

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第4期

Vol.38 No.4

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

西宁近郊大气氮干湿沉降研究 许稳, 金鑫, 罗少辉, 冯兆忠, 张霖, 潘月鹏, 刘学军 (1279)

兰州春夏季 PM₁₀ 碳组分昼夜变化特征与来源分析 马丽, 余晔, 王博, 赵素平, 李刚 (1289)

海南三亚大气颗粒物中水溶性无机离子浓度及其粒径分布特征 王璐, 刘子锐, 温天雪, 苗红妍, 王跃思 (1298)

2015年北京城区大气 PM_{2.5} 中 NH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻ 及前体气体的污染特征 丁萌萌, 周健楠, 刘保献, 王焱, 张博韬, 石爱军, 杨懂艳, 常森 (1307)

北京市某垃圾焚烧厂周边大气二噁英污染特征及暴露风险 齐丽, 任玥, 刘爱民, 黄业茹, 赵震, 王江, 李泓 (1317)

北京和保定地区大气细颗粒物中可培养细菌的种群特征 胡亚东, 马安周, 吕鹏翼, 张扬, 庄国强 (1327)

基于实时交通数据的南京市主次干道机动车排放特征分析 李笑语, 吴琳, 邹超, 张意, 毛洪钧, 荆博宇 (1340)

过渡金属掺杂对镉锡烧绿石催化碳烟燃烧性能的影响 李曦峰, 孙宇琦, 王仲鹏, 牟宗刚, 崔兆杰 (1348)

南水北调中线北京段水质状况分析 徐华山, 赵磊, 孙昊苏, 任玉芬, 丁涛, 常帅, 王海东, 李森, 果钊 (1357)

三峡前置库汉丰湖试运行年水文水质变化特征 杨兵, 何丙辉, 王德宝 (1366)

基于偏最小二乘模型的河流水质对土地利用的响应 李琳琳, 张依章, 唐常源, 郑磊, 孟伟, 卢少勇, 敦宇 (1376)

抚仙湖夏季热分层时期水温及水质分布特征 王琳杰, 余辉, 牛勇, 牛远, 张有林, 刘倩, 吉正元 (1384)

千岛湖溶解氧与浮游植物垂向分层特征及其影响因素 俞焰, 刘德富, 杨正健, 张佳磊, 徐雅倩, 刘晋高, 严广寒 (1393)

高通量测序技术研究辽河真核浮游藻类的群落结构特征 王靖淇, 王书平, 张远, 林佳宁, 高欣, 臧小苗, 赵茜 (1403)

三门湾近海有机污染对浮游细菌群落的影响 戴文芳, 郭永豪, 郁维娜, 熊金波 (1414)

沉积物-水界面氮的源解析和硝化反硝化 金赞芳, 龚嘉临, 施伊丽, 金漫彤, 李非里 (1423)

广州南沙红树林湿地水体和沉积物中有机氯农药的残留特征 丁洋, 黄焕芳, 李绘, 罗杰, 郑煌, 孙焰, 杨丹, 张原, 祁士华 (1431)

太湖西岸河网沉积物中重金属污染特征及风险评价 边博, 周燕, 张琴 (1442)

锁磷剂对杭州西湖底泥磷释放的控制效果 朱广伟, 李静, 朱梦圆, 龚志军, 许海, 杨桂军, 张运林, 秦伯强 (1451)

超滤处理东江水不可逆膜污染物的识别和活性炭对其吸附去除 杨海燕, 王灿, 鄢忠森, 李冬平, 赵焱, 瞿芳术, 梁恒, 徐叶琴, 李圭白 (1460)

UV/SPS 降解水中三氯生的效能及动力学 李青松, 李学艳, 姚宁波, 骆靖宇, 李国新, 陈国元, 高乃云 (1467)

真空紫外-亚硫酸盐法降解 PFOS 影响因素 韩慧丽, 王宏杰, 董文艺 (1477)

g-C₃N₄ 协同光催化还原 Cr(VI) 及氧化磺基水杨酸 李莉莉, 陈翠柏, 兰华春, 刘菲, 安晓强 (1483)

锆改性硅藻土吸附水中磷的研究 范艺, 王哲, 赵连勤, 吴德意 (1490)

3种常规消毒方法对磺胺类抗性基因削减效果的比较 郑吉, 周振超, 陈芳, 陈涛, 魏媛媛, 韩玥, 陈红 (1497)

典型生活污水处理工艺对雌激素效应的去除 张秋亚, 马晓妍, 王晓昌, 游猛 (1506)

SRT 对酵母-SBR 处理油脂废水稳定性的影响 吕文洲, 张树林, 乔宇祥, 刘英 (1513)

分散染料 neocron black(NB) 的生物降解特性 杨波, 丁凤友, 徐辉, 李方, 田晴, 马春燕 (1520)

多聚磷酸盐激酶基因在污水生物除磷中的功能 南亚萍, 周国标, 袁林江 (1529)

生物膜短程硝化系统的恢复及其转化为 CANON 工艺的过程 付昆明, 周厚田, 苏雪莹, 王会芳 (1536)

厌氧氨氧化反应器脱氮性能及细菌群落多样性分析 曹雁, 王桐屿, 秦玉洁, 韩彬, 任君怡 (1544)

内环境调节层对厌氧生物反应器填埋场中氮转化的影响 何正坤, 宋博宇, 朱南文, 董军 (1551)

矿化垃圾中 Fe(III) 还原耦合 CH₄ 厌氧去除特性 王立立, 何婷, 龙焰, 刘常宝 (1558)

应用铅铋同位素示踪研究泉州某林地垂直剖面土壤中重金属污染及来源解析 孙境蔚, 于瑞莲, 胡恭任, 苏光明, 王晓明 (1566)

畜禽粪有机肥中重金属在土壤剖面中积累迁移特征及生物有效性差异 何梦媛, 董同喜, 茹淑华, 苏德纯 (1576)

山东省农田土壤多环芳烃的污染特征及源解析 葛蔚, 程琪琪, 柴超, 曾路生, 吴娟, 陈清华, 朱祥伟, 马东 (1587)

江汉平原典型土壤环境中有机磷农药的分布特征及影响因素 王建伟, 张彩香, 潘真真, 廖小平, 刘媛, 吕幽, 汤蜜 (1597)

基于生物有效性的农田土壤磷素组分特征及其影响因素分析 蔡观, 胡亚军, 王婷婷, 袁红朝, 王久荣, 李巧云, 葛体达, 吴金水 (1606)

秸秆还田对外源氮在土壤中转化及其微生物响应的影响 陈珊, 丁咸庆, 祝贞科, 王娟, 彭佩钦, 葛体达, 吴金水 (1613)

生物炭输入对城郊农业区农田地表反照率及土壤呼吸的影响 张阳阳, 胡学玉, 邹娟, 张迪, 陈威, 王向前, 陈窈君, 刘扬 (1622)

淹水水稻土消耗 N₂O 能力及机制 王玲, 邢肖毅, 秦红灵, 刘毅, 魏文学 (1633)

不同污水处理工艺非二氧化碳温室气体的释放 李惠娟, 彭党聪, 刘文博, 姚倩, 卓杨 (1640)

施用不同污泥堆肥对土壤温室气体排放的影响 杨雨滢, 易建婷, 张成, 陈宏, 木志坚 (1647)

不同镉水平下纳米沸石对土壤 pH、CEC 及 Cd 形态的影响 迟苏琳, 徐卫红, 熊仕娟, 王卫中, 秦余丽, 赵婉伊, 张春来, 李彦华, 李桃, 张进忠, 熊治庭, 王正银, 谢德体 (1654)

不同作物对外源硒动态吸收、转运的差异及其机制 彭琴, 李哲, 梁东丽, 王梦柯, 郭璐 (1667)

褪黑素对水稻幼芽镍胁迫的缓解作用 刘仕翔, 黄益宗, 罗泽娇, 黄永春, 蒋航 (1675)

不同形态磺胺类药物在根-土界面的空间分布及毒性评价 金彩霞, 司晓薇, 王万峰, 王春峰, 王子英, 张琴文, 王婉 (1683)

三峡库区消落带沉积物对鱼体富集率的影响 孙松, 李楚娴, 张成, 王永敏, 王定勇 (1689)

重庆市居民头发重金属富集特征及其相关性分析 何明靖, 李琦, 王登祥, 赵佳渊, 杨婷 (1697)

16S rRNA 高通量测序研究集雨窖水中微生物群落结构及多样性 杨浩, 张国珍, 杨晓妮, 武福平, 赵炜, 张洪伟, 张翔 (1704)

石墨烯掺杂聚苯胺阳极提高微生物燃料电池性能 黄力华, 李秀芬, 任月萍, 王新华 (1717)

美国污染场地清理的风险评估简介及政策制定 容跃 (1726)

《环境科学》征稿简则 (1505) 《环境科学》征订启事 (1682) 信息 (1339, 1459, 1612)

