。此外,Cu和Zn可能来源于刹车磨损导致的交通排放^[42]。研究区域东西两侧分别为交通主干道和航运河道,其对农田土壤中Cu和Zn的积累存在一定影响。因此,源1可认为是工业和交通混合源。

源2载荷较大的重金属为Cr和Ni,贡献率分别为149%和71.9%。Ni作为成土过程的标志元素常作为自然来源的指示因子^[10]。本研究中,农田土壤Ni和Cr的含量接近或低于嘉兴市土壤背景值,表明Ni和Cr受人为干扰的影响较小。因此,源2可推测是自然源。

源3载荷较大的重金属为Hg,贡献率为164%。Hg可能来源于农业化学品投入、灌溉水及底泥还田。杨硕等^[43]研究发现,畜禽粪便及化肥是农田土壤Hg的主要来源。Huang等^[44]研究认为,化肥和有机肥等农业投入品是Hg的重要来源,其可造成农田土壤中Hg的含量超标。本研究调查发现,灌溉水源河流底泥中Hg含量较高(0.66 mg·kg⁻¹),底泥通过还田利用或灌溉水进入农田可能是Hg的主要来源。因此,源3可判断是农业源。

APCS-MLR的源解析结果如图7所示。由图7可知,农田土壤重金属的来源为工业和交通排放混合源(44.2%)、自然源(33.8%)和农业源(22.0%)。

2.3.3 PMF

为了获得更准确的污染源及其贡献,本研究进一步利用PMF对重金属进行来源解析,最终得到4个因子(图8)。源1的主要贡献元素为Hg(62.9%),通过上述分析可知源1为农业源。

源2的主要贡献元素为Ni(41.2%)。相关研究证实Ni主要受自然背景的影响^[45]。本研究中,Ni浓度与嘉兴市土壤背景值接近,表明Ni受自然因素影响较大。因此,源2可认为是自然源。

源3的主要贡献元素为Cd(58.7%)。通过上述分析可知,工业排放是Cd的重要来源^[46-47]。因此,源3可判断为工业源。

源4的主要贡献元素是Zn(29.4%)。研究认为,农田土壤Zn主要来源于交通排放^[48]。因此,源4可代表交通源。

PMF源解析结果显示(图9),农田土壤重金属的来源为工业源(32.0%)、自然源(28.2%)、农业源(25.8%)和交通源(14.0%)。结果表明,相较于于

□ 工业和交通混合源 Mixed source of industry and transportation
 ▨ 自然源 Natural source
 ▩ 农业源 Agricultural source

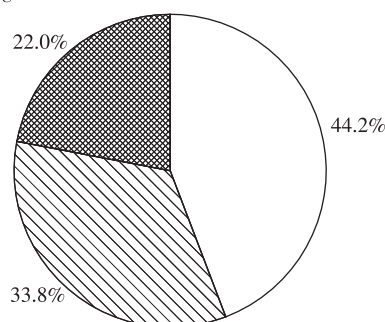


图7 基于APCS-MLR的农田土壤重金属来源贡献

Figure 7 Source contribution of heavy metals from farmland soil based on APCS-MLR

