

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第3期

Vol.39 No.3

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

长三角典型站点冬季大气 PM _{2.5} 中 OC、EC 污染特征	康晖, 朱彬, 王红磊, 施双双 (961)
南京北郊能见度变化中二次无机盐消光的重要作用	于超, 于兴娜, 赵天良, 张蕾, 马国煦, 王咏薇 (972)
常州夏冬季 PM _{2.5} 中无机组分昼夜变化特征与来源解析	刘佳澍, 顾远, 马帅帅, 苏亚兰, 叶招莲 (980)
天津市春季道路降尘 PM _{2.5} 和 PM ₁₀ 中的元素特征	王士宝, 姬亚芹, 李树立, 张伟, 张蕾 (990)
北京、新乡夏季大气颗粒物中重金属的粒径分布及人体健康风险评价	张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 王小颖, 杨帅, 许晓鹏, 王书亭, 谷超, 王梦蕾, 任浩, 张子洋, 闫广轩, 曹治国, 王跃思 (997)
山西省武乡县城大气 PM _{2.5} 痕量重金属的生态和健康风险分析	郭墨霞, 耿红, 张晋宏, 周欢, 彭妍, 翟帅莹, 李金磊, 陈雨杉 (1004)
隧道中机动车排放颗粒物及无机元素特征	李凤华, 张衍杰, 张静, 袁远, 吴琳, 毛洪钧 (1014)
河南省 2013 年大气氨排放清单建立及分布特征	王琛, 尹沙沙, 于世杰, 卫军华, 谷幸珂, 官密秘, 张瑞芹 (1023)
城市道路行道树池裸地扬尘排放特征	李贝贝, 秦建平, 祁丽荣, 杨涛, 曲松, 石爱军, 黄玉虎 (1031)
DOC 和 CDPF 对柴油公交车颗粒物组分影响	楼狄明, 耿小雨, 宋博, 谭丕强, 胡志远, 刘继跃 (1040)
南水北调中线工程总干渠河南段原水中消毒副产物前体物变化规律	黄飘逸, 徐斌, 郭东良 (1046)
广州市流溪河水体中 6 种内分泌干扰素时空分布特征与环境风险	樊静静, 王赛, 唐金鹏, 戴玉女, 王林, 龙胜兴, 何文祥, 刘帅磊, 王佳希, 杨扬 (1053)
西藏拉萨河流域河水主要离子化学特征及来源	张清华, 孙平安, 何师意, 文化, 刘明隆, 于爽 (1065)
太子河下游河流硝酸盐来源及其迁移转化过程	李艳利, 杨梓睿, 尹希杰, 孙伟 (1076)
海南岛北部海湾沉积物重金属来源、分布主控因素及生态风险评价	曾维特, 杨永鹏, 张东强, 刘兵, 张航飞, 吴多誉, 王晓林 (1085)
天津农田重金属污染特征分析及降雨沥浸影响	许萌萌, 刘爱凤, 师荣光, 蓝靖, 田永, 赵宗山 (1095)
太湖出入湖河道与湖体水质季节差异分析	查慧铭, 朱梦圆, 朱广伟, 杨周生, 许海, 沈睿杰, 钟春妮 (1102)
春季敏感时期三峡水库典型支流沉积物-水界面氮释放特性	李欣, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 苏青青, 吕林鹏, 王雄, 黄亚男, 吴庆 (1113)
不同湖泊入湖河流沉积物可转化态氮的空间分布及其影响因素	周睿, 袁旭音, Marip Ja Bawk, 于辉辉, 章琪, 唐豆豆 (1122)
水文气象因素对东南山区水库硅藻异常增殖的影响	孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽 (1129)
深水型水库热分层诱导水质及真菌种群结构垂向演替	商潘路, 陈胜男, 黄廷林, 张海涵, 康鹏亮, 王跃, 刘珍芳, 刘彤彤 (1141)
太湖竺山湾春季浮游细菌群落结构及影响因素	薛银刚, 刘菲, 孙萌, 江晓栋, 耿金菊, 滕加泉, 谢文理, 张皓, 陈心一 (1151)
分层型水源水库沉积物需氧量特性	苏露, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 文刚, 李扬, 陈家炜, 王晓江 (1159)
污水氮浓度和 NH ₄ ⁺ /NO ₃ ⁻ 比对粉绿狐尾藻去氮能力和植物体氮组分的影响	马永飞, 杨小珍, 赵小虎, 胡承孝, 谭启玲, 孙学成, 吴金水 (1167)
水体氮磷营养负荷对苦草净化能力和光合荧光特性的影响	周裔文, 许晓光, 韩睿明, 周晓红, 冯德友, 李致春, 王国祥 (1180)
化学预氧化耦合生物锰氧化对水中有机物的去除	菅之奥, 常洋洋, 王立新, 梁金松, 柏耀辉 (1188)
铜铁氧体法处理模拟染料废水	韩志勇, 韩昆, 郝昊天, 于建伟, 石宝友, 庄媛, 孔岩 (1195)
草酸根对 α-FeOOH 多相 UV-Fenton 催化能力的增效实验	苗笑增, 戴慧旺, 陈建新, 蒋柏泉, 龚炯 (1202)
生物质基纳米 HZO 杂化材料的研制及其除磷特性	邱慧, 秦智峰, 刘凤玲, 梁晨, 宋明霞, 许正文, 管益东 (1212)
铁锰氧化物/生物炭复合材料对水中硝酸根的吸附特性	郑晓青, 韦安磊, 张一璇, 史良干, 张潇 (1220)
PAAm/HACC 半互穿网络水凝胶的制备及其对水中腐殖酸的吸附性能	刘泽琨, 周少奇, 马福臻 (1233)
二氧化钛对地下水砷的吸附及再生回用	马文静, 阎莉, 张建锋 (1241)
一体式絮体-超滤工艺去除腐殖酸效能与机制	李文江, 于莉芳, 苗瑞, 马百文 (1248)
中国城镇污水处理厂温室气体排放时空分布特征	闫旭, 邱德志, 郭东丽, 齐星昊, 郑仕侃, 程轲, 孙剑辉, 刘建伟 (1256)
硝化耦合 CANON 的铁锰氮生物净化工艺启动与运行	李冬, 曹瑞华, 杨航, 王艳菊, 吕赛赛, 张杰 (1264)
纤维载体的生物膜 CANON 反应器的启动特性	顾澄伟, 陈方敏, 李祥, 黄勇, 尤星怡, 金润, 张文静, 董石语 (1272)
DO/NH ₄ ⁺ -N 实现短程硝化过程中生物膜特性	赵青, 卞伟, 李军, 王文啸, 孙艺齐, 梁东博, 张舒燕 (1278)
AUSB 中置曝气对 CANON 颗粒污泥工艺的影响	成朔, 李冬, 张杰, 李帅, 曹瑞华, 吕赛赛 (1286)
有机碳源对启动及运行 CANON 颗粒污泥工艺的影响	李冬, 王艳菊, 吕育锋, 曹瑞华, 李帅, 张杰 (1294)
中试一体式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器的启动与区域特性	周正, 王凡, 林兴, 董石语, 朱强, 李祥, 黄勇 (1301)
硝化液回流比对 ABR-MBR 工艺反硝化除磷效能的影响	吕亮, 尤雯, 张敏, 吴鹏, 沈耀良 (1309)
磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响	宿程远, 郑鹏, 卢宇翔, 袁秋红, 赵力剑, 廖黎明, 黄智 (1316)
好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物的特征及主要组分	杨丹, 刘东方, 杜丽琼, 黄文力 (1325)
环丙沙星对膜生物反应器中微生物群落及抗性基因的影响	戴琦, 刘锐, 梁玉婷, 舒小铭, 徐灿灿, 陈吕军 (1333)
CEM-UF 组合膜-硝化/反硝化系统处理低 C/N 废水及种群结构分析	邢金良, 张岩, 陈昌明, 张博康, 郭威, 马翔山 (1342)
磷对混养反硝化污泥活性和微生物群落结构的影响	王佩琦, 周伟丽, 何圣兵, 黄荣振 (1350)
甲烷厌氧氧化协同硝酸盐还原菌群驯化及其群落特征	薛松, 张梦竹, 李琳, 刘俊新 (1357)
城市尾水排海过程中微生物及主要致病菌扩散规律	徐爱玲, 牛成洁, 宋志文, 郎秀璐, 郭明月 (1365)
氧四环素的微生物燃料电池处理及微生物群落	严伟富, 肖勇, 王淑华, 丁蕊, 赵峰 (1379)
近 30 年干县耕地土壤碳氮比时空变异特征及其影响因素	江叶枫, 钟珊, 李婕, 王澜珂, 卞荣禧 (1386)
中宁枸杞土壤碳组分分布特征及其空间异质性	王幼奇, 赵云鹏, 白一茹, 张兴 (1396)
滨海滩涂围垦区不同围垦年限土壤酶活性变化及其与理化性质关系	解雪峰, 濮励杰, 王琪琪, 朱明, 王小涵 (1404)
青藏高原中东部表层土壤中多环芳烃的分布特征、来源及生态风险评价	周雯雯, 李军, 胡健, 李兆洲 (1413)
基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤金属源解析	卢鑫, 胡文友, 黄标, 李元, 祖艳群, 湛方栋, 卞荣禧 (1421)
铁锰双金属材料在不同 pH 条件下对土壤 As 和重金属的稳定化作用	费群, 阎秀兰, 李永华 (1430)
我国 3 个城市人体血清中新型溴代阻燃剂水平趋势及分布特征	王庆华, 袁浩东, 金军, 李鹏, 马玉龙, 王英 (1438)
《环境科学》征订启事 (979) 《环境科学》征稿简则 (996) 信息 (1022, 1064, 1293)	