应用铅锶同位素示踪研究泉州某林地垂直剖面土壤中重金属污染及来源解析

孙境蔚^{1,2}, 于瑞莲¹, 胡恭任^{1*}, 苏光明¹, 王晓明³

(1. 华侨大学环境科学与工程系, 厦门 361021; 2. 泉州师范学院资源与环境科学学院, 泉州 362000; 3. 核工业北京地质研究院分析测试研究中心, 北京 100029)

摘要: 分别用原子吸收光谱仪(AAS)和电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)分析了泉州市某林地垂直剖面土壤中 8 种重金属元素(Sr、Ni、Fe、Cr、Cu、Mn、Pb、Zn)的含量及垂直剖面土壤的铅锶同位素组成, 并采用 BCR 四步提取法对重金属形态进行了分析. 重金属总量及形态分析结果表明, 泉州市林地土壤重金属污染较轻, 主要污染因子为 Sr. Pb 的非残渣态含量最高, 活性最大. 内梅罗综合污染指数的评价结果表明, Sr 在 0~60 cm 深度处达到重度污染. 次生相与原生相比值法评价结果表明, Pb 活性最强, 对土壤的潜在危害最大; 富集因子计算结果表明, Pb、Sr、Mn、Zn 受到外源的影响; 因子分析结果表明, 重金属主要受到交通源、自然源和农业生产的影响. 根据垂直剖面土壤样品与泉州市潜在污染源在²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb-²⁰⁷Pb/²⁰⁴Pb图中的分布特征, Pb 主要来源于汽车尾气尘和土壤母质层, 利用铅同位素二元混合模型计算出土壤母质层对垂直剖面土壤中铅的贡献率为 85.14% (62.53%~98.36%), 汽车尾气尘的贡献率平均值为 14.86% (1.640%~37.47%). 锶同位素示踪结果表明, 锶主要来源于汽车尾气尘和土壤母质. 铅锶同位素联合示踪结果与前述研究一致.

关键词: 重金属; 铅锶同位素示踪; 源解析; 因子分析; 富集因子; 林地; 垂直剖面土壤

中图分类号: X53 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)04-1566-10 DOI: 10.13227/j.hjks.201609131

Assessment of Heavy Metal Pollution and Tracing Sources by Pb & Sr Isotope in the Soil Profile of Woodland in Quanzhou

SUN Jing-wei^{1,2}, YU Rui-lian¹, HU Gong-ren^{1*}, SU Guang-ming¹, WANG Xiao-ming³

(1. Department of Environmental Science and Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, China; 2. School of Resources and Environmental Science, Quanzhou Normal University, Quanzhou 362000, China; 3. Center of Analysis, Beijing Research Institute of Uranium Geology, Beijing 100029, China)

Abstract: The contents of 8 heavy metal elements (Sr, Ni, Fe, Cr, Cu, Mn, Pb, Zn) and the lead & strontium isotope composition of soil profile of woodland in Quanzhou city were analyzed by AAS and ICP-MS, respectively. A modified BCR four-step sequential extraction procedure was carried out to obtain the speciation fractionation of heavy metals in the soil profile from 4 stations. The results of the heavy metal elements and the speciation fractionation of heavy metals in the soil profile showed that the heavy metal pollution in the woodland in Quanzhou was relatively light, and the main pollution factor was Sr. The non-residue state of Pb was the highest, leading to the highest activity. The result of Nemeru comprehensive pollution index showed that Sr in the depth of 0-60 cm was at heavy pollution level. The results of the RSP showed that the activity of Pb was the highest. The results of EF showed that Pb, Sr, Mn and Zn had exogenous sources. Factor analysis showed that the main sources of heavy metals were the compound pollution of agricultural activities, natural resources, and the vehicle exhaust. Composition of Pb isotopic ratios showed that, Pb in soil profile of woodland in Quanzhou was from vehicle exhaust and parent material. The contribution rates of the two sources in the soil profile were calculated by using the two-mixed model. The contribution rates of parent material and vehicle exhaust were 85.14% (62.53% - 98.36%) and 14.86% (1.640% - 37.47%) on average, respectively. Strontium isotope tracing results showed that the main sources of strontium were also vehicle exhaust and parent material. Coupling both Pb and Sr isotope ratios agreed with the above mentioned results.

Key words: heavy metals; Pb & Sr isotope tracing; source apportionment; factor analysis; enrichment factor; woodland; soil vertical profile

森林是生态环境的重要组成部分, 在生态平衡中起着重要作用. 工业化和城市化的快速发展使许多林地受到不同程度的重金属污染, 使森林生态系统的安全受到威胁, 已引起众多学者的关注^[1]. 于小俸等^[2]对壶瓶山自然保护区林地土壤重金属进行了研究, 结果表明, Cd、As、Cu、Pb、Zn 和 Ni 均

为轻微污染, 污染程度最高的是 As、Ni 和 Pb. 丁园

收稿日期: 2016-09-18; 修订日期: 2016-11-09

基金项目: 国家自然科学基金项目(21177043, 21377042); 福建省自然科学基金项目(2015J01147); 泉州市科技计划项目(2014Z130)

作者简介: 孙境蔚(1981~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为环境化学, E-mail: sunjingwei2005@163.com

* 通信作者, E-mail: grhu@hqu.edu.cn

等^[3]对庐山森林土壤重金属的研究表明,表层土壤 Cu、Pb、Zn 和 Cd 含量普遍超标,土壤重金属在垂直剖面上的分布是随着土层深度的增加而递减,表明土壤重金属污染主要来源于外部。

泉州市地处福建省东南部,是海峡西岸经济繁荣带的重要组成部分。已有研究表明,泉州市表层土壤重金属污染日趋严重^[4],但有关该市林地土壤重金属污染及其来源的研究罕见报道。本文通过对泉州某林地剖面土壤中 8 种重金属元素(Cr、Cu、Fe、Mn、Ni、Pb、Sr、Zn)总量及形态的分析,探讨林地剖面土壤中重金属污染状况和富集特征,并基于多元统计分析法及铅镉同位素示踪技术对重金属污染来源进行分析,以期对泉州市林地土壤重金属污染防治提供一定的参考依据。

1 材料与方法

1.1 研究区域概况

泉州市土壤中红壤面积最大,其次为水稻土、砖红壤性红壤和黄壤,土壤垂直分布明显,土壤比较浅薄,有机质含量偏低,且有下降趋势,土壤酸性偏大^[5]。泉州市有丰富的森林资源,截至 2014 年底,泉州市林业用地面积 1 030.65 万亩,占全市土地总面积的 62.48%。本研究的采样剖面位于泉州市惠安县河市镇与紫山镇之间(118.6875°E, 25.056216°N),距离沈海高速 2 km,属山地土壤,主要植被类型为马尾松,当地属亚热带海洋性季风气候。

1.2 样品采集与处理

按 20 cm 深度为一个样本,采集 0~180 cm 深度,共计 9 个垂直剖面土壤样品。每层土壤样品采集约 1~2 kg,置于干净的塑料袋中,密封并贴好标签,注明标号,并做现场描述记录,将采集的样品运回实验室,置于室内晾干,剔除杂物并捣碎,过 2 mm 尼龙筛,再轻轻研磨,过 63 μm 尼龙筛,装入聚乙烯塑料袋中密封,置于干燥处保存备用。

1.3 样品分析与质量控制

预处理后的土壤样品送至核工业北京地质研究院分析测试中心进行分析测定。重金属总量采用 ELAN DRC-e 型电感耦合等离子体质谱测定,以 ESS-3 土壤基体标准样品进行质量控制,测定结果的相对标准偏差小于 5.0%;重金属形态分析采用改进的 BCR 四步连续提取法^[6],提取液用 TAS-986 型 AAS 测定,用土壤 GSS-7(GBW07407)系列标准物质进行平行样分析,BCR 四步形态之和的

回收率范围为 80.33%~116.2%;采用 IsoProbe-T 型热电离子质谱仪(TIMS)进行铅、镉同位素比值的测定,分别用美国国家标准局的铅、镉同位素标准物质 NBS981 和 NBS987 进行质量控制,铅、镉同位素的测定精度满足较高的测试精度。详细测试过程参照文献[7]。酸可溶相和残渣态铅镉同位素分别采用 HNO₃ 和浓硝酸-高氯酸提取,用 ICP-MS 测定。

2 结果与分析

2.1 垂直剖面土壤理化参数

林地垂直剖面土壤特征及主要理化参数分析结果如表 1 所示,pH 值范围为 4.89~6.01,平均值为 5.23,整体呈偏酸性。CaCO₃ 平均值为 4.43%,波动范围为 2.91%~5.76%,阳离子交换量(CEC)平均值为 15.90 mmol·kg⁻¹,波动范围为 10.95~20.67 mmol·kg⁻¹,土壤有机质平均值为 2.11%,变化范围为 1.07%~3.96%。随着土壤剖面深度的变化,土壤 pH 随着深度的增加而减小,其中 60~80 cm 深度处 pH 最小(4.89)。由于泉州地区的土壤呈酸性^[8],而一般认为酸性环境有利于土壤中重金属元素的迁移转化。土壤有机质主要由枯枝落叶、动物尸体腐化形成,由于采样区域为林地,表现为有机质表层含量最高,底层最低,变化趋势极为明显。有机质能够与重金属元素耦合,对金属元素的生物可利用性产生影响^[9]。此外,有机质含量影响土壤中微生物群落的数量,而微生物的生长过程中能使重金属元素的形态发生转化,从而改变重金属元素的活性。阳离子交换量可以反映土壤中阳离子的活性,含量越高,说明其活性越强。

