

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第3期

Vol.34 No.3

2013

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社出版



林 龙 科 享 (HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第3期 2013年3月15日

目 次

BP 网络框架下 MODIS 气溶胶光学厚度产品估算中国东部 $PM_{2.5}$ 郭建平,吴业荣,张小曳,李小文(北京市近地层颗粒物浓度与气溶胶光学厚度相关性分析研究	817)
一样海峰, 辛金兀, 张ズ煜, 土跃思, 刘子锐, 陈传雷(气象因素对长三角背景地区甲烷浓度的影响分析————————————————————————————————————	826) 835)
密闭化填埋作业条件下的场内恶臭污染分布情况与分析	842) 849)
2000~2010年大鹏湾颗粒有机物的年变化相年际变化	857) 864) 874)
漳卫南运河流域非点源污染负荷估算及最佳管理措施优选	882) 892)
几龙江口湿地植物凋洛物对沉枳物有机质赋仔的贡献····································	900)
修复达标土壤回填対地ト水环境影响的层次化评估方法应用研究	914) 919)
城市污水处理厂及具受纲水体中 5 种典型 PPCPs 的赋仔特征和生态风险	927) 933) 943)
膜生物反应器处理工业废水中膜污染及膜过滤特性研究····································	950)
限生物反应器处理工业废水中限污染及限过滤符性研究 泡率红, 采素杯, 张培师, 三业球, 刘锐, 陈旨车(γ -Al Q 3 负载磷钨酸催化强化电化学法处理水中酸性大红 3R 的研究	955) 962) 968)
风快 化相列介油 及小 UADD-SF SDIT-MAI 又是工人工以则几	919)
连续流心下以城巾乃小培养好氧颗粒石泥及颗粒符性研究 午妹,校百川,宏作黑,刈壬峰,宏家铭,王聪,周开升(乙酸/丙酸作为 EBPR 碳源的动力学模型研究(Ⅱ)——模型的建立 张超,陈银广(乙酸/丙酸作为 EBPR 碳源的动力学模型研究(Ⅱ)——动力学模拟 张超,陈银广(986) 993) 998)
乙酸/丙酸作为 EBPR 碳源的动力学模型研究(Ⅲ)——模型的应用 ····································	1004)
正竣流念下以城巾乃水培养好氧颗粒行泥及颗粒特性研究 ······ · · · · · · · · · · · · · · ·	1026)
层次化健康风险评估方法任本污染场地的应用及效益评估	1034) 1044)
大金山岛土壤重金属污染评价及相关性分析 ·······················程芳,程金平,桑恒春,于金莲,席磊,皮帅帅(典型有色金属矿山城市小河流沉积物重金属形态分布及风险评估 ·············李如忠,姜艳敏,潘成荣,陈婧,徐晶晶(1062) 1067)
典型有色金属矿业城市零星菜地蔬菜重金属污染及健康风险评估 ········· 李如忠,潘成荣,徐晶晶,陈婧,姜艳敏(城市表层土壤磁化率与重金属含量分布的相关性研究 ··················	1076) 1086)
+ 大奶润序泥屋树上涨III 财灶料III 农	1101
三峡库区澎溪河底泥及消落区土壤磷的形态及吸附特性研究····································	1107) 1114)
至認為保險。相信与磷酸的符任研究 三峡库区澎溪河底泥及消落区土壤磷的形态及吸附特性研究 一球市的 X-100 在黄土上的吸附行为及影响因素 一切,一切,一切,一切,一切,一切,一切,一切,一切,一切,一切,一切,一切,一	1120) 1129)
太湖沉积物中多溴联苯醛和类— 呢 英多氯联苯的水平垂直分布 ————————————————————————————————————	1136) 1142)
柴油轿车颗粒多环芳烃的排放特性····································	1150) 1156)
固体添加剂对污泥焚烧过程中重金属迁移行为的影响 ····································	1166) 1174)
Cr ⁶⁺ 生物可利用度检测的微生物全细胞传感器 CB10 的构建及其响应特征 ········ 侯启会,马安周,庄绪亮,庄国强(反硝化脱硫工艺中微生物群落结构及动态分析 ····································	1181) 1190)
青海省西宁市与天峻县大气中得克隆与十溴联苯醚的水平与来源 何畅,金军,马召辉,王英,扎西卓玛,马丽花(太湖沉积物中多溴联苯醚和类二噻英多氯联苯的水平垂直分布 马召辉,金军,亓学奎,王英,姜霞,何松洁,李明圆(典型电器工业区河涌沉积物中有机污染物特征分析 "理不强,周舟,胡志远,楼秋明(机械炼焦过程生成飞灰中多环芳烃分布特征研究 华玲,彭林,刘效峰,白慧玲,张建强(万泥下化床与芦苇床稳定化污泥中多环芳烃的含量比较 崔玉波,孙红杰,冉春秋,李金凤,谢瑶(百体添加剂对污泥焚烧过程中重金属迁移行为的影响 "崔玉波,孙红杰,冉春秋,李金凤,谢瑶(传造废砂的环境毒性研究 "张海凤,王玉珏,王劲璘,黄天佑,熊鹰(Cr ^{6*} 生物可利用度检测的微生物全细胞传感器 CBIO 的构建及其响应特征 侯启会,马安周,庄绪亮,庄国强(反硝化脱硫工艺中微生物群落结构及动态分析 "庆北院和市场大加市区",中海,在"大水",中海,是"大",中海,"大","大","大","大","大","大","大","大","大","大"	1204)
有序介孔碳载金/L-赖氨酸/纳米金修饰电极的制备及其对邻苯二酚、对苯二酚的检测响应研究	1211)
《环境科学》征订启事(942) 《环境科学》征稿简则(992) 信息(932,949,1061,1210) 专辑征稿通知(1173)