基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤重金属源解析

卢鑫^{1,2,3}, 胡文友^{1*}, 黄标¹, 李元², 祖艳群², 湛方栋², 邝荣禧⁴

(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. 云南农业大学资源与环境学院, 昆明 650201; 3. 上海市岩土地质研究院有限公司, 上海 200072; 4. 江苏省地质调查研究院, 南京 210018)

摘要: 采集了云南省会泽县铅锌矿区周边 42 个农田土壤样品, 测定了 14 种元素的含量, 应用 UNMIX 模型进行了土壤重金属源解析的研究, 并利用 ArcGIS 地统计分析模块中的反距离加权插值法分析了污染严重的 6 种重金属的空间分布, 进一步验证源解析结果. 结果表明: ①研究区土壤中 Pb、Zn、Cd 污染较为严重, 均超过当地土壤背景值的数十倍. ②UNMIX 模型解析出的 3 个土壤重金属污染来源分别为工业活动造成的人为污染源(源 1), 源贡献率为 16.32%; 燃煤和施肥导致的污染源(源 2), 源贡献率为 68.26%; 矿山开采导致的人为污染源及土壤母质造成的自然污染源的综合作为污染源(源 3), 源贡献率为 15.42%. ③研究区的农田土壤重金属污染的空间分布格局与当地的土地利用类型和 UNMIX 模型解析的结果基本吻合, 表明 UNMIX 模型可以很好地应用于矿区周边农田土壤重金属源解析研究.

关键词: 矿山开采; 农田土壤; 重金属; UNMIX 模型; 源解析

中图分类号: X53; X825 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)03-1421-09 DOI: 10.13227/j.hjks.201705254

Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Area Based on UNMIX Model

LU Xin^{1,2,3}, HU Wen-you^{1*}, HUANG Biao¹, LI Yuan², ZU Yan-qun², ZHAN Fang-dong², KUANG Rong-xi⁴

(1. Key Laboratory of Soil Environment and Pollution Remediation, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 2. College of Resources and Environment, Yunnan Agricultural University, Kunming 650201, China; 3. Shanghai Geotechnical Engineering & Geology Institute Co., Ltd., Shanghai 200072, China; 4. Geological Survey of Jiangsu Province, Nanjing 210018, China)

Abstract: Forty-two farmland soil samples were collected from the mining area of Huize City, Yunnan Province, to identify the sources of metals in the farmland soils, and 14 selected elements in farmland soils were detected. The UNMIX model was applied to identify the sources of the metals. The inverse distance weighted interpolation method of statistical analysis in ArcGIS was used to develop a spatial distribution map of the six severely polluted metals to validate the source apportionment results of the UNMIX model. The results indicated that: ① the metals, Pb, Zn, and Cd, in the studied farmland soils were seriously polluted according to the soil background values of Yunnan Province and the Chinese environmental quality standard; ② there were three potential sources of metals according to UNMIX model: source 1 was the anthropogenic sources caused by industrial activities with a source contribution rate of 16.32%; source 2 was the anthropogenic sources caused by coal combustion and fertilization with a source contribution rate of 68.26%; and source 3 was the combined sources caused by mining related activities and soil parent materials with a source contribution rate of 15.42%; and ③ the spatial distribution of selected metals was in accordance with the local land-use and the results of the UNMIX model. Therefore, the UNMIX model can be effectively applied to the source apportionment of heavy metals in farmland soils around the mining area.

Key words: mining; farmland soil; heavy metal; UNMIX model; source apportionment

土壤是环境的重要组成部分,是人类赖以生存的自然环境和农业生产的重要资源. 矿山资源的开发,在对国家和地方经济产生巨大推动作用的同时,也破坏了矿区周边的生态环境,造成当地的大气、水体、土壤等污染问题^[1,2]. 矿山开采活动是造成矿区周边农田土壤中重金属污染的主要原因之一,已引起了广泛的关注. 目前大多数学者对采矿引起的土壤重金属污染问题主要集中在矿区周边土壤重金属含量^[3~5]和赋存形态及其生物有效性^[4,6,7]、重金属空间分布^[5, 8~10]、污染评价^[11~13]. 而分析矿区

周边土壤的重金属污染来源及其相对贡献,可以更加科学地对污染状况进行环境风险评价,对制定更加有效的环境管理措施具有重要意义^[14,15].

污染物源解析的研究最早起源于 20 世纪 60 年代的美国,主要采用以污染源为对象的扩散模型和

收稿日期: 2017-05-25; 修订日期: 2017-08-14

基金项目: 国家自然科学基金委云南联合基金项目(U1202236); 国家科技支撑计划项目(2015BAD05B04); 中国科学院南京土壤所一三五计划和领域前沿重点项目(ISSASIP1629)

作者简介: 卢鑫(1990~),男,硕士研究生,主要研究方向为土壤重金属污染评估与修复, E-mail: 18906338994@189.cn

* 通信作者, E-mail: wyhu@issas.ac.cn

以污染区域为对象的受体模型进行定性或者定量分析^[16]。扩散模型是根据已知各个污染源排放量、排放源与研究区域距离、污染物的理化性质以及研究区域中风向、风速和湍流等自然环境要素来研究污染源对该区域的影响程度的一种源解析方式^[17]；而受体模型则是针对污染区域作为研究对象，直接通过分析排放源和受体样品本身的理化性质来分析污染源对受体的影响，可以避免由于地形或气象数据的复杂性和不确定造成的源解析结果的偏差，越来越受到广泛的应用^[18]。当下的受体模型主要有主成分分析法（principal component analysis, PCA）^[19,20]、正定矩阵因子分析法（positive matrix factorization, PMF）^[21,22]、化学质量平衡法（chemical mass balance, CMB）、因子分析法（factor analysis, FA）和 UNMIX^[23]。目前，大多数受体模型都是应用于大气污染物的源解析研究中，如 PCA、PMF 和 UNMIX 是对空气环境中悬浮颗粒物、大气或水体环境中多环芳烃（PAHs）和多氯联苯（PCBs）等有机污染物进行源解析研究最常用的 3 种受体模型^[24,25]。对于利用受体模型进行土壤中污染物的源解析研究方面，我国采用更多的是因子分析法（FA）^[26-28]。

UNMIX 模型由美国环境保护署（U. S. environmental protection agency, USEPA）开发，主要用于对某一区域内对空气质量产生影响的各种空气污染源的贡献情况进行识别和量化，从而为制定和实施相应的空气质量标准提供科学依据的几种源解析模型之一，在国内外得到了广泛的应用。UNMIX 方法相比其他受体模型，具有如下特点：它直接以受体含量计算，不需要经过数据转换，模型自带的数据库系统可以自动去除不合理的数据；它事先不需要知道污染源的个数、源成分谱等信息，直接从受体含量出发通过污染物标识物及指纹元素来识别、推断污染源；它克服了其他受体模型在解析结果给出的负值源贡献的缺点，使解析结果更加准确、合乎实际。Pancras 等^[29]通过对在一定时期内密集采集自佛罗里达州坦帕市的可吸入颗粒物 $PM_{2.5}$ 中的重金属 UNMIX 源解析，得出其可能来源为燃油源、燃煤源、生物质燃烧源、海洋气溶胶源、工业排放源、降尘源等 8 个来源的结论。Callén 等^[30]利用 UNMIX 模型对西班牙 Zaragoza 地区的 PM_{10} 进行源解析，发现对该地区空气中 PM_{10} 的含量影响较大的有工业或交通源、海洋气溶胶源、生物质燃烧源、地壳源和重型车尾气排放源这 5 种来源。Lang