2.2 垂直剖面土壤中重金属元素的含量

林地垂直剖面土壤重金属元素质量分数的统计结果见表 2。剖面土壤中的重金属在部分深度高于福建省土壤元素背景值^[10],Sr、Ni、Fe、Cr、Cu、Mn、Pb、Zn 含量分别为背景值的 0.8~3.8、0.4~2、0.2~0.9、0.3~1.0、0.4~0.7、0.4~1.1、1.0~1.5 和 0.8~1.0 倍。超过背景值倍数最高的是 Sr 和 Pb。本文研究的林地重金属含量远低于泉州市区表层土壤重金属含量^[4],表明林地重金属污染相对于其他功能区较轻。

从重金属元素的剖面变化来看(图 1),Pb、Mn、Zn 和 Sr 的变化趋势基本一致,表现出明显的表聚性,表明该几种重金属近年来人为输入比较明显。Cu、Cr、Ni、Fe 变化趋势一致,表现为表层低、底层

高的特点,且除底层土壤中的 Ni 之外,均未超过背景值,表明 Cu、Cr、Ni、Fe 受到人为污染的影响较轻. 8 种元素的变异系数顺序为 $CV(Sr) > CV(Ni)$

$> CV(Fe) > CV(Cr) > CV(Mn) > CV(Cu) > CV(Pb) > CV(Zn)$. 变异系数越大,表明该元素在不同历史时期的输入量差异越大^[11].

表 1 泉州林地垂直剖面土壤样品详细信息及理化参数

Table 1 Basic information and physical-chemical parameters of the soil profile of the woodland in Quanzhou

样品编号	采样深度/cm	土壤样品外观描述	pH	CaCO ₃ /%	CEC /mmol·kg ⁻¹	有机质/%
p106-1	0~20	暗灰色,富含有机质,有植物根系	6.01	2.91	10.95	3.96
p106-2	20~40	暗灰色,有植物根系	5.82	5.76	17.46	3.80
p106-3	40~60	灰色	5.21	4.57	13.17	2.14
p106-4	60~80	灰黄色	4.89	4.64	12.73	1.60
p106-5	80~100	灰黄色	5.12	4.56	20.67	1.76
p106-6	100~120	赤黄色	4.99	3.18	15.51	1.66
p106-7	120~140	砖红色	5.01	4.99	16.59	1.55
p106-8	140~160	砖红色	4.99	5.62	17.34	1.44
p106-9	160~180	砖红色	5.06	3.62	18.92	1.07

表 2 泉州林地垂直剖面土壤重金属元素的质量分数统计值

Table 2 Statistics of heavy metal elements in soil profile of woodland in Quanzhou

统计量	$\omega/\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$							
	Cr	Cu	Fe	Mn	Ni	Pb	Sr	Zn
最小值	12.50	10.20	8 200	115.0	5.450	33.20	29.40	63.40
最大值	43.20	16.90	36 800	320.0	26.90	51.80	133.0	86.80
平均值	28.97	13.82	22 744	207.8	17.40	42.53	66.68	76.71
CV/%	43.83	20.39	55.30	42.27	55.33	17.99	70.77	9.970
泉州市表层土壤 ^[4]	54.16	293.3	38 392	1 999	31.33	245.0	239.4	1 622
福建省土壤背景值 ^[10]	41.30	22.80	42 400	280.0	13.50	34.90	34.00	82.70

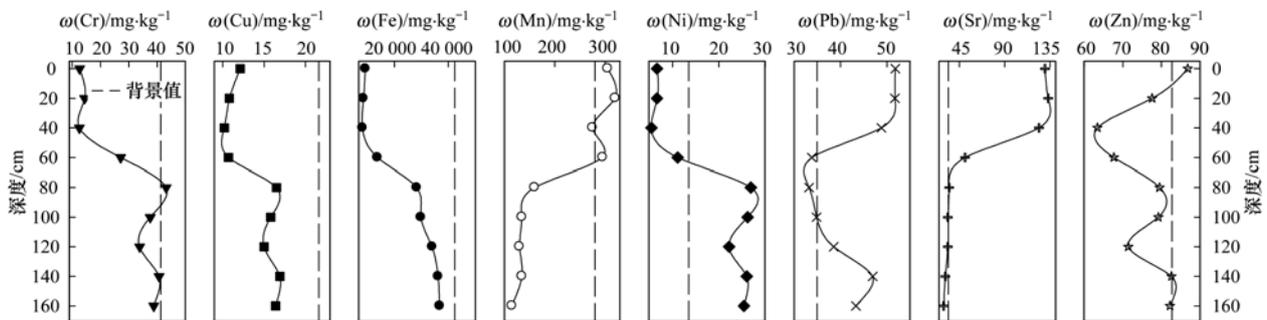


图 1 泉州林地垂直剖面土壤中重金属含量变化

Fig. 1 Distribution of heavy metals in the soil profile of the woodland in Quanzhou

2.3 垂直剖面土壤中重金属的形态

BCR 连续提取法^[12]提取重金属的形态包括:弱酸溶态(F1),包括水溶态、可交换态和碳酸盐结合态,对环境变化敏感,易迁移转化,能被生物直接利用;可还原态(F2)主要为 Fe-Mn 氧化物结合态,在还原条件下易被释放而造成二次污染,也具有较高的生物有效性和迁移能力;可氧化态(F3)包括有机质结合态和硫化物结合态,在氧化环境下可转化为活性态,对生物具有潜在的危害性;残渣态(F4)主要指存在于矿物晶格中的重金属,是生物所不能利用的,短期内不会导致污染发生^[13]. F1、F2、F3 统

称为可提取态,可提取态重金属可反映人类近期排污情况对重金属赋存形态的影响及生物有效性^[14]. 泉州市林地剖面土壤重金属 BCR 形态分析结果如图 2 所示.

除 Pb 以外的其他重金属均主要存在于残渣态,说明其大部分被束缚在矿物晶格中,主要是自然来源,潜在生物有效性相对较小. 随着剖面深度的变化,8 种重金属 F4 态的比例均在底层土壤中最大,表层最小. Pb 主要存在于可还原态(F2),Fe-Mn 氧化物由于巨大的比表面积,对痕量金属尤其是铅具有协同削减作用^[15],控制 Pb



图 2 泉州林地垂直剖面土壤中重金属形态分布

Fig. 2 Speciation of heavy metals in the soil profile of the woodland in Quanzhou

在环境中的迁移. 高可还原态的 Pb 表明其主要受到非点源的人为源污染^[16]的影响, 其非残渣态含量在所有测定的元素中最高, 在还原条件下易大量释放, 而高浓度的 Pb 对植物生长有抑制作用^[17], 因此需特别关注. 表层土壤中, Ni、Pb、Zn、Cu 和 Cr 在 F3 态中都有一定量的分布, 说明土壤表层中较高的有机质含量对这些金属的吸附起到一定的作用.

2.4 林地剖面土壤重金属污染评价

2.4.1 内梅罗综合污染指数法

选用内梅罗综合污染指数 (Nemero pollution index, P) 评价土壤综合污染程度, 公式见式(1).

$$P = \sqrt{\frac{\left(\frac{C_i}{S_i}\right)_{\max} + \left(\frac{C_i}{S_i}\right)}{2}} \quad (1)$$

式中, C_i 为重金属含量, S_i 为背景值^[10], 评价的分级标准^[18]为: $P \leq 0.7$, 清洁; $0.7 < P \leq 1.0$, 警戒线; $1.0 < P \leq 2$, 轻度污染; $2.0 < P \leq 3.0$, 中度污染; $P > 3.0$, 重度污染. 计算结果如表 3 所示, 8 种重金属的内梅罗综合污染指数平均值的大小关系为 $P_{Sr} > P_{Ni} > P_{Pb} > P_{Zn} > P_{Mn} > P_{Cr} > P_{Cu} > P_{Fe}$, 其中, Pb、Sr、Ni 为轻度污染, Cr、Mn 和 Zn 为警戒线, Fe 和 Cu 为清洁. Sr 在 0~60 cm 深度为重度污染, 随着土壤深度的增加, P 值逐渐降低至警戒线.