典型热带林地土壤团聚体颗粒中重金属的分布特征及 其环境意义

龚仓1,4,徐殿斗1,成杭新2,任雅阁1,3,刘志明3,刘应汉2,刘飞2,聂海峰2,郑祥5,马玲玲1*

(1. 中国科学院高能物理研究所核分析技术重点实验室,北京 100049; 2. 中国地质科学院地球物理与地球化学勘查研究所地球表层碳-汞地球化学循环重点实验室,廊坊 065000; 3. 北京化工大学化学工程学院,北京 100029; 4. 成都理工大学材料与化学化工学院,成都 610059; 5. 中国人民大学环境学院,北京 100872)

摘要:以海口、琼海和屯昌的典型热带林地土壤为研究对象,采用干筛法获得 6 个粒级的土壤团聚体颗粒组.用 ICP-MS 测定了本土和不同团聚体颗粒中重金属 Cr、Ni、Cu、Zn、Cd、As 和 Pb 的含量,并对其分布特征及对有机碳和铁的响应进行了解析.研究表明,重金属在土壤各粒径团聚体颗粒组中差异性分布,随着团聚体粒径的减小而呈现富集增大的趋势,其中 Cr、Ni、Cu、Zn、Cd 和 Cd 主要富集在粉-黏团聚体(<53 μm)颗粒中; As 主要赋存在 53~1 000 μm 的颗粒组中.总体来讲,微团聚体(<250 μm)对土壤重金属含量贡献为 14.38%~65.04%,其中粉粒级团聚体(<53 μm)的贡献为 2.61%~32.01%.有机碳和铁氧化物含量随着团聚体粒径减小而升高,并与除了 As 及海口的 Cd 和 Pb 以外的其他重金属分布具有显著相关性.