等^[31]应用 UNMIX 模型对胶州湾湿地土壤中的多环芳烃（PAHs）进行源解析得到其可能的来源有石油源、炼焦炉源和燃煤源，且三者的源贡献分别为 43.2%、39.2% 和 12.6%。冯小琼等^[32]综合应用 CMB 模型、UNMIX 模型对香港地区 2005 ~ 2010 年 VOCs 污染来源的解析后认为溶剂使用、机动车尾气排放和液化石油气（LPG）的大量使用是造成该地区的 VOCs 污染的主要原因。

作为广泛应用于空气污染物源解析研究的受体模型，UNMIX 应用到土壤中污染物的解析研究鲜见报道。本研究应用 UNMIX 模型，参考对大气污染物的源解析的研究方法，解析云南会泽铅锌矿区周边农田土壤金属的来源，以期对矿区周边农田土壤的重金属污染防控与治理提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区域概况

会泽县位于云南省东北部，介于东经 $103^{\circ}03' \sim 103^{\circ}55'$ ，北纬 $25^{\circ}48' \sim 27^{\circ}04'$ 之间，平均海拔 2 120 m，气候温和，雨量充沛，年均气温 12.6°C ，年均降雨量 858.4 mm，属温带山地半潮湿气候，其铅锌矿是川滇黔铅锌成矿区的大型富铅锌矿床的一个典型代表，作为我国有名的土法炼锌集散地，会泽地区的采矿历史最早可以追溯到西汉时期^[33]。历史上长期的没有环保措施的采矿和冶炼行为在当地遗留下了大量的开矿、冶矿废弃地，在风吹、雨水淋溶的作用下，废矿废渣中的重金属元素在周围的环境中扩散，导致矿区周边土壤中 Pb、Zn、Cd 和 As 等重金属高度累积^[34]。

1.2 样品采集与分析测定

为研究矿区周边农田土壤重金属污染情况，供试土壤取自云南省曲靖市会泽县矿山镇到者海镇之间（ $103^{\circ}36' \sim 103^{\circ}43'\text{E}$ ， $26^{\circ}33' \sim 26^{\circ}38'\text{N}$ ），从山谷上游的矿山镇农田到逐步接近下游的者海镇矿区周边农田为采样区域，依次随机布点采样，共计 42 个土壤采样点（图 1）。在每个采样点周围随机采集 5 个深度为 0 ~ 20 cm 的农田耕层土壤样品，按四分法取 1.0 kg 为土壤样品，采样过程中用 GPS 准确记录采样点位置，所有土样带回实验室，经室内自然风干，剔除植物残体和石块，研磨后过 100 mm 筛。土壤样品中的各金属元素在经 HCl-HF-HNO₃-HClO₄ 四酸消解后，采用原子吸收光谱法（TAS-990，北京普析通用仪器有限公司）测定。为了确保分析结果的可靠性和准确性，每批样品、每个项目均有 3 个

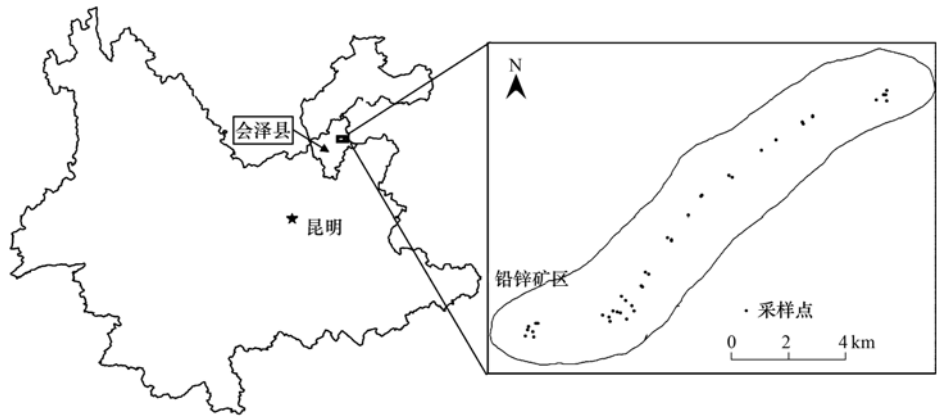


图1 研究区域及采样点分布示意

Fig. 1 Location of the study area and distribution of sampling sites

标准样、3 个平行的全程空白同步测定。标样测定结果均在允许误差范围内。

1.3 UNMIX 模型

UNMIX 模型的分析方式是一种特征值分析方式,是一种基于主成分分析的一种多元受体模型,它通过自模式曲线分辨技术的转换方式,确保源分析结果的可靠性^[35]。UNMIX 模型的运算建立在不同污染源对于受体的源贡献是各个源组分的线性组合;源中组分对受体的贡献为正值;样品中有一些源贡献很少甚至没有^[36]。其计算原理可用以下公式表示^[23]:

$$C_{ij} = \sum_{k=1}^m F_{jk} S_{ik} + E$$

式中, C_{ij} 为第 i 个样品的第 j 个物种 ($j=1, \dots, n$) 的含量; F_{jk} 为第 j 个物种在源 k ($k=1, \dots, m$) 中的质量分数,代表源的组成; S_{ik} 代表源 k 在第 i 个样品中的总量,也就是代表源的贡献率大小; E 为分析过程的不确定度或者各个源组成的标准偏差。

UNMIX 模型运行操作简单,可用直接读取格式符合的 Excel 数据文件。导入数据后,UNMIX 模型能够利用自带的数据分析功能,分析数据的统计特征,在数据处理窗口 (data processing) 中可以通过 (view/edit points and observations) 功能观察含量的边缘分布图或者通过 (suggest exclusion) 功能对不符合的数据进行剔除,然后通过选择初始物种 (select initial species) 以及建议附加物种 (suggest additional species) 功能,选择最优于 UNMIX 模型运算的物种。模型解析出的源成分谱需符合可以用该模型进行解释的最低系统要求 (拟合相关系数 Min Rsq > 0.8, 信噪比 Min Sig./Noise > 2)。

1.4 数据的标准化处理

通常情况下,土壤中不同元素之间含量差异较

大,为了消除这一差异对结果分析的影响,在将分析所得的数据导入到 UNMIX 软件进行分析前,采用离差标准化的形式对数据进行标准化处理,经过处理后,数据均无量纲且观察值的数值范围处于 0~1 之间。离差标准化公式如下:

$$X_k = \frac{X_i - \text{Min}X_i}{\text{Max}X_i - \text{Min}X_i}$$

式中, X_k ($k=1, \dots, m$) 为进行离差标准化后的数值, X_i 为样品初始分析值, $\text{Min} X_i$ 为最小分析值, $\text{Max} X_i$ 为最大分析值。

1.5 数据处理

地统计学空间分布图的制作通过 ArcGIS (version 9.3) 来完成;土壤金属来源解析由 UNMIX 6.0 完成;其他数据处理由 Excel 2010 完成。

2 结果与分析

2.1 农田土壤金属的统计特征

铅锌矿区及周边 42 个农田土壤采样点中的 14 种元素含量的统计特征见表 1。从中可知:农田土壤中 Pb、Zn、Cu、Ni、Mn、Cr、Ti、V 和 Cd 的平均含量全部超过了云南省的土壤背景值,其中 Pb、Zn 和 Cd 分别是当地土壤背景值的 27.5、25.3 和 61.3 倍,并且分别超过国家土壤环境质量标准二级标准 (GB 15618-1995) 的 4.5、11.4 和 44.6 倍,说明这 3 种元素在研究区农田土壤中明显富集且污染严重。Pb、Zn 和 Cd 这 3 种重金属元素的变异系数分别为 78.2%、91% 和 80.6%,均超过 50%,说明 Pb、Zn 和 Cd 在研究区域农田土壤中污染程度差别较大,污染严重的区域应加强治理。

2.2 农田土壤重金属的 UNMIX 源解析结果

利用 UNMIX 6.0 软件,得出 42 个土壤采样点

14 种元素在可解析的多个源中的含量分配情况。其中 3 个源的 Min Rsq = 0.83, 代表 83% 的物种方差可由该模型解释, 大于系统要求的最小值 (Min

Rsq > 0.8); Min Sig./Noise = 3.32, 大于系统要求的最低值 (Min Sig./Noise > 2), 由此可知这 3 个源得出的解析结果是可信的。