表 3 泉州林地垂直剖面土壤内梅罗综合污染指数

Table 3 Nemerow Pollution Index in the soil profile of the woodland in Quanzhou

样品编号	深度/cm	P_{Cr}	P_{Cu}	P_{Fe}	P_{Mn}	P_{Ni}	P_{Pb}	P_{Sr}	P_{Zn}
p106-1	0~20	0.305	0.560	0.217	1.089	0.494	1.484	3.824	1.050
p106-2	20~40	0.349	0.500	0.200	1.143	0.494	1.481	3.912	0.938
p106-3	40~60	0.303	0.472	0.193	0.982	0.404	1.398	3.647	0.767
p106-4	60~80	0.656	0.495	0.323	1.054	0.822	0.968	1.488	0.819
p106-5	80~100	1.046	0.764	0.667	0.571	1.993	0.951	1.024	0.961
p106-6	100~120	0.910	0.731	0.703	0.482	1.941	0.997	0.988	0.958
p106-7	120~140	0.818	0.694	0.802	0.464	1.644	1.103	0.988	0.863
p106-8	140~160	0.985	0.782	0.854	0.482	1.926	1.344	0.915	0.999
p106-9	160~180	0.939	0.759	0.868	0.411	1.881	1.241	0.865	0.994
平均值		0.701	0.640	0.536	0.742	1.289	1.219	1.961	0.928

2.4.2 次生相与原生相比值法

次生相与原生相比值法 (ratio of the secondary

phase and primary phase, RSP) 最早被运用于鄱阳湖沉积物中 Cu 元素的研究^[19], 其数学表达式见式

(2).

$$RSP = \frac{M_{sec}}{M_{prim}} \quad (2)$$

式中, RSP 为次生相与原生相比值; M_{sec} 为土壤次生相中的重金属含量, 采用非残渣态金属含量; M_{prim} 为土壤原生相中的重金属含量, 采用残渣态金属含量. 当 $RSP < 1$ 为无污染, $1 < RSP < 2$ 为轻度污染, $2 < RSP < 3$ 为中度污染, $RSP > 3$ 为重度污染.

RSP 的计算结果如表 4 所示, Pb 污染较为严重, 0~20 cm 深度达到重度污染, 20~60 cm 深度为中度污染, 60~120 cm 为轻度污染, 120 cm 深度以下为无污染. Cr 在 0~20 cm 深度为轻度污染, 其余重金属元素在整个剖面均为无污染 ($RSP < 1$). 次生相原生相比值结果反映了化学活性和生物可利用性, 虽然 Pb 的内梅罗综合污染指数显示为轻度污染, 但是其 RSP 较高, 因此 Pb 的活性较大, 存在较大的潜在风险, 应予以重视.

表 4 泉州市林地剖面土壤重金属元素次生相与原生相比值

Table 4 The RSP of heavy metals in the soil profile of the woodland in Quanzhou

样品编号	深度/cm	Cr	Cu	Fe	Mn	Ni	Pb	Zn
p106-1	0~20	1.282 1	0.541 6	0.115 6	0.622 9	0.712 2	3.133 8	0.550 5
p106-2	20~40	0.571 5	0.594 1	0.110 3	0.630 6	0.685 8	2.043 9	0.609 2
p106-3	40~60	0.909 1	0.755 6	0.144 8	0.419 6	0.711 1	2.330 8	0.354 7
p106-4	60~80	0.323 5	0.555 3	0.060 7	0.700 0	0.341 3	1.753 5	0.139 3
p106-5	80~100	0.203 7	0.255 8	0.024 5	0.866 7	0.157 9	1.022 6	0.194 3
p106-6	100~120	0.261 6	0.187 7	0.022 1	0.605 6	0.155 3	1.235 7	0.137 1
p106-7	120~140	0.242 4	0.273 6	0.020 9	0.217 4	0.153 6	0.688 6	0.125 8
p106-8	140~160	0.186 3	0.180 3	0.022 3	0.204 2	0.098 4	0.895 7	0.121 2
p106-9	160~180	0.267 5	0.220 5	0.021 3	0.129 2	0.105 5	0.799 6	0.110 6
平均值		0.472 0	0.396 1	0.060 3	0.488 5	0.346 8	1.544 9	0.260 3

2.5 林地垂直剖面土壤重金属来源分析

2.5.1 富集因子

采用 Dantu^[20] 的方法来确定土壤重金属的富集因子 (enrichment factor, EF). 富集因子可以用来区分自然与人为重金属污染的来源, 并且确定人为污染的影响程度^[21]. 根据 Turekian 等^[22] 的研究, 以 Fe 作为参考元素, 福建省土壤背景值^[10] 作为背景值, EF 可采用式(3)进行计算.

$$EF = \frac{(C_i/C_{Fe})_s}{(C_i/C_{Fe})_b} \quad (3)$$

式中, EF 为元素的富集因子; $(C_i/C_{Fe})_s$ 为每个剖面深度重金属与 Fe 的含量比; $(C_i/C_{Fe})_b$ 为背景值的比值, 根据 Ali 等^[23] 的研究, 将土壤分为七类, 分级标准如下: EF < 1 表示无富集, EF 为 1~3 表示轻微

富集, EF 为 3~5 表示中度富集, EF 为 5~10 表示中度至严重富集, EF 为 10~25 表示严重富集, EF 为 26~50 表示非常严重富集, EF > 50 表示极其严重富集.

EF 的计算结果如表 5 所示, Ni 的富集因子随深度变化不大, 为轻微富集, 表明其受到的人为扰动不明显. 其余金属均呈现出表层富集因子较大, 底层较低的特点, 80~180 cm 深度均为无富集到轻微富集, Zn 在 0~60 cm 深度, Pb、Mn 和 Sr 在 60~80 cm 深度为中度富集. 在 0~60 cm 深度, Pb 和 Mn 为中度至严重富集, Sr 为严重富集, 因此认为 Cr、Ni、Cu 主要为自然源, 可能与该区域土壤的成土背景有关; Pb、Sr、Mn、Zn 则很可能受到外来的人为污染的影响.

表 5 泉州林地垂直剖面土壤重金属富集因子

Table 5 EFs of heavy metals in the soil profile of the woodland in Quanzhou

样品编号	深度/cm	EF						
		Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Sr	Zn
p106-1	0~20	1.41	2.58	5.02	2.28	6.84	17.6	4.84
p106-2	20~40	1.74	2.49	5.70	2.47	7.39	19.5	4.68
p106-3	40~60	1.56	2.44	5.08	2.09	7.23	18.9	3.96
p106-4	60~80	2.03	1.53	3.26	2.54	3.00	4.61	2.53
p106-5	80~100	1.57	1.14	0.86	2.99	1.43	1.53	1.44
p106-6	100~120	1.30	1.04	0.69	2.76	1.42	1.41	1.36
p106-7	120~140	1.02	0.87	0.58	2.05	1.38	1.23	1.08
p106-8	140~160	1.15	0.92	0.56	2.26	1.57	1.07	1.17
p106-9	160~180	1.08	0.87	0.47	2.17	1.43	1.00	1.15

2.5.2 因子分析

为进一步分析林地剖面土壤重金属的污染源,采用因子分析法^[24]进行污染源解析. KMO 和 Bartlett 球形度检验结果表明,标准化后的重金属含量数据适宜做因子分析. 分析结果如图 3 所示,3 个因子的累计方差贡献为 98.3%,分别可以解释总方差的 60.3%、22.3% 和 15.7%. Fe、Cu、Cr 和 Ni 在因子 1 上具有较高的正载荷,可能具有相同的来源,这些重金属元素含量接近或小于背景值,因此主要受到土壤母质的影响,为自然来源;Pb、Mn 和 Sr 在因子 2 上具有较高的正载荷,其中, Sr 和 Mn 都在因子 1 上具有较高的负载荷,说明其来源为非母质因素. Zn 在因子 3 上具有较高的正载荷, Zn 普遍存在于化肥和农药中^[25,26], 采样点附近为泉州市红星农场,因此,该因子可能受到农业生产的影响.

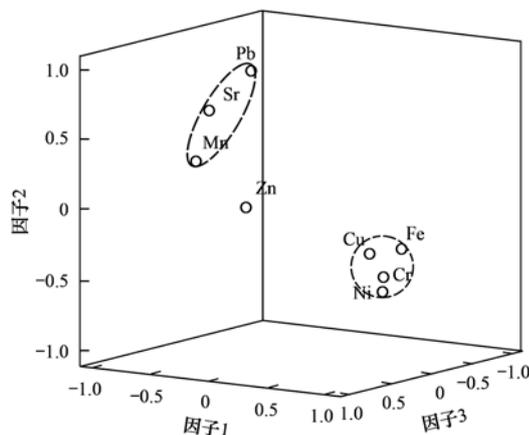


图3 泉州林地垂直剖面土壤重金属因子分析载荷图

Fig. 3 Varimax rotated factor loading of the soil profile of the woodland in Quanzhou

2.5.3 铅同位素示踪研究

由于铅同位素在次生环境中不产生同位素馏,其同位素组成主要受源区初始铅含量及放射性钍、钷衰变反应制约,Pb 同位素的这种“指纹”特征

可很好地应用于环境污染源解析研究^[27,28].