关键词:重金属; 团聚体颗粒组; 有机碳; 林地; 分布特征

中图分类号: X144 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)03-1094-07

Distribution Characteristics and Environmental Significance of Heavy Metals in Soil Particle Size Fractions from Tropical Forests in China

GONG Cang^{1,4}, XU Dian-dou¹, CHENG Hang-xin², REN Ya-ge^{1,3}, LIU Zhi-ming³, LIU Ying-han², LIU Fei², NIE Hai-feng², ZHENG Xiang⁵, MA Ling-ling¹

(1. Key Laboratory of Nuclear Analytical Techniques, Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 2. Key Laboratory of Geochemical Cycling of Carbon and Mercury in the Earth's Critical Zone, Institute of Geophysical & Geochemical Exploration, Chinese Academy of Geological Sciences, Langfang 065000, China; 3. College of Chemical Engineering, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China; 4. College of Materials and Chemistry and Chemical Engineering, Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China; 5. School of Environment and Natural Resources, Renmin University of China, Beijing 100872, China)

Abstract: Three tropical forest soils were collected from Haikou, Qionghai and Tunchang in Hainan Island. Soil particle size fractionations were conducted using the standard dry-sieving procedure. Distribution of heavy metals in bulk samples and particle size fractions was determined by ICP-MS. The distribution characteristics and the response to organic carbon and iron were discussed. The results showed that the distribution of heavy metals was highly associated with the particle size fractions and variable patterns were found, which decreased with the increasing size. The accumulation of Cr,Ni,Cu,Zn,Cd and Cd was predominantly contributed by the particles finer than <53 μ m in diameter, whereas As mainly accumulated in particle size of 53-1 000 μ m. Generally, the microaggregate (<250 μ m) contributed 14. 38% -65. 04% of heavy metals to the contents in bulk soil and the silt-clay aggregates (<53 μ m) contributed 2. 61% -32. 01%. The content of heavy metals except for As and Cd and Pb in Haikou soil in these different size fractions were controlled by the organic carbon and iron contents, which increased with the decreasing particle size.

Key words: heavy metal; particle size fractions; organic carbon; forest soil; distribution characteristics

随着城市化进程和工农业的迅速发展,重金属污染已经成为危害全球环境质量的主要问题之一, 土壤中的重金属不仅影响植物的正常生长,还可以通过大气和水体引起二次污染,并通过食物链危害人体健康,因而备受关注^[1,2].据估计,我国约有上千万公顷土壤遭重金属的污染,对经济的可持续发展构成了严重威胁^[3].目前,众多研究都集中于农业土壤,而林地土壤重金属污染未能得到足够的 重视.

土壤团聚体是土壤最基本的物质和功能单元,各粒级颗粒因其组成差异及性质不同而对环境污染物

收稿日期: 2012-06-06; 修订日期: 2012-09-04

基金项目:中国地质调查局专项(1212011087123);国土资源部行业基金项目(200911020);国家自然科学基金项目(11075171,10905061)

作者简介: 龚仓(1987~),男,硕士研究生,主要研究方向为环境运动

* 通讯联系人,E-mail:malingling@ihep.ac.cn

的吸附特征也存在明显差异,污染物在土壤微环境中 的行为很大程度上受团聚体分配的制约,因而影响其 迁移性和生物有效性[4]. 众多对城市土壤、灰尘、农 业土壤和沉积物等团聚体颗粒中重金属的研究指 出[5~8],重金属的富集与颗粒大小存在密切关系[9]. 微团聚体(<250 μm) 土壤颗粒比表面积大, 有机物 含量高,有利于重金属的富集[10]. 同时,微团聚体易 被转移到空气、地表径流和深层土壤中[11],造成地表 水、深土和地下水重金属累积. 因此,研究土壤团聚 体颗粒组中重金属的分布特点对于阐明重金属的存 在和活性有着重要的意义. 目前,国内外对林地土壤 团聚体颗粒的研究主要集中在团聚体分型特征、养 分含量等方面[12~14],对其中重金属的富集特征鲜有 报道[15]. 至今,还没有重金属在典型热带林地土壤团 聚体中的研究,关于重金属在这些颗粒组中的富集特 征及影响因素还缺乏认识.