表 1 土壤中不同元素含量的描述性样品统计特征

Table 1 Statistical characteristics of the selected elements in soils

元素	含量范围 /mg·kg ⁻¹	平均值 /mg·kg ⁻¹	标准偏差	变异系数 /%	云南省背景值 /mg·kg ⁻¹ [37]	国家二级标准 /mg·kg ⁻¹
Pb	130.33 ~ 3 987.74	1117.47	873.59	78.2	40.6	250
Zn	284.39 ~ 9 120.41	2273.77	2070.13	91	89.7	200
Cu	89.83 ~ 316.6	191.05	46.05	24.11	46.3	50
Ni	63.11 ~ 157.99	110.59	18.55	16.7	42.5	40
Mn	675.64 ~ 1 990.12	1 508.58	338.96	22.5	626	—
Sr	23.98 ~ 138.48	57.49	21.41	37.2	85	—
Cr	91.94 ~ 249.78	148.27	39.58	26.7	65.2	150
K	4 162.85 ~ 23 658.38	8 580.58	3 971.06	46.3	16 100	—
Ca	1 112.31 ~ 41 574.75	7 054.33	6 670.36	94.5	1 600	—
Ti	10 400.57 ~ 37 423.07	23 943.84	6 055.07	25.3	7 100	—
V	306.4 ~ 835.18	588.02	133.02	22.6	154.9	—
Cs	32.44 ~ 96.39	54.14	12.95	23.9	11.47	—
Ba	234.47 ~ 499.93	363.03	63.19	17.4	346	—
Cd	4.68 ~ 46.88	13.37	10.78	80.6	0.218	0.3

2.2.1 源成分分析

由表 2 可知, UNMIX 解析出土壤重金属的 3 个主要来源。在源 1 的源成分谱中 K、Cs 和 Ba 含量较高, 同时也高于其余两个源, 表明源 1 对 K、Cs 和 Ba 元素含量贡献占主导作用。自然条件下, 土壤中全钾和有效钾的含量较低, 而研究区域的钾元素含量的平均值并未超过云南的背景值, 说明钾并未明显富集, 从含量范围来看, 超过背景值的个别点位可能是农民在农田大量使用钾肥的过程中造成的。而结合当地实际情况, 研究区所在的会泽县者海镇是以冶金、建材等产业为主的特色工业城镇, Cs 和 Ba 元素超标则是源于工业污染造成的。因此, 源 1 代表工业活动引起的污染源。

在源 2 的源成分谱中, V、Ti、Mn、Ni、Cu 和 Cr 元素的含量高于其他元素, 表明源 2 主要对这 6 种元素有贡献。土壤中的 V、Ti 含量都很低, 主要来源于人类活动的排放, 如化石燃料的燃烧和居民燃煤及焚烧垃圾等, 通过大气沉降造成污染^[38]。土壤中的 Ni 和 Cr 也主要源于上述人类活动。也有报道称化肥中 Cr 含量比较高, 如磷肥中 Cr 含量在几十到 252.0 mg·kg⁻¹^[39]。含铜矿的开采和冶炼厂三废的排放、含铜农业化学物质 (含铜杀真菌剂和化肥) 和有机肥 (污泥、猪粪、厩肥和堆肥) 的施用可使农田土壤含铜量达到原始土壤的几倍乃至几十倍^[40]。因此, 源 2 认为是燃煤和肥料施用所导致的污染源。

在源 3 的源成分谱中, Pb、Zn、Cd 和 Ca 含量很

高, 表明源 3 对这些金属有着重要的贡献。者海镇有大型的铅锌矿区及金属冶炼厂, 矿产资源的开发及金属冶炼, 会有大量的废水、废气、废渣排放进入环境, 使土壤中的 Pb、Zn 和 Cd 严重超标。Pb、Zn 和 Cd 的平均值分别是当地土壤背景值的 27.5、25.3 和 61.3 倍, 说明该 3 种元素在土壤中富集并污染严重。同时, 研究区域从者海镇到矿山镇, 中间有县道 Z064 连接, 会有大量车辆往来。轮胎磨损会产生大量吸附 Zn 等重金属的颗粒物进入土壤造成污染^[41]。地壳中 Ca 的含量也很高, 大多来源于石灰岩和石膏等。一般认为岩石风化对 Ca 的贡献为

表 2 土壤重金属三源源成分谱

Table 2 Three source components in heavy metal soils

元素	源 1	源 2	源 3
Pb	0.018	0.034	0.197
Zn	-0.031	0.029	0.226
Cu	-0.054	0.405	0.092
Ni	0.070	0.408	0.022
Mn	0.093	0.494	0.043
Sr	0.112	0.060	0.122
Cr	-0.039	0.283	0.117
K	0.296	-0.020	-0.051
Ca	0.041	-0.030	0.133
Ti	-0.013	0.584	-0.078
V	-0.042	0.620	-0.051
Cs	0.278	0.110	-0.042
Ba	0.282	0.157	0.058
Cd	-0.124	0.129	0.208
总和	1.090	4.560	1.030

自然作用源. 因此, 认为源 3 是矿山开采活动导致的人为污染源及土壤母质造成的自然污染源的综合作用源.

2.2.2 源贡献分析

由图 2 可知: 源 2 所占比例最大, 贡献率为 68.26%, 表明工业污染、燃煤以及施用肥料等活动是区域土壤重金属污染的主要来源; 源 1 和源 3 的贡献率相对源 2 较小, 说明自然污染源、矿产开采活动对区域土壤重金属元素的贡献较弱. 按照常理, 矿区开采及活动应该承担该地区主要的污染源贡献, 但使用该模型解析出来的该部分所占的源贡献率仅为 15.42%, 为三源贡献率最小值. 可能的原因是会泽县当地对矿产资源开采所使用的方法越来越科学, 管理越来越严格, 对环境造成的污染则随之减少. 而工业活动、燃煤及肥料施用是该地区主要的污染源, 也是今后治理的重点.

各采样点对 3 个源贡献值情况见图 3. 从中可知: 源 1 中 2、5~10、12、14~17、19~20、22~23、26、38、41~42 号采样点对该源的贡献比较大, 这些采样点主要集中在居民居住地及工业密集区, 说明这些采样点都是工业活动比较频繁的地区, 进一步验证源 1 是工业源.

源 2 中 4~5、10、12、18、20~21、23~29、31~34、36、38~39、41~42 号采样点对该源的贡献比较大, 这些采样点也是主要集中在居民居住地和工业密集区, 说明这些采样点都是人类活动比较频繁的地区, 进一步验证源 2 是燃煤和肥料施用所导

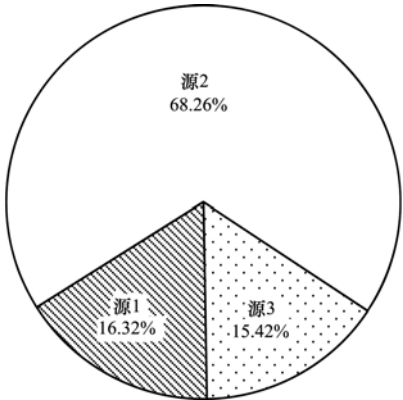


图 2 土壤重金属不同污染源贡献率

Fig. 2 Contribution rate of different sources in heavy metal soils

致的污染源.

源 3 中 2、14~15、17、25~31、38、40 号采样点对该源的贡献比较大, 这些采样点有沿道路分布, 并且大部分集中在居民居住地及矿区周边, 说明这些采样点大部分是人类活动比较频繁的地区, 而矿产资源开采和运输是其主要活动, 进一步说明源 3 主要是矿山开采活动导致的污染源.

由表 3 可知, 几个源的相关系数都不为零, 说明源成分之间是相互关联的, 在成因上存在一定的联系, 这也是符合实际结果的; 源 1 和源 2 的相关系数较大, 大约在 0.5 左右, 存在中等程度的相关, 说明源 1 对源 2 是有影响的. 源 1 和源 3 源以及源 2 和源 3 之间的相关系数在 0.1 左右, 说明两两之间没有影响. 综上, 研究区农田土壤重金属污染是多种因素综合作用的结果.