(1) 铅同位素组成 总铅同位素组成、酸可溶相铅同位素组成和残渣态铅同位素组成剖面变化如图 4 所示.

由图 4 可知, $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 分布的比较分散,表明土壤样品中的 Pb 来源复杂^[29]. 一般认为,自然源的 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 较高 (>1.20),人为源的 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 较低 ($0.96 \sim 1.20$)^[30],泉州林地垂直剖面土壤的 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 比值均小于 1.20,且随着土壤深度的增加略有变化,但是总体上最大值出现在底层,最小值出现在表层,表明林地表层土壤受到了人为铅源的影响,并且人为来源的铅已由土壤表层向下迁移至一定深度. 与前述 Pb 的形态分析结论一致.

不同形态的重金属在环境中表现出不同的活性和可移动性. 在污染的情况下,重金属主要以活性态存在,酸可溶相铅同位素的分布可以反映土壤中是否有外来铅的加入^[31,32]. 泉州市林地垂直剖面土壤的酸可溶相铅同位素组成 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/(^{206}\text{Pb} + ^{207}\text{Pb})$, $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$, $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$, $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 的变化范围分别为: 1.170 9 ~ 1.189 3, 1.105 4 ~ 1.205 0, 2.044 0 ~ 2.227 0, 18.391 ~ 18.840, 15.647 ~ 16.061, 38.419 ~ 41.794. 由图 4 所示,酸可溶相 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 总体上相对总量有明显的变小趋势,表明土壤剖面受到一定程度人为源的影响.

陈成祥等^[32]和 Li 等^[33]均指出,残渣态 Pb 同位素组成不受外来污染的影响,其同位素比值相对于总量 Pb 同位素比值更具有地域特征,可以反映 Pb 本身的自然地球化学背景. 本研究得到的残渣态 Pb 同位素比值与陈成祥等^[32]研究中所得出的福建地区残渣态 Pb 同位素比值结果 ($^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$: 1.187 ~ 1.216, $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$: 2.026 3 ~ 2.083 8) 基本一致.

(2) 垂直剖面土壤中铅的来源 母质层、汽车尾气尘和燃煤等端元组分的 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 和 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$

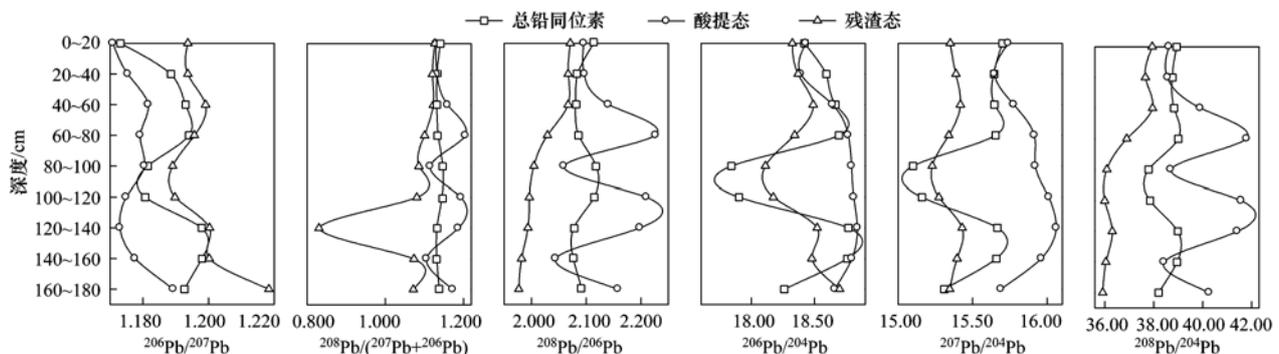


图4 垂直剖面土壤 Pb 同位素组成

Fig. 4 Pb isotopic ratios in the soil profile

的比值^[34]范围较大,能有效区分不同污染源,因此,可用其来追踪林地垂直剖面土壤铅的来源. 不同剖面深度土壤样品与端元组分的(²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb)-(²⁰⁷Pb/²⁰⁴Pb)分布如图5所示.

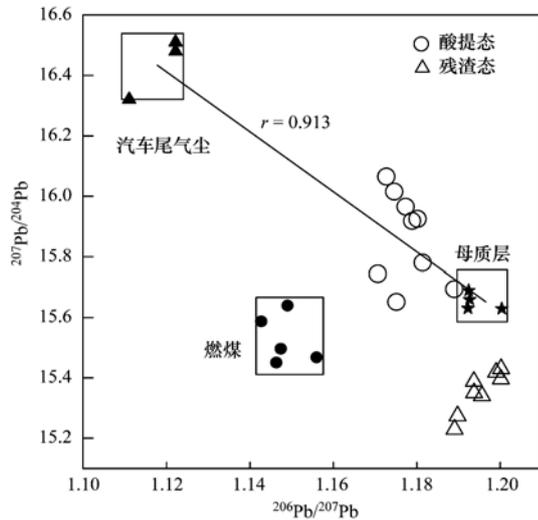


图5 垂直剖面土壤与端元物质铅同位素组成对比
Fig. 5 Composition of lead isotopes in the soil profiles and the known sources

酸可溶相 Pb 同位素比值落在汽车尾气尘和母质层之间,且与二者的铅同位素组成具有较好的相关关系($r = 0.913$). 因此,垂直剖面土壤铅来源可以看成汽车尾气尘和母质层两个源的混合. 采用母质层和汽车尾气尘的²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb比值,运用铅同位素二元模型^[35],计算出不同铅源的相对贡献率,结果如图6所示.

母质层和汽车尾气尘的贡献率平均值分别为 85.14% (62.53% ~ 98.36%) 和 14.86% (1.640%

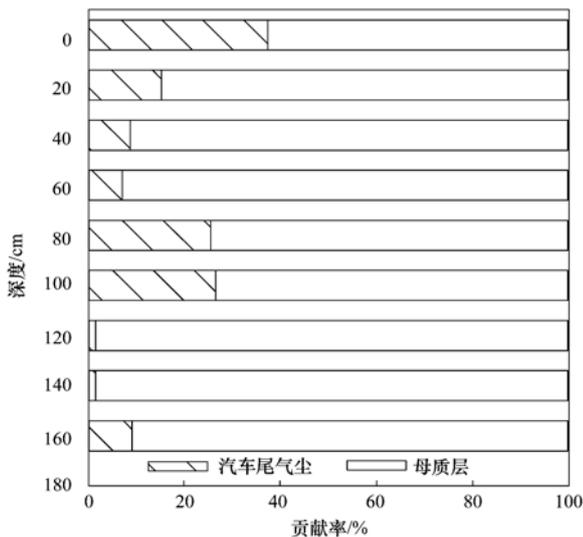


图6 垂直剖面土壤污染源贡献率

Fig. 6 Contribution of main pollution sources to soil profile

~37.47%),表明林地剖面土壤中铅的主要来源为母质层,贡献率的剖面变化总体呈现为土壤表层汽车尾气尘最高,底层最低,中间呈现波动,主要与林木根部的传输导致上下分布混合有关^[36].

2.5.4 锶同位素示踪

剖面土壤的(⁸⁷Sr/⁸⁶Sr)-Sr 分布如图7所示,剖面土壤样品与燃煤相距较远,因此 Sr 并未受到燃煤的影响. 有研究表明,人为源具有较低的⁸⁷Sr/⁸⁶Sr值(≤ 0.711721)^[11]. 剖面深层土壤(80~180 cm)样品具有较高的⁸⁷Sr/⁸⁶Sr, Sr 的主要来源为成土母质,并未受到人为污染的影响. 0~60 cm 深度剖面土壤靠近汽车尾气尘,表明表层土壤 Sr 受到汽车尾气尘的影响.

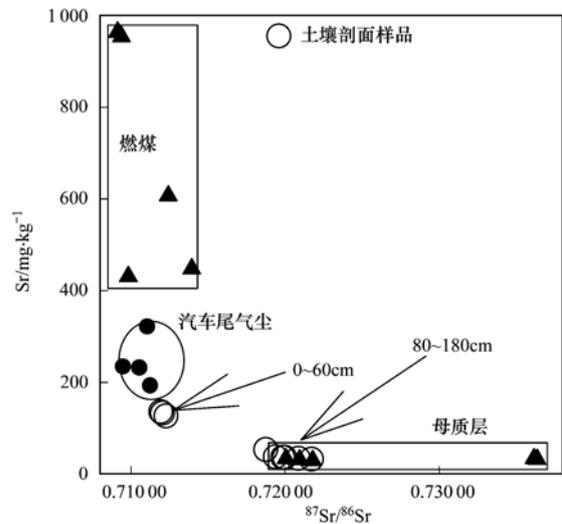


图7 垂直剖面土壤与端元物质的⁸⁷Sr/⁸⁶Sr-1/Sr 关系
Fig. 7 Plot of ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr-1/Sr of the profile soils and the known sources

2.5.5 铅锶同位素联合示踪

联合两种同位素体系(²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb和⁸⁷Sr/⁸⁶Sr)进行污染源的示踪(图8). 0~60 cm 深度的同位素组成靠近汽车尾气尘,60 cm 以下深度土壤样品的同位素组成靠近母质层,与铅、锶同位素分析结果一致. 采样点东南面 2 km 处为沈海高速,车流量较大,因此,林地土壤重金属含量受到了汽车尾气尘的影响,并且有向土壤底层分布的趋势,应引起重视.