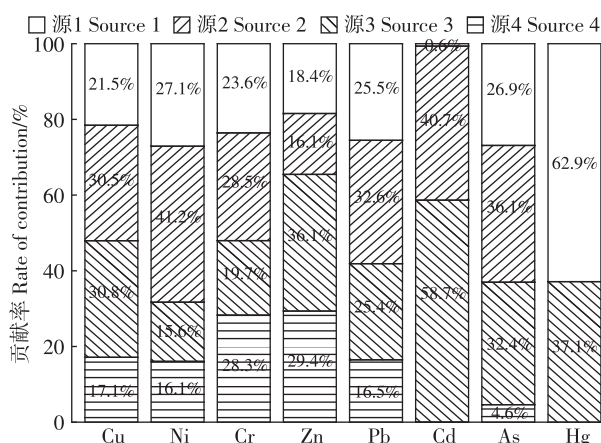


图8 PMF中重金属的因子贡献

Figure 8 Factor contribution of heavy metals based on PMF

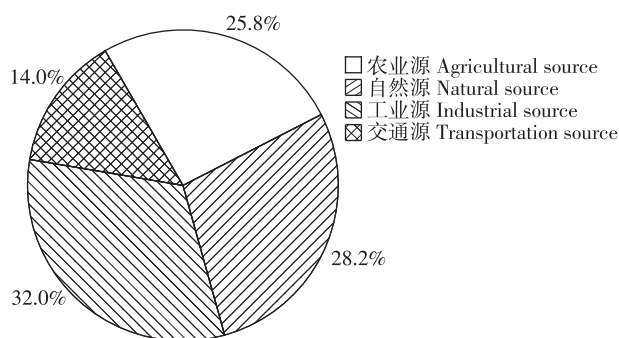


图9 基于PMF的农田土壤重金属来源贡献

Figure 9 Source contribution of heavy metals from farmland soil based on PMF

APCS-MLR, PMF进一步明确了工业源和交通源的贡献,因此,PMF可获得更精确的源解析结果。蒋璇等^[49]利用PMF解析湖北省农田土壤重金属的来源,发现重金属主要来源于农业源(31.2%)、自然源

(29.2%)、工业源(21.4%)和交通源(18.2%),结果与本研究结论较为一致。此外,通过对主要污染元素Hg的源解析显示,Hg主要来源于农业源和工业源,贡献率分别为62.9%和37.1%。未来可加强对农业投入品及工业三废的管控,降低农田土壤中Hg的输入,保障农田土壤的安全利用及农产品的质量安全。

3 结论

(1)研究区域农田土壤呈轻微至轻度污染,主要超标元素为Hg,Hg是导致农田土壤重金属呈中度风险的主要贡献因子。

(2)农田土壤重金属的来源为工业源(32.0%)、自然源(28.2%)、农业源(25.8%)和交通源(14.0%),其中,Hg主要来源于农业源(62.9%)和工业源(37.1%)。

(3)PMF可进一步明确工业源和交通源的贡献,因此可获得更精确的源解析结果。未来可加强对农业投入品及工业三废的管控,降低农田土壤中Hg的输入,保障农田土壤的安全利用及农产品的质量安全。

参考文献:

- [1] 陈能场, 郑煜基, 何晓峰, 等.《全国土壤污染状况调查公报》探析[J]. 农业环境科学学报, 2017, 36(9): 1689-1692. CHEN N C, ZHENG Y J, HE X F, et al. Analysis of the Report on the national general survey of soil contamination[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2017, 36(9): 1689-1692.
- [2] 李娇, 吴劲, 蒋进元, 等. 近十年土壤污染源解析研究综述[J]. 土壤通报, 2018, 49(1): 232-242. LI J, WU J, JIANG J Y, et al. Review on source apportionment of soil pollutants in recent ten years[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2018, 49(1): 232-242.
- [3] 他维媛, 周书宇, 金盛华, 等. 商洛市尾矿区土壤重金属污染评价及来源分析[J]. 环境污染与防治, 2023, 45(5): 687-693. TA W Y, ZHOU S Y, JIN S H, et al. Evaluation and source analysis of heavy metal pollution in soils of tailing areas in Shangluo City[J]. Environmental Pollution & Control, 2023, 45(5): 687-693.
- [4] 范晓婷, 蒋艳雪, 崔斌, 等. 富集因子法中参比元素的选取方法:以元江底泥中重金属污染评价为例[J]. 环境科学学报, 2016, 36(10): 3795-3803. FAN X T, JIANG Y X, CUI B, et al. Selection of a reference element for enrichment factor: a case study on the pollution evaluation of heavy metals in the sediment of Yuan River[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2016, 36(10): 3795-3803.
- [5] KOWALSKA J B, MAZUREK R, GASIOREK M, et al. Pollution indices as useful tools for the comprehensive evaluation of the degree of soil contamination: a review[J]. Environmental Geochemistry and Health, 2018, 40(6): 2395-2420.
- [6] 吴梅, 刘属灵, 袁余洋, 等. 土壤重金属潜在生态风险指数法优化研究:以重庆市城口县为例[J]. 土壤通报, 2023, 54(2): 473-480.