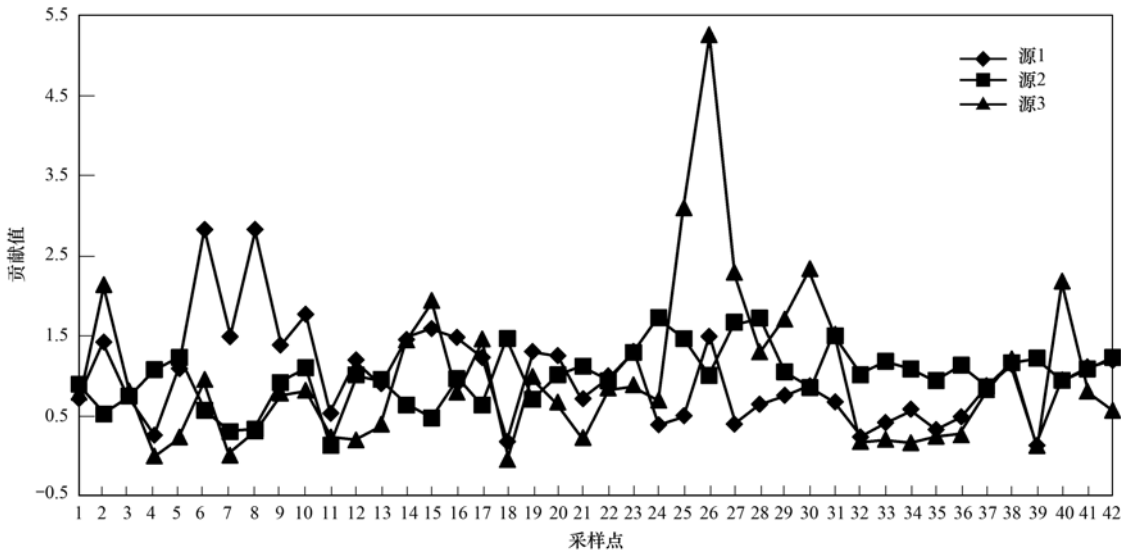


图 3 各采样点对不同污染源的贡献

Fig. 3 Contributions of each sampling point to different pollution sources

表 3 不同土壤重金属污染源之间的相关性
Table 3 Correlations among three different sources
of heavy metals in soils

	源 1	源 2	源 3
源 1	1.000	-0.535	0.160
源 2	-0.535	1.000	0.070
源 3	0.160	0.070	1.000

2.3 土壤中 6 种污染严重的重金属的空间分布

根据记录的采样点坐标位置,结合每个对应点土壤中重金属的含量,选取了污染严重的 Pb、Zn、Cu、Mn、Ni 和 Cd 这 6 种重金属,利用 ArcGIS 中的地统计分析功能,进行反距离加权差值分析,得到矿区周边农田土壤重金属含量的空间分布(图 4)。

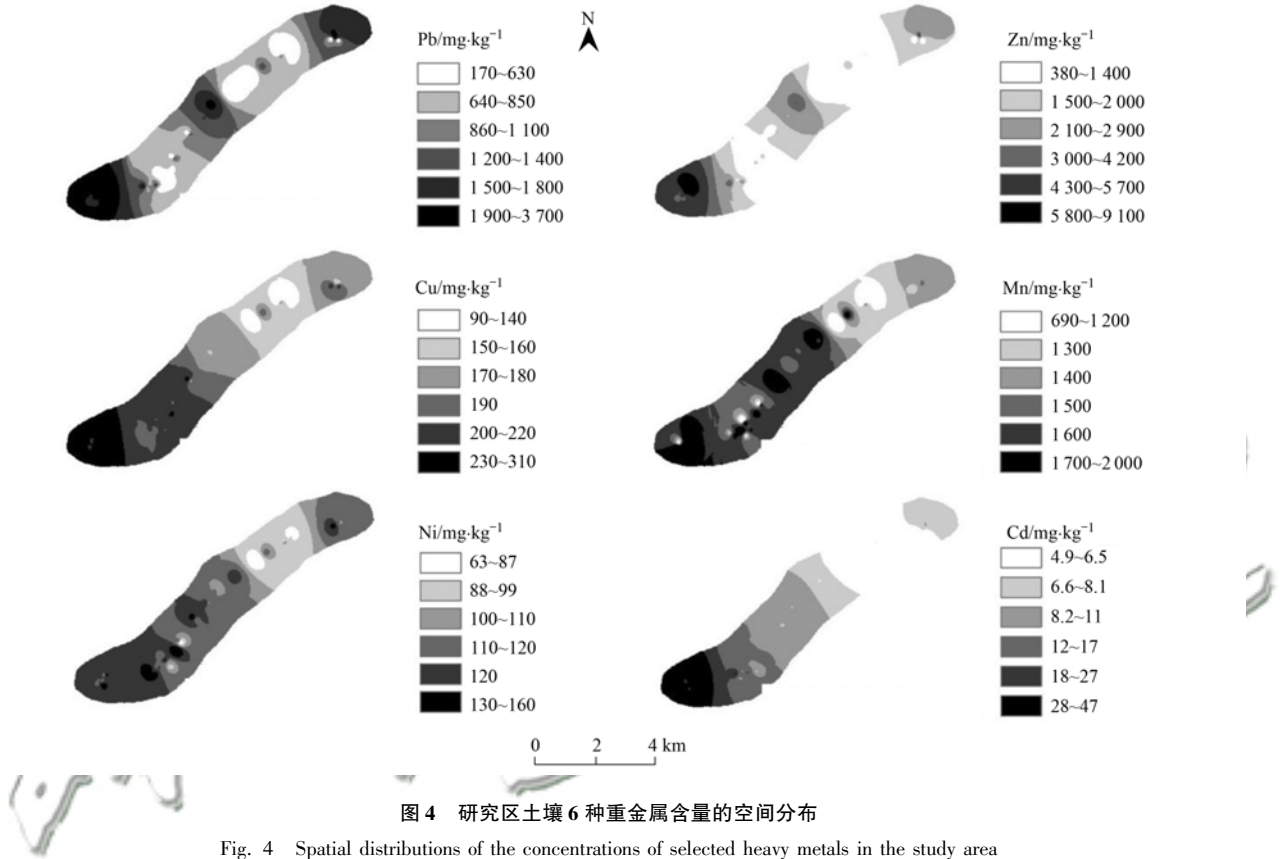


图 4 研究区土壤 6 种重金属含量的空间分布
Fig. 4 Spatial distributions of the concentrations of selected heavy metals in the study area

从图 4 中可以看出,受矿区渣堆及附近冶炼厂的影响,采样区西南侧靠近矿渣堆附近的农田土壤 Pb、Zn、Cu、Mn、Ni 和 Cd 含量均明显高于其他区域,并且该区域也是者海镇的主城区,人口最密集的区域,说明人类活动是该地区主要的污染源,与源解析的结果一致;且研究区域的东北侧附近的农田土壤 6 种重金属的含量也明显高于中部周边农田,且研究区域的东北侧也是矿山镇的主城区,再次验证了人为源对研究区域土壤重金属污染的贡献. 从图 4 还可以看出,研究区域的西南角(者海镇)到东北角(矿山镇),有县道 Z064 相连,使得沿着道路附近的农田重金属含量要比远离道路的农田重金属含量要高,这与源解析结果的源 3 里面的交通运输导致的人为源一致,进一步验证了源解析结果的可靠性.

3 讨论

研究区域农田土壤中 Pb、Zn 和 Cd 高度积累,且呈现西南偏高东北偏低的趋势,与该区域的人类活动方式密切相关. 而研究区域的西南部是历史悠久的铅锌矿区,长时间的矿产开发是导致该地区 Pb、Zn 和 Cd 这 3 种重金属元素高度积累的主要原因. 但是根据源贡献分析,该部分作为源 3 的主要污染来源只占了全部污染源贡献率的 15.42%,说明通过 UNMIX 模型解析出来的源 3 并不是该区域农田土壤重金属的主要污染来源. 董驷睿等^[42]测定了表层土壤、剖面土壤、肥料及大气降尘中重金属含量,并通过主成分分析的方法对其进行来源解析,认为农业施肥对土壤重金属的累积具有非常重要的贡献. 与 UNMIX 模型解析出的源 2 中肥料施

用是该源污染来源的主要贡献之一的结果相吻合。

UNMIX 模型作为广泛应用于大气污染源解析的模型,目前应用在土壤^[31,36]或者沉积物^[43]中的研究还相对较少。本研究的结果表明,UNMIX 模型可以很好地应用于土壤重金属污染的源解析。但每种源解析方法都会因为自身的特点而存在一定的局限性,并非解析出来的结果都会与实际情况完全吻合。因此,综合应用多种源解析模型和手段,对不同污染源解析结果进行综合分析和比较,这样可以减少单一模型解析结果的局限性,更好地帮助理解源解析结果并使得源解析的结果更加可靠^[44~46]。

4 结论

(1)研究区农田土壤中, Pb、Zn 和 Cd 明显富集,平均含量分别超过国家土壤环境质量的 4.5、11.4 和 44.6 倍,处于严重污染水平。

(2)利用 UNMIX 模型解析出 3 个污染源:源 1 为工业活动污染源,源贡献率 16.32%;源 2 为燃煤和肥料施用所导致的污染,源贡献率 68.26%;源 3 为矿山开采导致的人为污染源及土壤母质造成的自然污染源的综合污染源,源贡献率 15.42%。

(3)利用 ArcGIS 中的地统计分析功能,反距离加权差值分析得到的重金属含量空间分布图与 UNMIX 模型解析的结果及研究区域的土地利用类型和实际情况基本吻合。表明 UNMIX 模型是一种有效的农田土壤重金属源解析方法。