3 讨论

3.1 重金属污染的评价方法

内梅罗综合污染指数法是一种兼顾极值或突出最大值的计权型多因子环境质量指数,综合反映了在重金属污染下的土壤环境质量,然而,按土壤中重金属的总量进行评价仅可一般地了解重金属污染程

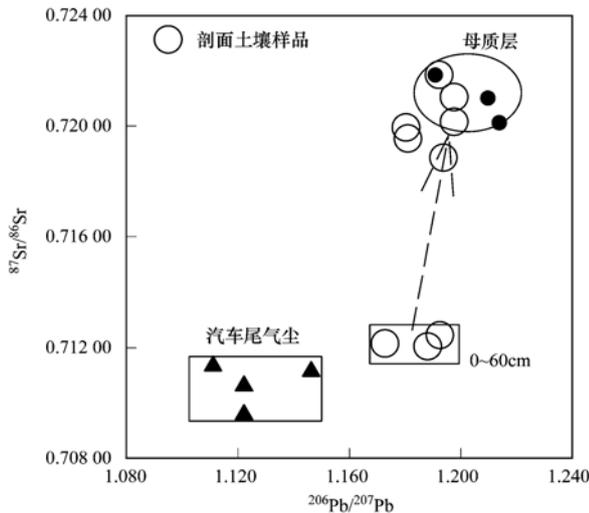


图8 剖面土壤($^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$)-($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$)同位素联合示踪

Fig. 8 Coupling both ($^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$)-($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$)

ratios brings more constraints on the origin of the soil profile

度,难以说明土壤中重金属的化学活性和生物利用性.次生相与原生相比值法扣除了土壤母质对重金属浓度的控制,能较为客观地反映人类活动对土壤环境的影响程度^[37].本研究采用以上两种方法从不同角度对土壤重金属进行了评价,两种方法互相补充,能够体现研究区域的重金属的污染状况.

3.2 污染源的解析方法

多元统计分析法(因子分析法、主成分分析法、聚类分析法等)采用统计学的方法对土壤中重金属元素进行统计学分析,方法简便,但是不能对土壤重金属多源体系进行有效辨析,难以对污染贡献做出恰当评价,在实际应用中受到一定限制^[38].同位素示踪法通过测定样品中同位素的比率并与污染区域的潜在来源中同位素组成进行对比,可以查明污染来源.当污染是由多种来源造成,可根据其同位素组成计算污染来源各自的贡献率^[39].

本研究中,富集因子仅通过重金属的富集程度区分人为及自然污染;因子分析则针对剖面土壤中的全部重金属元素进行污染源解析;铅锶同位素的示踪分析则将 Pb、Sr 的污染来源及贡献率进行了定量判定.

3.3 林地垂直剖面土壤中重金属的迁移特征

结合重金属含量的剖面变化可知,Cu、Cr、Ni、Fe 变化趋势一致,表现为表层低,底层高的特点,表明此几种重金属受到人为污染的影响较轻,与富集因子和因子分析的结果一致. Pb、Mn、Zn 和 Sr 的变化趋势基本一致,表现出明显的表聚性,重金属含量在 0~60 cm 深度明显高于 60~180 cm 深度,而

同位素示踪结果也表明,从底层到表层土壤的同位素组成由母质层逐渐向汽车尾气尘方向飘移,说明土壤底层其受人为活动影响较少,以自然来源为主.

4 结论

(1)根据重金属总量的分析,林地的污染程度相对于其他用地类型较轻,根据内梅罗综合污染指数法的评价结果,Sr 为泉州市林地土壤重金属的主要污染因子,在 0~60 cm 深度污染最重;

(2)重金属形态分析结果表明,除 Pb 以外的其他重金属均主要存在于残渣态,潜在生物毒性相对较小.随着剖面深度的变化,重金属在底层土壤中 F4 态的比例最大,表层最小,表明土壤底层并未受到人为污染的影响;

(3)次生相与原生相比值法的评价结果表明,Pb 的活性最强,对土壤的潜在危害最大.

(4)富集因子及因子分析结果表明,林地剖面土壤中重金属 Fe、Cu、Cr 和 Ni 主要来源为自然源,Pb、Sr、Mn、Zn 为人为来源;

(5)林地垂直剖面土壤与潜在污染源的铅锶同位素组成分析结果表明,泉州市林地土壤中,铅和锶的主要来源为汽车尾气尘和土壤母质层.利用铅同位素二元混合模型计算表明,母质层的贡献率为 85.14% (62.53%~98.36%),汽车尾气尘的贡献率平均值为 14.86% (1.640%~37.47%).铅锶同位素联合示踪结果与铅锶同位素示踪及多元统计分析结果一致.

参考文献:

- [1] 周垂帆,李莹殷,殷丹阳,等.林地重金属污染来源解析[J].世界林业研究,2015,28(5):15-21.
Zhou C F, Li Y Y, Yin D Y, et al. A review on heavy metal contamination on forest land [J]. World Forestry Research, 2015, 28(5): 15-21.
- [2] 于小俸,唐巍,胡玉.壶瓶山自然保护区土壤重金属含量的空间分布及污染评价[J].中国农学通报,2010,26(11):358-361.
Yu X F, Tang Y, Hu Y. Distribution of soil heavy metal and pollution evaluation in Hu ping shan natural protectorate [J]. Chinese Agricultural Science Bulletin, 2010, 26(11): 358-361.
- [3] 丁园,余小芬,赵幅平,等.庐山不同海拔森林土壤中重金属含量分析[J].环境科学与技术,2013,36(6):191-194.
Ding Y, Yu X F, Zhao G P, et al. Analysis of heavy metals in soil of forests of Mt. Lushan at different altitudes [J]. Environmental Science & Technology, 2013, 36(6): 191-194.
- [4] 于瑞莲,胡恭任,林燕萍,等.泉州城市表层土壤中金属元素来源分析[J].矿物学报,2012,32(1):156-165.
Yu R L, Hu G R, Lin Y P, et al. Sources of metals in the urban topsoil of Quanzhou City [J]. Acta Mineralogica Sinica, 2012,