- WU M, LIU S L, YUAN Y Y, et al. Ecological risk index method for soil heavy metals: a case study of Chengkou County, Chongqing City[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2023, 54(2):473-480.
- [7] 尚婷婷, 张亚群, 周静, 等. 多元统计分析在农田土壤重金属污染源解析中的应用[J]. 环境生态学, 2022, 4(4):93-97. SHANG T T, ZHANG Y Q, ZHOU J, et al. Application of multivariate statistical analysis in the analysis of heavy metal pollution sources in farmland soil[J]. *Environmental Ecology*, 2022, 4(4):93-97.
- [8] 卢鑫, 邝荣禧, 何跃, 等. 基于APCS-MLR模型和地统计学相结合的矿区农田土壤砷源解析[J]. 土壤, 2022, 54(2):379-384. LU X, KUANG R X, HE Y, et al. Source apportionment of arsenic in agricultural soils from a typical mining area based on APCS-MLR model and geostatistics[J]. *Soils*, 2022, 54(2):379-384.
- [9] 吕柏楠, 王超, 师华定, 等. 基于受体模型与地统计的耕地土壤重金属污染源解析[J]. 环境科学研究, 2021, 34(12):2962-2969. LÜ B N, WANG C, SHI H D, et al. Analysis of heavy metal pollution sources in cultivated land soil based on receptor model geostatistics[J]. *Research of Environmental Science*, 2021, 34(12):2962-2969.
- [10] WANG L, JIN Y, WEISS D J, et al. Possible application of stable isotope compositions for the identification of metal sources in soil[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2021, 407:124812.
- [11] 冯韶华, 俞一帆, 张旭峰, 等. 中国农田土壤重金属污染源解析研究进展[J]. 环境污染与防治, 2023, 45(9):1300-1306. FENG S H, YU Y F, ZHANG X F, et al. Source apportionment of heavy metals in agricultural soil in China: a review[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2023, 45(9):1300-1306.
- [12] 陈雅丽, 翁莉萍, 马杰, 等. 近十年中国土壤重金属污染源解析研究进展[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(10):2219-2238. CHEN Y L, WENG L P, MA J, et al. Review on the last ten years of research on source identification of heavy metal pollution in soils[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2019, 38(10):2219-2238.
- [13] LV J. Multivariate receptor models and robust geostatistics to estimate source apportionment of heavy metals in soils[J]. *Environmental Pollution*, 2019, 244:72-83.
- [14] GUAN Q, WANG F, XU C, et al. Source apportionment of heavy metals in agricultural soil based on PMF: a case study in Hexi Corridor, northwest China[J]. *Chemosphere*, 2018, 193:189-197.
- [15] XU Q, WANG J, SHI W. Source apportionment and potential ecological risk assessment of heavy metals in soils on a large scale in China[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2023, 45(5):1413-1427.
- [16] JIN G, FANG W, SHIFI M, et al. Source apportionment of heavy metals in farmland soil with application of APCS-MLR model: a pilot study for restoration of farmland in Shaoxing City Zhejiang, China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, 184:109495.
- [17] 卢鑫, 胡文友, 黄标, 等. 基于UNMIX模型的矿区周边农田土壤重金属源解析[J]. 环境科学, 2018, 39(3):1421-1429. LU X, HU W Y, HUANG B, et al. Source apportionment of heavy metals in farmland soils around mining area based on UNMIX model[J]. *Environmental Science*, 2018, 39(3):1421-1429.