参考文献:

- [1] 李静, 俞天明, 周洁, 等. 铅锌矿区及周边土壤铅、锌、镉、铜的污染健康风险评估[J]. 环境科学, 2008, **29**(8): 2327-2330.
Li J, Yu T M, Zhou J, *et al.* Assessment of health risk for mined soils based on critical thresholds for lead, zinc, cadmium and copper[J]. Chinese Journal of Environmental Science, 2008, **29**(8): 2327-2330.
- [2] 袁永强, 刘丛强. 广西某地金属冶炼废水外溢对农田土壤的污染特征[J]. 环境科学, 2011, **32**(11): 3312-3317.
Yuan Y Q, Liu C Q. Pollution of agricultural soils by a wastewater outflow from a metal smelter in Guangxi Zhuang Autonomous Region [J]. Chinese Journal of Environmental Science, 2011, **32**(11): 3312-3317.
- [3] 李倩, 秦飞, 季宏兵, 等. 北京市密云水库上游金矿区土壤重金属含量、来源及污染评价[J]. 农业环境科学学报, 2013, **32**(12): 2384-2394.
Li Q, Qin F, Ji H B, *et al.* Contents, sources and contamination assessment of soil heavy metals in gold mine area of upstream part of Miyun Reservoir, Beijing, China [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2013, **32**(12): 2384-2394.
- [4] 黄兴星, 朱先芳, 唐磊, 等. 密云水库上游某铁矿区土壤重金属含量及形态研究[J]. 中国环境科学, 2012, **32**(9): 1632-1639.
Huang X X, Zhu X F, Tang L, *et al.* Studies on the distribution and chemical speciation of heavy metals in a iron mine soil of the upstream area of Miyun Reservoir, Beijing [J]. China Environmental Science, 2012, **32**(9): 1632-1639.
- [5] 赵永红, 张静, 周丹, 等. 赣南某钨矿区土壤重金属污染状况研究[J]. 中国环境科学, 2015, **35**(8): 2477-2484.
Zhao Y H, Zhang J, Zhou D, *et al.* Mixed heavy metals contamination of tungsten mine area soil in south of Jiangxi Province [J]. China Environmental Science, 2015, **35**(8): 2477-2484.
- [6] 王其枫, 王富华, 孙芳芳, 等. 广东韶关主要矿区周边农田土壤铅、镉的形态分布及生物有效性研究[J]. 农业环境科学学报, 2012, **31**(6): 1097-1103.
Wang Q F, Wang F H, Sun F F, *et al.* Fractionation and bioavailability of Pb and Cd in agricultural soils around mining area in Shaoguan Guangdong Province, China [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2012, **31**(6): 1097-1103.
- [7] 叶宏萌, 袁旭音, 赵静. 铜陵矿区河流沉积物重金属的迁移及环境效应[J]. 中国环境科学, 2012, **32**(10): 1853-1859.
Ye H M, Yuan X Y, Zhao J. Spatial migration and environmental effects of heavy metals in river sediments from in the Tongling mining area, Anhui Province [J]. China Environmental Science, 2012, **32**(10): 1853-1859.
- [8] 任伯帆, 马宏璞, 郑谐, 等. 锰矿区雨水径流中重金属含量及污染水平的空间结构特征[J]. 环境科学学报, 2014, **34**(7): 1730-1737.
Ren B Z, Ma H P, Zheng X, *et al.* Spatial structure characteristics of heavy metal content and pollution levels of rainfall runoff in manganese ore zone [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2014, **34**(7): 1730-1737.
- [9] 鲁荔, 杨金燕, 田丽燕, 等. 大邑铅锌矿区土壤和蔬菜重金属污染现状及评价[J]. 生态与农村环境学报, 2014, **30**(3): 374-380.
Lu L, Yang J Y, Tian L Y, *et al.* Status quo and evaluation of heavy metal pollution of vegetables and soils in Dayi Lead-Zinc Mining Area, China [J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2014, **30**(3): 374-380.
- [10] 于君宝, 刘景双, 王金达, 等. 矿山复垦土壤典型元素时空变化研究[J]. 中国环境科学, 2001, **21**(3): 235-239.
Yu J B, Liu J S, Wang J D, *et al.* The space-time variation of the typical elements content in covering soil of coal mine reclamation area [J]. China Environmental Science, 2001, **21**(3): 235-239.
- [11] 刘灵飞, 龙健, 万洪富, 等. 贵州喀斯特山区铅冶炼厂对农业土壤污染特征的影响及风险评估[J]. 土壤, 2013, **45**(6): 1036-1047.
Liu L F, Long J, Wan H F, *et al.* Distribution characteristics and risk assessment of heavy metals in agricultural soils in an abandoned antimony smelter in Guizhou Karst Areas [J]. Soils, 2013, **45**(6): 1036-1047.
- [12] 王莹, 赵全利, 胡莹, 等. 上虞某铅锌矿区周边土壤植物重金属含量及其污染评价[J]. 环境化学, 2011, **30**(7): 1354-1360.
Wang Y, Zhao Q L, Hu Y, *et al.* Survey and contamination assessment of heavy metals in soil and plants around the Pb/Zn

- mine in Shangyu, Zhejiang Province [J]. *Environmental Chemistry*, 2011, **30**(7): 1354-1360.
- [13] 李良忠, 胡国成, 张丽娟, 等. 矿区家庭灰尘中重金属污染及其潜在生态风险[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(4): 1230-1238.
- Li L Z, Hu G C, Zhang L J, *et al.* The pollution and potential ecological risk assessment of the heavy metals in household dusts from mineral areas[J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(4): 1230-1238.
- [14] Gan J, Lee S J, Liu W P, *et al.* Distribution and persistence of pyrethroids in runoff sediments [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2005, **34**(3): 836-841.
- [15] Delgado-Moreno L, Wu L, Gan J. Effect of dissolved organic carbon on sorption of pyrethroids to sediments[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(22): 8473-8478.
- [16] Henry R C, Lewis C W, Hopke P K, *et al.* Review of receptor model fundamentals [J]. *Atmospheric Environment* (1967), 1984, **18**(8): 1507-1515.
- [17] 张长波, 骆永明, 吴龙华. 土壤污染源解析方法及其应用研究进展[J]. *土壤*, 2007, **39**(2): 190-195.
- Zhang C B, Luo Y M, Wu L H. Methods for source apportionment of soil pollutants and their advances in application to soil environmental research[J]. *Soils*, 2007, **39**(2): 190-195.
- [18] Gordon G E. Receptor models [J]. *Environmental Science & Technology*, 1988, **22**(10): 1132-1142.
- [19] Shi G L, Li X, Feng F C, *et al.* Combined source apportionment, using positive matrix factorization-chemical mass balance and principal component analysis/multiple linear regression-chemical mass balance models [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(18): 2929-2937.
- [20] Shi G L, Zeng F, Li X, *et al.* Estimated contributions and uncertainties of PCA/MLR-CMB results: source apportionment for synthetic and ambient datasets [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(17): 2811-2819.
- [21] Paatero P. Least squares formulation of robust non-negative factor analysis[J]. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 1997, **37**(1): 23-35.
- [22] 董騷睿, 胡文友, 黄标, 等. 基于正定矩阵因子分析模型的城郊农田土壤重金属源解析[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(7): 2103-2111.
- Dong L R, Hu W Y, Huang B, *et al.* Source appointment of heavy metals in suburban farmland soils based on positive matrix factorization[J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(7): 2103-2111.
- [23] Hopke P K. Recent developments in receptor modeling [J]. *Journal of Chemometrics*, 2003, **17**(5): 255-265.
- [24] Wang T Y, Lu Y L, Chen C L, *et al.* Perfluorinated compounds in a coastal industrial area of Tianjin, China[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2012, **34**(3): 301-311.
- [25] Shi G L, Tian Y Z, Guo C S, *et al.* Sediment-pore water partition of PAH source contributions to the Yellow River using two receptor models[J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2012, **12**(7): 1154-1163.
- [26] 王雄军, 赖健清, 鲁艳红, 等. 基于因子分析法研究太原市土壤重金属污染的主要来源[J]. *生态环境*, 2008, **17**(2): 671-676.
- Wang X J, Lai J Q, Lu Y H, *et al.* Main source of soil heavy metal pollution based on factor analysis in Taiyuan[J]. *Ecology and Environment*, 2008, **17**(2): 671-676.
- [27] 杨忠平, 卢文喜, 刘新荣, 等. 长春市城区表层土壤重金属污染来源解析[J]. *城市环境与城市生态*, 2009, **22**(5): 29-33.
- Yang Z P, Lu W X, Liu X R, *et al.* Sources identification of heavy metals in urban soil of Changchun based on principal component analysis[J]. *Urban Environment & Urban Ecology*, 2009, **22**(5): 29-33.
- [28] 李瑞平, 郝英华, 李光德, 等. 泰安市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*, 2011, **30**(10): 2012-2017.
- Li R P, Hao Y H, Li G D, *et al.* Characteristics and sources analysis of soil heavy metal pollution in Taian City, Shandong, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2011, **30**(10): 2012-2017.
- [29] Pancras J P, Vedantham R, Landis M S, *et al.* Application of EPA Unmix and nonparametric wind regression on high time resolution trace elements and speciated mercury in Tampa, Florida aerosol[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(8): 3511-3518.
- [30] Callén M S, López J M, Mastral A M. Influence of organic and inorganic markers in the source apportionment of airborne PM₁₀ in Zaragoza (Spain) by two receptor models [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2013, **20**(5): 3240-3251.
- [31] Lang Y H, Li G L, Wang X M, *et al.* Combination of Unmix and PMF receptor model to apportion the potential sources and contributions of PAHs in wetland soils from Jiaozhou Bay, China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2015, **90**(1-2): 129-134.
- [32] 冯小琼, 彭康, 凌镇浩, 等. 香港地区2005-2010年VOCs污染来源解析及特征研究[J]. *环境科学学报*, 2013, **33**(1): 173-180.
- Feng X Q, Peng K, Ling Z H, *et al.* Source apportionments and characteristics of VOCs from 2005 to 2010 in Hong Kong [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(1): 173-180.
- [33] 王宏斌, 文传浩, 谭晓勇, 等. 云南会泽铅锌矿矿渣废弃地植被重建初探[J]. *云南环境科学*, 1998, **17**(2): 43-46.
- Wang H B, Wen C H, Tan X Y, *et al.* An investigation on the pioneer plant community of slag spoils of lead and zinc mine, Huize, Yunnan Province and a primary conception of revegetation [J]. *Yunnan Environmental Science*, 1998, **17**(2): 43-46.
- [34] 邝荣禧, 胡文友, 何跃, 等. 便携式X射线荧光光谱法(PXRF)在矿区农田土壤重金属快速检测中的应用研究[J]. *土壤*, 2015, **47**(3): 589-595.
- Kuang R X, Hu W Y, He Y, *et al.* Application of portable x-ray fluorescence (PXRF) for rapid analysis of heavy metals in agricultural soils around mining area[J]. *Soils*, 2015, **47**(3): 589-595.
- [35] Henry R C. Current factor analysis receptor models are ill-posed [J]. *Atmospheric Environment* (1967), 1987, **21**(8): 1815-1820.
- [36] 艾建超, 王宁, 杨净. 基于UNMIX模型的夹皮沟金矿区土壤重金属源解析[J]. *环境科学*, 2014, **35**(9): 3530-3536.
- Ai J C, Wang N, Yang J. Source apportionment of soil heavy metals in Jiapiyou goldmine based on the UNMIX model [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(9): 3530-3536.