- 32(1): 156-165.
- [5] 乐翠华. 泉州市污水再生回用的可行性分析研究[D]. 厦门: 厦门大学, 2008.
Le C H. The study on the availability of the reuse of reclaimed water in Quanzhou City [D]. Xiamen: Xiamen University, 2013.
- [6] Cuong D T, Obbard J P. Metal speciation in coastal marine sediments from Singapore using a modified BCR-sequential extraction procedure[J]. *Applied Geochemistry*, 2006, **21**(8): 1335-1346.
- [7] 何海星, 于瑞莲, 胡恭任, 等. 厦门西港近岸沉积物重金属污染历史及源解析[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(4): 1045-1051.
He H X, Yu R L, Hu G R, *et al.* Pollution history and source of heavy metals in coastal sediments from Xiamen Western Bay[J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(4): 1045-1051.
- [8] 陈国防, 蔡艺艺, 陈燕华, 等. 泉州市丰泽区耕地土壤养分状况分析[J]. *现代农业科技*, 2014, (16): 223-224, 226.
- [9] 孙花, 谭长银, 黄道友, 等. 土壤有机质对土壤重金属积累、有效性及形态的影响[J]. *湖南师范大学自然科学学报*, 2011, **34**(4): 82-87.
Sun H, Tan C Y, Huang D Y, *et al.* Effects of soil organic matter on the accumulation, availability and chemical speciation of heavy metal[J]. *Journal of Natural Science of Hunan Normal University*, 2011, **34**(4): 82-87.
- [10] 陈振金, 陈春秀, 刘用清, 等. 福建省土壤元素背景值及其特征[J]. *中国环境监测*, 1992, **8**(3): 107-110.
- [11] 于瑞莲, 张伟芳, 胡恭任, 等. 晋江河口沉积物重金属污染历史与来源[J]. *环境科学研究*, 2015, **28**(6): 907-914.
Yu R L, Zhang W F, Hu G R, *et al.* Pollution history and source analysis of heavy metals in sediments from Jinjiang River Estuary [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2015, **28**(6): 907-914.
- [12] Ure A M, Quevauviller P, Muntau H, *et al.* Speciation of heavy metals in soils and sediments. An account of the improvement and harmonization of extraction techniques undertaken under the auspices of the BCR of the commission of the European Communities [J]. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 1993, **51**(1-4): 135-151.
- [13] 吴攀, 刘丛强, 张国平, 等. 碳酸盐岩矿区河流沉积物中重金属的形态特征及潜在生态风险[J]. *农村生态环境*, 2004, **20**(3): 28-31, 36.
Wu P, Liu C Q, Zhang G P, *et al.* Chemical forms and ecological risks of heavy metals in river sediment at carbonate mining area[J]. *Rural Eco-Environment*, 2004, **20**(3): 28-31, 36.
- [14] 卢少勇, 焦伟, 金相灿, 等. 滇池内湖滨带沉积物中重金属形态分析[J]. *中国环境科学*, 2010, **30**(4): 487-492.
Lu S Y, Jiao W, Jin X C, *et al.* Speciation of heavy metals in sediments from inner lakeside belt of Lake Dianchi [J]. *China Environmental Science*, 2010, **30**(4): 487-492.
- [15] de Andrade Passos E, Alves J C, dos Santos I S, *et al.* Assessment of trace metals contamination in estuarine sediments using a sequential extraction technique and principal component analysis[J]. *Microchemical Journal*, 2010, **96**(1): 50-57.
- [16] Teutsch N, Erel Y, Halicz L, *et al.* Distribution of natural and anthropogenic lead in Mediterranean soils [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2001, **65**(17): 2853-2864.
- [17] 石元值, 韩文炎, 马立锋, 等. 不同茶园土壤中外源铅的形态转化及其生物有效性[J]. *农业环境科学学报*, 2010, **29**(6): 1117-1124.
Shi Y Z, Han W Y, Ma L F, *et al.* Influence of exogenous lead on change of lead forms and bioavailability in different tea garden soils[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2010, **29**(6): 1117-1124.
- [18] 吴洋, 杨军, 周小勇, 等. 广西都安县耕地土壤重金属污染风险评价[J]. *环境科学*, 2015, **36**(8): 2964-2971.
Wu Y, Yang J, Zhou X Y, *et al.* Risk assessment of heavy metal contamination in farmland soil in Du'an Autonomous County of Guangxi Zhuang Autonomous Region, China[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(8): 2964-2971.
- [19] 陈静生, 董林, 邓宝山, 等. 铜在沉积物各相中分配的实验模拟与数值模拟研究——以鄱阳湖为例[J]. *环境科学学报*, 1987, **7**(2): 140-149.
Chen J S, Dong L, Deng B S, *et al.* Modeling study on copper partitioning in sediments, a case study of Poyang lake [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 1987, **7**(2): 140-149.
- [20] Dantu S. Heavy metals concentration in soils of southeastern part of Ranga Reddy district, Andhra Pradesh, India [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2009, **149**(1-4): 213-222.
- [21] Ye C, Li S Y, Zhang Y L, Zhang Q. Assessing soil heavy metal pollution in the water-level-fluctuation zone of the Three Gorges Reservoir, China [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, **191**(1-3): 366-372.
- [22] Turekian K K, Wedepohl K H. Distribution of the elements in some major units of the earth's crust [J]. *Geological Society of America Bulletin*, 1961, **72**(2): 175-192.
- [23] Ali Z, Malik R, Shinwari Z K, *et al.* Enrichment, risk assessment, and statistical apportionment of heavy metals in tannery-affected areas [J]. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 2015, **12**(2): 537-550.
- [24] Ha H, Olson J R, Bian L, *et al.* Analysis of heavy metal sources in soil using Kriging interpolation on principal components [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(9): 4999-5007.
- [25] Gray C W, McLaren R G, Roberts A H C. The effect of long-term phosphatic fertiliser applications on the amounts and forms of cadmium in soils under pasture in New Zealand [J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 1999, **54**(3): 267-277.
- [26] Chen T, Liu X M, Zhu M Z, *et al.* Identification of trace element sources and associated risk assessment in vegetable soils of the urban-rural transitional area of Hangzhou, China [J]. *Environmental Pollution*, 2008, **151**(1): 67-78.
- [27] Kayhanian M. Trend and concentrations of legacy lead (Pb) in highway runoff [J]. *Environmental Pollution*, 2012, **160**: 169-177.
- [28] Walraven N, Van Os B J H, Klaver G T, *et al.* The lead (Pb) isotope signature, behaviour and fate of traffic-related lead pollution in roadside soils in The Netherlands [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **472**: 888-900.
- [29] Mukai H, Tanaka A, Fujii T, *et al.* Regional characteristics of Sulfur and lead isotope ratios in the atmosphere at several Chinese Urban Sites [J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, **35**

- (6): 1064-1071.
- [30] Sturges W T, Barrie L A. Lead 206/207 isotope ratios in the atmosphere of North America as tracers of US and Canadian emissions[J]. *Nature*, 1987, **329**(6135): 144-146.
- [31] 路远发, 杨红梅, 周国华, 等. 杭州市土壤铅污染的铅同位素示踪研究[J]. *第四纪研究*, 2005, **25**(3): 355-362.
Lu Y F, Yang H M, Zhou G H, *et al.* Lead isotopes in soil as a tracer of environmental lead pollution in Hangzhou [J]. *Quaternary Sciences*, 2005, **25**(3): 355-362.
- [32] 陈成祥, 庄峙厦, 刘海波, 等. 不同赋存形态土壤铅同位素比值用于判别地域性差异的研究[J]. *分析化学*, 2007, **35**(1): 103-105.
Chen C X, Zhuang Z X, Liu H B, *et al.* Source differentiation by lead isotope ratios in total digests of soil fractions and residual fractions[J]. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 2007, **35**(1): 103-105.
- [33] Li X D, Shen Z G, Qai O W H, *et al.* Chemical Forms of Pb, Zn and Cu in the Sediment profiles of the Pearl River Estuary [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2001, **42**(3): 215-223.
- [34] 胡恭任, 于瑞莲, 郑志敏. 铅稳定同位素在沉积物重金属污染溯源中的应用[J]. *环境科学学报*, 2013, **33**(5): 1326-1331.
Hu G R, Yu R L, Zheng Z M. Application of stable lead isotopes in tracing heavy-metal pollution sources in the sediments [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(5): 1326-1331.
- [35] Bird G, Brewer P A, Macklin M G, *et al.* Quantifying sediment-associated metal dispersal using Pb isotopes: application of binary and multivariate mixing models at the catchment-scale [J]. *Environmental Pollution*, 2010, **158**(6): 2158-2169.
- [36] 方晰, 田大伦, 陈骏超, 等. 重金属元素在樟树人工林中的累积与迁移[J]. *安全与环境学报*, 2006, **6**(1): 64-68.
Fang X, Tian D L, Chen J C, *et al.* Accumulation and transportation of heavy metal elements in *Cinnamomum camphora* Plantation[J]. *Journal of Safety and Environment*, 2006, **6**(1): 64-68.
- [37] 丁喜桂, 叶思源, 高宗军. 近海沉积物重金属污染评价方法[J]. *海洋地质志*, 2005, **21**(8): 31-36.
Ding X G, Ye S Y, Gao Z J. Methods of heavy metal pollution evaluation for offshore sediments [J]. *Marine Geology Letters*, 2005, **21**(8): 31-36.
- [38] 于瑞莲, 胡恭任, 袁星, 等. 同位素示踪技术在沉积物重金属污染溯源中的应用[J]. *地球与环境*, 2008, **36**(3): 245-250.
Yu R L, Hu G R, Yuan X, *et al.* Application of isotope tracing technique in the recognition of pollution sources by heavy metals in sediments[J]. *Earth and Environment*, 2008, **36**(3): 245-250.
- [39] Cheng H F, Hu Y A. Lead (Pb) isotopic fingerprinting and its applications in lead pollution studies in China: a review [J]. *Environmental Pollution*, 2010, **158**(5): 1134-1146.