- [18] LIU H, ZHANG Y, YANG J, et al. Quantitative source apportionment, risk assessment and distribution of heavy metals in agricultural soils from southern Shandong Peninsula of China[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 767(1):144879.
- [19] PAATERO P, TAPPER U. Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values[J]. *Environmetrics*, 1994, 5(2):111-126.
- [20] XUE J, ZHI Y, YANG L, et al. Positive matrix factorization as source apportionment of soil lead and cadmium around a battery plant (Changxing County, China)[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, 21(12):7698-7707.
- [21] NORRIS G, DUVAL R, BROWN S, et al. EPA positive matrix factorization (PMF) 5.0 fundamentals and user guide[M]. U. S. Environmental Protection Agency, Washington, DC, EPA/600/R-14/108 (NTIS PB2015-105147), 2014.
- [22] CAO Q M, WANG H, CHEN G Z. Source apportionment of PAHs using two mathematical models for mangrove sediments in Shantou coastal zone, China[J]. *Estuaries and Coasts*, 2011, 34(5):950-960.
- [23] SALIM I, SAJJAD R U, PAULE-MERCADO M C, et al. Comparison of two receptor models PCA-MLR and PMF for source identification and apportionment of pollution carried by runoff from catchment and sub-watershed areas with mixed land cover in South Korea[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 663(1):764-775.
- [24] 霍明珠, 高秉博, 乔冬云, 等. 基于APCS-MLR受体模型的农田土壤重金属源解析[J]. 农业环境科学学报, 2021, 40(5):978-986. HUO M Z, GAO B B, QIAO D Y, et al. Source apportionment of heavy metals in farmland soil based on the APCS-MLR model[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2021, 40(5):978-986.
- [25] 王锐, 邓海, 严明书, 等. 重庆市酉阳县南部农田土壤重金属污染评估及来源解析[J]. 环境科学, 2020, 41(10):4749-4756. WANG R, DENG H, YAN M S, et al. Assessment and source analysis of heavy metal pollution in farmland soils in southern Youyang County, Chongqing[J]. *Environmental Science*, 2020, 41(10):4749-4756.
- [26] CHEN Z, DING Y, JIANG X, et al. Combination of UNMIX, PMF model and Pb-Zn-Cu isotopic compositions for quantitative source apportionment of heavy metals in suburban agricultural soils[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2022, 234:113369.
- [27] 张恬雨, 胡恭任, 于瑞莲, 等. 基于PMF模型的垃圾焚烧厂周边农田土壤重金属源解析[J]. 环境科学, 2022, 43(12):5718-5727. ZHANG T Y, HU G R, YU R L, et al. Source analysis of heavy metals in farmland soil around a waste incineration plant based on PMF model[J]. *Environmental Science*, 2022, 43(12):5718-5727.
- [28] 朱晓丽, 薛博倩, 李雪, 等. 基于PMF模型的宝鸡铅锌尾矿库周边农田土壤重金属源解析[J]. 西北大学学报(自然科学版), 2021, 51(1):43-53. ZHU X L, XUE B Q, LI X, et al. Sources apportionment of heavy metals in farmland soil around lead-zinc tailings reservoir based on PMF model[J]. *Journal of Northwest University (Natural Science Edition)*, 2021, 51(1):43-53.
- [29] KOWALSKA J B, MAZUREK R, GASIOREK M, et al. Pollution indices as useful tools for the comprehensive evaluation of the degree of soil contamination: a review[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2018, 40(6):2395-2420.
- [30] HAKANSON L. An ecological risk index for aquatic pollution control.