- [37] 国家环境保护局, 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值 [M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990. 87, 330-496.
- [38] 杨金燕, 唐亚, 李廷强, 等. 我国钒资源现状及土壤中钒的生物效应[J]. 土壤通报, 2010, **41**(6): 1511-1517.
Yang J Y, Tang Y, Li T Q, *et al.* Soil biogeochemistry and resources situation of vanadium in China[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2010, **41**(6): 1511-1517.
- [39] 闫湘, 王旭, 李秀英, 等. 我国水溶肥料中重金属含量、来源及安全现状[J]. 植物营养与肥料学报, 2016, **22**(1): 8-18.
Yan X, Wang X, Li X Y, *et al.* Contents, source and safety status of major heavy metals in water-soluble fertilizers in China [J]. Journal of Plant Nutrition and Fertilizer, 2016, **22**(1): 8-18.
- [40] 吴涛, 伍钧. 铜、铅单一及其复合污染对鱼腥草吸收累积铜和铅的影响[J]. 土壤通报, 2008, **39**(3): 670-674.
Wu T, Wu J. Effects of single and combined pollution by Cu and Pb on the accumulation of Cu and Pb in the *Houttuynia cordata Thunb*[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2008, **39**(3): 670-674.
- [41] 郭平, 谢忠雷, 李军, 等. 长春市土壤重金属污染特征及其潜在生态风险评价[J]. 地理科学, 2005, **25**(1): 108-112.
Guo P, Xie Z L, Li J, *et al.* Specificity of heavy metal pollution and the ecological hazard in urban soils of Changchun City[J]. Scientia Geographica Sinica, 2005, **25**(1): 108-112.
- [42] 董騄睿, 胡文友, 黄标, 等. 南京沿江典型蔬菜生产系统土壤重金属异常的源解析[J]. 土壤学报, 2014, **51**(6): 1251-1261.
Dong L R, Hu W Y, Huang B, *et al.* Sources of heavy metals in soils of a typical vegetable production system along Yangtze River in Nanjing[J]. Acta Pedologica Sinica, 2014, **51**(6): 1251-1261.
- [43] Lang Y H, Yang W. Source apportionment of PAHs using Unmix model for Yantai costal surface sediments, China[J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 2014, **92**(1): 30-35.
- [44] Song Y, Xie S D, Zhang Y H, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} in Beijing using principal component analysis/absolute principal component scores and UNMIX[J]. Science of the Total Environment, 2006, **372**(1): 278-286.
- [45] Song Y, Dai W, Shao M, *et al.* Comparison of receptor models for source apportionment of volatile organic compounds in Beijing, China[J]. Environmental Pollution, 2008, **156**(1): 174-183.
- [46] Yang B, Zhou L L, Xue N D, *et al.* Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils of Huanghuai Plain, China: comparison of three receptor models[J]. Science of the Total Environment, 2013, **443**: 31-39.