CONTENTS

Dry and Bulk Nitrogen Deposition in Suburbs of Xining City	XU Wen, JIN Xin, LUO Shao-hui, <i>et al.</i> (1279)
Day-Night Variation and Source Apportionment of Carbonaceous Aerosols in PM ₁₀ During Spring and Summer of Lanzhou	MA Li, YU Ye, WANG Bo, <i>et al.</i> (1289)
Characteristics of the Size Distribution of Water Soluble Inorganic Ions in Sanya, Hainan	WANG Lu, LIU Zi-rui, WEN Tian-xue, <i>et al.</i> (1298)
Pollution Characteristics of NH ₄ ⁺ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ in PM _{2.5} and Their Precursor Gases During 2015 in an Urban Area of Beijing	DING Meng-meng, ZHOU Jian-nan, LIU Bao-xian, <i>et al.</i> (1307)
Pollution Characteristics of PCDD/Fs in Ambient Air and Exposure Risk Assessment Around a Municipal Solid Waste Incinerator in Beijing	QI Li, REN Yue, LIU Ai-min, <i>et al.</i> (1317)
Community Characteristics of Cultivable Bacteria in Fine Particles (PM _{2.5}) of Beijing and Baoding	HU Ya-dong, MA An-zhou, LÜ Peng-yi, <i>et al.</i> (1327)
Emission Characteristics of Vehicle Exhaust in Artery and Collector Roads in Nanjing Based on Real-time Traffic Data	LI Xiao-yu, WU Lin, ZOU Chao, <i>et al.</i> (1340)
Catalytic Combustion of Soot Particulates over Rare Earth Pyrochlore Oxides Doped with Transition Metals	LI Xi-feng, SUN Yu-qi, WANG Zhong-peng, <i>et al.</i> (1348)
Water Quality Analysis of Beijing Segment of South-to-North Water Diversion Middle Route Project	XU Hua-shan, ZHAO Lei, SUN Hao-su, <i>et al.</i> (1357)
Hanfeng Pre-reservoir Commissioning Time Variation Feature of the Hydrology and Water Quality in Three Gorges Reservoir	YANG Bing, HE Bing-hui, WANG De-bao (1366)
Modeling of Water Quality Response to Land-use Patterns in Taizi River Basin Based on Partial Least Squares	LI Lin-lin, ZHANG Yi-zhang, TANG Chang-yuan, <i>et al.</i> (1376)
Distribution Characteristics of Water Temperature and Water Quality of Fuxian Lake During Thermal Stratification Period in Summer	WANG Lin-jie, YU Hui, NIU Yong, <i>et al.</i> (1384)
Vertical Stratification Characteristics of Dissolved Oxygen and Phytoplankton in Thousand-Island Lake and Their Influencing Factors	YU Yan, LIU De-fu, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (1393)
Community Structure Characteristics of Eukaryotic Planktonic Algae in Liaohu River Through High-throughput Sequencing	WANG Jing-qi, WANG Shu-ping, ZHANG Yuan, <i>et al.</i> (1403)
Effects of Coastal Organic Pollution on Bacterioplankton Community in Sanmen Bay	DAI Wen-fang, GUO Yong-hao, YU Wei-na, <i>et al.</i> (1414)
Nitrate Source Identification and Nitrification-denitrification at the Sediment-water Interface	JIN Zan-fang, GONG Jia-lin, SHI Yi-li, <i>et al.</i> (1423)
Residues of Organochlorine Pesticides (OCPs) in Water and Sediments from Nansha Mangrove Wetland	DING Yang, HUANG Huan-fang, LI Hui, <i>et al.</i> (1431)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals from River Network Sediment in Western Area of Taihu Lake	BIAN Bo, ZHOU Yan, ZHANG Qin (1442)
Efficacy of Phoslock® on the Reduction of Sediment Phosphorus Release in West Lake, Hangzhou, China	ZHU Guang-wei, LI Jing, ZHU Meng-yuan, <i>et al.</i> (1451)
Identification and PAC Adsorption of Foulants Responsible for Irreversible Fouling During Ultrafiltration of Dongjiang River Water	YANG Hai-yan, WANG Can, YAN Zhong-sen, <i>et al.</i> (1460)
Efficiency and Kinetics of Triclosan Degradation in Aqueous Solution by UV/Sodium Persulfate	LI Qing-song, LI Xue-yan, YAO Ning-bo, <i>et al.</i> (1467)
Influencing Factors on the Degradation of PFOS Through VUV-SO ₂ ⁻	HAN Hui-li, WANG Hong-jie, DONG Wen-yi (1477)
Simultaneous Photocatalytic Reduction of Cr(VI) and Oxidation of SSA by Carbon Nitride	LI Li-li, CHEN Cui-hai, LAN Hua-chun, <i>et al.</i> (1483)
Modification of Diatomite by Zirconium and Its Performance in Phosphate Removal from Water	FAN Yi, WANG Zhe, ZHAO Lian-qin, <i>et al.</i> (1490)
Reducing Effect of Three Disinfection Technologies for Sulfonamides Resistance Genes	ZHENG Ji, ZHOU Zhen-chao, CHEN Fang, <i>et al.</i> (1497)
Removal of Estrogenic Effect by Typical Domestic Wastewater Treatment Processes	ZHANG Qiu-ya, MA Xiao-yan, WANG Xiao-chang, <i>et al.</i> (1506)
Effect of SRT on Stability of Yeast-SBR in Treating Oil-containing Wastewater	LÜ Wen-zhou, ZHANG Shu-lin, QIAO Yu-xiang, <i>et al.</i> (1513)
Degradation of the Disperse Dye Neocron Black(NB) by Biological Treatment	YANG Bo, DING Feng-you, XU Hui, <i>et al.</i> (1520)
Function of Polyphosphate Kinase Gene in Biological Phosphate Removal During the Wastewater Treatment Process	NAN Ya-ping, ZHOU Guo-biao, YUAN Lin-jiang (1529)
Short-cut Nitrification Recovery and Its Transformation into CANON Process in a Biofilm Reactor	FU Kun-ming, ZHOU Hou-tian, SU Xue-ying, <i>et al.</i> (1536)
Nitrogen Removal Characteristics and Diversity of Microbial Community in ANAMMOX Reactor	CAO Yan, WANG Tong-yu, QIN Yu-jie, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Environment Adjustment Layers on Nitrogen Transformation in Anaerobic Bioreactor Landfills	HE Zheng-kun, SONG Bo-yu, ZHU Nan-wen, <i>et al.</i> (1551)
Characteristics of Anaerobic Methane Removal Coupled to Fe(III) Reduction in Aged Refuse	WANG Li-li, HE Ting, LONG Yan, <i>et al.</i> (1558)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Tracing Sources by Pb & Sr Isotope in the Soil Profile of Woodland in Quanzhou	SUN Jing-wei, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (1566)
Accumulation and Migration Characteristics in Soil Profiles and Bioavailability of Heavy Metals from Livestock Manure	HE Meng-yuan, DONG Tong-xi, RU Shu-hua, <i>et al.</i> (1576)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Agricultural Soils from Shandong	GE Wei, CHENG Qi-qi, CHAI Chao, <i>et al.</i> (1587)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Organophosphorus Pesticides in Typical Soil Environment of Jiangnan Plain	WANG Jian-wei, ZHANG Cai-xiang, PAN Zhen-zhen, <i>et al.</i> (1597)
Characteristics and Influencing Factors of Biologically-based Phosphorus Fractions in the Farmland Soil	CAI Guan, HU Ya-jun, WANG Ting-ting, <i>et al.</i> (1606)
Effect of Straw Application on the Dynamics of Exogenous Nitrogen and Microbial Activity in Paddy Soil	CHEN Shan, DING Xian-qing, ZHU Zhen-ke, <i>et al.</i> (1613)
Effects of Biochar on Surface Albedo and Soil Respiration in Suburban Agricultural Soil	ZHANG Yang-yang, HU Xue-yu, ZOU Juan, <i>et al.</i> (1622)
N ₂ O Consumption Ability of Submerged Paddy Soil and the Regulatory Mechanism	WANG Ling, XING Xiao-yi, QIN Hong-ling, <i>et al.</i> (1633)
Non-CO ₂ Greenhouse Gas Release from Different Biological Wastewater Treatment Processes	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, LIU Wen-bo, <i>et al.</i> (1640)
Effect of Application of Sewage Sludge Composts on Greenhouse Gas Emissions in Soil	YANG Yu-han, YI Jian-ting, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (1647)
Effect of Nano Zeolites on pH, CEC in Soil and Cd Fractions in Plant and Soil at Different Cadmium Levels	CHI Sun-lin, XU Wei-hong, XIONG Shi-juan, <i>et al.</i> (1654)
Dynamic Differences of Uptake and Translocation of Exogenous Selenium by Different Crops and Its Mechanism	PENG Qin, LI Zhe, LIANG Dong-li, <i>et al.</i> (1667)
Alleviation Effects of Exogenous Melatonin on Ni Toxicity in Rice Seedlings	LIU Shi-xiang, HUANG Yi-zong, LUO Ze-jiao, <i>et al.</i> (1675)
Forms Distribution and Ecotoxicity of Three Forms of Sulfonamides in Root-Soil Interface of Maize	JIN Cai-xia, SI Xiao-wei, WANG Wan-feng, <i>et al.</i> (1683)
Effect of Sediments on Bioaccumulation of Mercury in Fish Body in the Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir Area	SUN Song, LI Chu-xian, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (1689)
Bioaccumulation and Correlation of Heavy Metals in Human Hairs From Urban and Rural Areas of Chongqing	HE Ming-jing, LI Qi, WANG Deng-xiang, <i>et al.</i> (1697)
Microbial Community Structure and Diversity in Cellar Water by 16S rRNA High-throughput Sequencing	YANG Hao, ZHANG Guo-zhen, YANG Xiao-ni, <i>et al.</i> (1704)
Performance Improvement of Microbial Fuel Cell with Polyaniline Doped Graphene Anode	HUANG Li-hua, LI Xiu-fen, REN Yue-ping, <i>et al.</i> (1717)
Brief Introduction of Pollution Sites Remediation and Risk Assessment and Its Policy Making in United States	RONG Yue (1726)