- A sedimentological approach[J]. *Water Research*, 1980, 14(8): 975–1001.
- [31] 傅晓铎, 刘婷婷. 桐乡某皮革厂周边土壤重金属污染及健康风险评估[J]. 安徽农业科学, 2018, 46(35): 80–86. FU X X, LIU T T. Heavy metal pollution and health risk assessment of soil around a leather factory in Tongxiang[J]. *Journal of Anhui Agriculture Science*, 2018, 46(35): 80–86.
- [32] 戴文博. 城市交通干道冬季大气干沉降颗粒物及重金属的时空分布特征研究: 以海口市龙昆南主干道为例[D]. 海口: 海南师范大学, 2022. DAI W B. Study on temporal and spatial distribution characteristics of atmospheric dry deposition particles and heavy metals on urban traffic trunk roads in winter: a case study of Longkun south trunk road in Haikou City[D]. Haikou: Hainan Normal University, 2022.
- [33] 韩晋仙, 李二玲, 班凤梅. 常规农业村土壤重金属污染及潜在生态风险评价: 山西寿阳县为例[J]. 中国土壤与肥料, 2020(6): 246–253. HAN J X, LI E L, BAN F M. Assessment of heavy metal pollution and potential ecological risks of farmland soils in conventional agricultural villages: a case study in Shouyang County of Shanxi Province[J]. *Soil and Fertilizer Sciences in China*, 2020(6): 246–253.
- [34] 黄安香, 柏文恋, 邬能英, 等. 贵州油茶主产区土壤重金属环境质量状况及风险评价[J]. 环境化学, 2023, 42(4): 1325–1336. HUANG A X, BAI W L, WU N Y, et al. Pollution and risk assessment of heavy metals in *Camellia oleifera* main producing area soil of Guizhou Province[J]. *Environmental Chemistry*, 2023, 42(4): 1325–1336.
- [35] 崔云霞, 曹伟琦, 李伟迪, 等. 长三角农业活动区农田土壤重金属风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2021, 40(7): 1441–1450. CUI Y X, CAO W Q, LI W D, et al. Risk assessment of heavy metals in farmland soils in an agricultural region in the Yangtze River Delta[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2021, 40(7): 1441–1450.
- [36] 周亚龙, 杨志斌, 王乔林, 等. 雄安新区农田土壤-农作物系统重金属潜在生态风险评估及其源解析[J]. 环境科学, 2021, 42(4): 2003–2015. ZHOU Y L, YANG Z B, WANG Q L, et al. Potential ecological risk assessment and source analysis of heavy metals in soil-crop system in Xiong'an New District[J]. *Environmental Science*, 2021, 42(4): 2003–2015.
- [37] 王茜, 张光辉, 田言亮, 等. 农田表层土壤中重金属潜在生态风险效应研究[J]. 水文地质工程地质, 2017, 44(4): 165–172. WANG Q, ZHANG G H, TIAN Y L, et al. Research on the potential ecological risk of farmland top-soil of heavy metals[J]. *Hydrogeology & Engineering Geology*, 2017, 44(4): 165–172.
- [38] HU Y, HE K, SUN Z, et al. Quantitative source apportionment of heavy metal (loid)s in the agricultural soils of an industrializing region and associated model uncertainty[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 391: 122244.
- [39] SHAO D, ZHAN Y, ZHOU W, et al. Current status and temporal trend of heavy metals in farmland soil of the Yangtze River Delta region: field survey and meta-analysis[J]. *Environmental Pollution*, 2016, 219: 329–336.
- [40] PENG H, CHEN Y L, WENG L P, et al. Comparisons of heavy metal input inventory in agricultural soils in north and south China: a review[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 660: 776–786.
- [41] YANG S H, QU Y J, MA J, et al. Comparison of the concentrations, sources, and distributions of heavy metal (loid)s in agricultural soils of two provinces in the Yangtze River Delta, China[J]. *Environmental Pollution*, 2020, 264: 114688.
- [42] HJORTENKRAN D, BERGBACK B, HAGGERUD A. New metal emission patterns in road traffic environments[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2006, 117(1/2/3): 85–98.
- [43] 杨硕, 阎秀兰, 冯依涛. 河北曹妃甸某农场农田土壤重金属空间分布特征及来源分析[J]. 环境科学学报, 2019, 39(9): 3064–3072. YANG S, YAN X L, FENG Y T. Spatial distribution and source identification of heavy metals in the farmland soil of the Caoheidian in Hebei Province[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, 39(9): 3064–3072.
- [44] HUANG Y, LI T, WU C, et al. An integrated approach to assess heavy metal source apportionment in peri-urban agricultural soils[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, 299(15): 540–549.
- [45] HU Y, CHENG H. Application of stochastic models in identification and apportionment of heavy metal pollution sources in the surface soils of a large-scale region[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(8): 3752–3760.
- [46] LIU P, WU Q, WANG X, et al. Spatiotemporal variation and sources of soil heavy metals along the lower reaches of Yangtze River, China[J]. *Chemosphere*, 2022, 291(1): 132768.
- [47] ZERIZGHI T, GUO Q, TIAN L, et al. An integrated approach to quantify ecological and human health risks of soil heavy metal contamination around coal mining area[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 814(25): 152653.
- [48] 刘慧琳, 葛畅, 沈强, 等. 铁矿废弃地复垦土壤重金属来源解析研究[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(2): 317–324. LIU H L, GE C, SHEN Q, et al. Source apportionment of heavy metals in reclaimed soil of iron mine wasteland[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2019, 38(2): 317–324.
- [49] 蒋璇, 熊晶, 吴亦潇, 等. 湖北省农田土壤重金属来源解析与质量评价[J]. 环境科学与技术, 2019, 42(12): 211–217. JIANG X, XIONG J, WU Y X, et al. Source apportionment and pollution characteristics of heavy metal in agricultural soil in Hubei Province[J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 42(12): 211–217.

(责任编辑: 李丹)