CONTENTS

Characterization and Variation of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM _{2.5} During the Winter in the Yangtze River Delta Region, China	KANG Hui, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i>	(961)
Important Effect of Secondary Inorganic Salt Extinction on Visibility Impairment in the Northern Suburb of Nanjing	YU Chao, YU Xing-na, ZHAO Tian-liang, <i>et al.</i>	(972)
Day-Night Differences and Source Apportionment of Inorganic Components of PM _{2.5} During Summer-Winter in Changzhou City	LIU Jia-shu, GU Yuan, MA Shuai-shuai, <i>et al.</i>	(980)
Characteristics of Elements in PM _{2.5} and PM ₁₀ in Road Dust Fall During Spring in Tianjin	WANG Shi-bao, JI Ya-qin, LI Shu-li, <i>et al.</i>	(990)
Particle Size Distribution and Human Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particles from Beijing and Xinxiang During Summer	ZHANG Xin, ZHAO Xiao-man, MENG Xue-jie, <i>et al.</i>	(997)
Ecological and Health Risks of Trace Heavy Metals in Atmospheric PM _{2.5} Collected in Wuxiang Town, Shanxi Province	GUO Zhao-xia, GENG Hong, ZHANG Jin-hong, <i>et al.</i>	(1004)
Characteristics of Particulate and Inorganic Elements of Motor Vehicles Based on a Tunnel Environment	LI Feng-hua, ZHANG Yan-jie, ZHANG Jing, <i>et al.</i>	(1014)
A 2013-based Atmospheric Ammonia Emission Inventory and Its Characteristic of Spatial Distribution in Henan Province	WANG Chen, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i>	(1023)
Emission Characteristics of Wind Erosion Dust from Topsoil of Urban Roadside-Tree Pool	LI Bei-bei, QIN Jian-ping, QI Li-rong, <i>et al.</i>	(1031)
Particulate Component Emission Characteristic from a Diesel Bus with DOC and CDPF	LOU Di-ming, GENG Xiao-yu, SONG Bo, <i>et al.</i>	(1040)
Water Quality in the Henan Intake Area of the South-to-North Water Diversion Project	HUANG Piao-yi, XU Bin, GUO Dong-liang	(1046)
Spatio-Temporal Patterns and Environmental Risk of Endocrine Disrupting Chemicals in the Liuxi River	FAN Jing-jing, WANG Sai, TANG Jin-peng, <i>et al.</i>	(1053)
Fate and Origin of Major Ions in River Water in the Lhasa River Basin, Tibet	ZHANG Qing-hua, SUN Ping-an, HE Shi-yi, <i>et al.</i>	(1065)
Identification of Nitrate Sources and the Fate of Nitrate in Downstream Areas: A Case Study in the Taizi River Basin	LI Yan-li, YANG Zi-rui, YIN Xi-jie, <i>et al.</i>	(1076)
Sources, Distribution of Main Controlling Factors, and Potential Ecological Risk Assessment for Heavy Metals in the Surface Sediment of Hainan Island North Bay, South China	ZENG Wei-te, YANG Yong-peng, ZHANG Dong-qiang, <i>et al.</i>	(1085)
Characteristics of Heavy Metals Pollution of Farmland and the Leaching Effect of Rainfall in Tianjin	XU Meng-meng, LIU Ai-feng, SHI Rong-guang, <i>et al.</i>	(1095)
Seasonal Difference in Water Quality Between Lake and Inflow/Outflow Rivers of Lake Taihu, China	ZHA Hui-ming, ZHU Meng-yuan, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i>	(1102)
Characteristics of Nitrogen Release at the Sediment-Water Interface in the Typical Tributaries of the Three Gorges Reservoir During the Sensitive Period in Spring	LI Xin, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i>	(1113)
Spatial Distributions of Transferable Nitrogen Forms and Influencing Factors in Sediments from Inflow Rivers in Different Lake Basins	ZHOU Rui, YUAN Xu-yin, Marip Ja Bawk, <i>et al.</i>	(1122)
Effects of Hydrological and Meteorological Conditions on Diatom Proliferation in Reservoirs	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i>	(1129)
Vertical Distribution of Fungal Community Composition and Water Quality During the Deep Reservoir Thermal Stratification	SHANG Pan-lu, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i>	(1141)
Community Structure and Influencing Factors of Bacterioplankton in Spring in Zhushan Bay, Lake Taihu	XUE Yin-gang, LIU Fei, SUN Meng, <i>et al.</i>	(1151)
Characteristics of Sediment Oxygen Demand in a Drinking Water Reservoir	SU Lu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i>	(1159)
Effects of Wastewater Nitrogen Concentrations and NH ₄ ⁺ /NO ₃ ⁻ on Nitrogen Removal Ability and the Nitrogen Component of <i>Myriophyllum aquaticum</i> (Vell.) Verde	MA Yong-fei, YANG Xiao-zhen, ZHAO Xiao-hu, <i>et al.</i>	(1167)
Effect of Nutrient Loadings on the Regulation of Water Nitrogen and Phosphorus by <i>Vallisneria spiralis</i> and Its Photosynthetic Fluorescence Characteristics	ZHOU Yi-wen, XU Xiao-guang, HAN Rui-ming, <i>et al.</i>	(1180)
Removal of Organic Matter from Water by Chemical Preoxidation Coupled with Biogenic Manganese Oxidation	JIAN Zhi-yu, CHANG Yang-yang, WANG Li-xin, <i>et al.</i>	(1188)
Treating Simulated Dye Wastewater by an <i>In Situ</i> Copper Ferrite Process	HAN Zhi-yong, HAN Kun, HAO Hao-tian, <i>et al.</i>	(1195)
Experiment to Enhance Catalytic Activity of α -FeOOH in Heterogeneous UV-Fenton System by Addition of Oxalate	MIAO Xiao-zeng, DAI Hui-wang, CHEN Jian-xin, <i>et al.</i>	(1202)
Fabrication of a Biomass-Based Hydrous Zirconium Oxide Nanocomposite for Advanced Phosphate Removal	QIU Hui, QIN Zhi-feng, LIU Feng-ling, <i>et al.</i>	(1212)
Characteristic of Nitrate Adsorption in Aqueous Solution by Iron and Manganese Oxide/Biochar Composites	ZHENG Xiao-qing, WEI An-lei, ZHANG Yi-xuan, <i>et al.</i>	(1220)
Preparation of PAAm/HACC Semi-Interpenetrate Network Hydrogel and Its Adsorption Properties for Humic Acid from Aqueous Solution	LIU Ze-jun, ZHOU Shao-qi, MA Fu-zhen	(1233)
Groundwater Arsenic and Silicate Adsorption on TiO ₂ and the Regeneration of TiO ₂	MA Wen-jing, YAN Li, ZHANG Jian-feng	(1241)
Removal Efficiency and Mechanism of Removal by Humic Acid of the Integrated Floc-ultrafiltration Process	LI Wen-jiang, YU Li-fang, MIAO Rui, <i>et al.</i>	(1248)
Emission Inventory of Greenhouse Gas from Urban Wastewater Treatment Plants and Its Temporal and Spatial Distribution in China	YAN Xu, QIU De-zhi, GUO Dong-li, <i>et al.</i>	(1256)
Start-up and Operation of Biofilter Coupled Nitrification and CANON for the Removal of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen	LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i>	(1264)
Analysis of CANON Process Start-up with Fiber Carrier	GU Cheng-wei, CHEN Fang-min, LI Xiang, <i>et al.</i>	(1272)
Characteristics of Biofilm During the Transition Process of Complete Nitrification and Partial Nitrification	ZHAO Qing, BIAN Wei, LI Jun, <i>et al.</i>	(1278)
Effect of Intermediate-Setting Aeration on the CANON Granular Sludge Process in the AUSB Reactor	CHENG Shuo, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i>	(1286)
Effect of Organic Carbon Source on Start-up and Operation of the CANON Granular Sludge Process	LI Dong, WANG Yan-ju, LU Yu-feng, <i>et al.</i>	(1294)
Start-Up and Regional Characteristics of a Pilot-scale Integrated PN-ANAMMOX Reactor	ZHOU Zheng, WANG Fan, LIN Xing, <i>et al.</i>	(1301)
Effect of NO _x ⁻ -N Recycling Ratio on Denitrifying Phosphorus Removal Efficiency in the ABR-MBR Combined Process	LÜ Liang, YOU Wen, ZHANG Min, <i>et al.</i>	(1309)
Effects of Magnetic Fe ₃ O ₄ Nanoparticles on the Characteristics of Anaerobic Granular Sludge and Its Interior Microbial Community	SU Cheng-yuan, ZHENG Peng, LU Yu-xiang, <i>et al.</i>	(1316)
Characterization Composition of Soluble Microbial Products in an Aerobic Granular Sludge System	YANG Dan, LIU Dong-fang, DU Li-qiong, <i>et al.</i>	(1325)
Influence of Ciprofloxacin on the Microbial Community and Antibiotics Resistance Genes in a Membrane Bioreactor	DAI Qi, LIU Rui, LIANG Yu-ting, <i>et al.</i>	(1333)
Analysis of Low C/N Wastewater Treatment and Structure by the CEM-UF Combined Membrane-Nitrification/Denitrification System	XING Jin-liang, ZHANG Yan, CHEN Chang-ming, <i>et al.</i>	(1342)
Effects of Phosphorus on the Activity and Bacterial Community in Mixotrophic Denitrification Sludge	WANG Pei-qi, ZHOU Wei-li, HE Sheng-bing, <i>et al.</i>	(1350)
Acclimatization and Community Structure Analysis of the Microbial Consortium in Nitrate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation	XUE Song, ZHANG Meng-zhu, LI Lin, <i>et al.</i>	(1357)
Diffusion of Microorganism and Main Pathogenic Bacteria During Municipal Treated Wastewater Discharged into Sea	XU Ai-ling, NIU Cheng-jie, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i>	(1365)
Oxytetracycline Wastewater Treatment in Microbial Fuel Cells and the Analysis of Microbial Communities	YAN Wei-fu, XIAO Yong, WANG Shu-hua, <i>et al.</i>	(1379)
Spatial and Temporal Variability of Soil C-to-N Ratio of Yugan County and Its Influencing Factors in the Past 30 Years	JIANG Ye-feng, ZHONG Shan, LI Jie, <i>et al.</i>	(1386)
Spatial Heterogeneity of Soil Carbon and its Fractions in the Wolfberry Field of Zhongning County	WANG You-qi, ZHAO Yun-peng, BAI Yi-ru, <i>et al.</i>	(1396)
Response of Soil Enzyme Activities and Their Relationships with Physicochemical Properties to Different Aged Coastal Reclamation Areas, Eastern China	XIE Xue-feng, PU Li-jie, WANG Qi-qi, <i>et al.</i>	(1404)
Distribution, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils of the Central and Eastern Areas of the Qinghai-Tibetan Plateau	ZHOU Wen-wen, LI Jun, HU Jian, <i>et al.</i>	(1413)
Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Area Based on UNMIX Model	LU Xin, HU Wen-you, HUANG Biao, <i>et al.</i>	(1421)
Stabilization Effects of Fe-Mn Binary Oxide on Arsenic and Heavy Metal Co-contaminated Soils Under Different pH Conditions	FEI Yang, YAN Xiu-lan, LI Yong-hua	(1430)
Concentration and Distribution of Novel Brominated Flame Retardants in Human Serum from Three Chinese Cities	WANG Qing-hua, YUAN Hao-dong, JIN Jun, <i>et al.</i>	(1438)