海南岛属于典型的热带海洋气候,是我国热带经济作物和反季水果的主要产地,海南国际旅游岛的规划,使得其环境问题得到了国内外社会的日益关注.林地作为海南重要的陆地生态,在抗风护堤、固碳释氧、保护环境和实现经济可持续发展中起着不可替代的作用.但是,近年来随着工农业的迅速发展,其林业土壤重金属污染问题日渐凸显[16~18].本研究以海南典型热带林地土壤团聚体颗粒为对象,以期为阐明热带林地团聚体颗粒对重金属的吸附特点及其机制提供依据,其结果作为环境风险评估和针对性修复污染土壤的依据更具有现实指导意义.

1 材料与方法

1.1 样品采集

2011 年采集海南省海口(110°34′E,19°44′N)、 琼海(110°36′E,19°22′N)和屯昌(110°09′E,19°23′N) 三地的林地土壤作为研究样品. 采样区域主要有橡 胶树、槟榔树和其他热带雨林,土壤均为砖红壤,呈 酸性,平均 pH 为 5.21. 每个采样点随机采集多个 0 ~20 cm 的表层土壤,混合成一个复合样品. 每个采 样点的本土用样品盒带回实验室后沿土壤自然结构 小心掰成小土块,拣去作物残根和石砺. 将土样平摊 在通风透气处,自然风干后于 -4℃保存.

1.2 土壤团聚体颗粒的分离

利用干筛法分离机械稳定性土壤团聚体. 根据 国内外的分级标准,以 250 μm 为界限将土壤颗粒 分为大团聚体(>250 μm, A)和微团聚体(<250 μm, M). 取适量风干后土样,在电动振筛机(8411 型)上以一定频率筛分 15 min,使其依次通过各孔径的套筛,得到 6 个粒径土壤颗粒(F6:>4000 μ m、F5: 4000~2000 μ m、F4: 2000~1000 μ m、F3: 1000~250 μ m、F2: 250~53 μ m 和 F1: <53 μ m),称量测定各孔筛上土壤质量,计算土壤的机械稳定性团聚体颗粒粒级组成.各级样品密封于聚乙烯袋中保存待测.

1.3 样品分析

称取本土和不同粒级的土壤样品各 1.50 g,用 $HNO_3/HClO_4/HF$ (MOS 级,北京化工厂)消解.每 10 个样品包括 2 个重复样品和 2 个空白样品,消解完全后的样品利用 ICP-MS(Thermo-X7)测定重金属镉(Cd)、镍(Ni)、铜(Cu)、锌(Zn)、砷(As)、铬(Cr)和铅(Pb)的含量.用西藏标准土壤(GBW 08302,购于中国计量研究院,北京)进行质量控制,Ni、Cu、Zn、Cr、As、Cd 和 Pb 的回收率分别为: $78\% \sim 98\%$ 、 $92\% \sim 131\%$ 、 $83\% \sim 106\%$ 、 $86\% \sim 96\%$ 、 $102\% \sim 110\%$ 、 $90\% \sim 123\%$ 和 $99\% \sim 103\%$.重复样品和空白样品相对标准偏差分别小于 10% 和 5%.数据处理时均扣去空白值.

土壤总有机碳含量(TOC)的测定: 称取 0. 25 g 样品,加入 10 mL 1 mol·L⁻¹ 的 $K_2Cr_2O_7$ - H_2SO_4 溶液 和 20 mL 浓 H_2SO_4 ,以邻菲啰呤为指示剂,用 0. 50 mol·L⁻¹硫酸亚铁铵滴定.

1.4 评价方法

(1)分布因子(DF_x) 分布因子法能评价每个 粒径土壤颗粒中重金属元素的富集情况,计算公式 如下^[19]:

$$DF_x = c_{fraction}/c_{bulk}$$

式中, c_{fraction} 不同粒径重金属元素的含量 (mg·kg^{-1}) ; c_{bulk} 为本土中相应重金属元素的含量 (mg·kg^{-1}) . 如果 DF_{*} >1,表示该重金属富集于相应的粒径颗粒中.

(2)金属质量负载法(metals loading) 金属负荷是最重要的污染指数之一,用于评价每个粒径组(GSF)重金属的质量负载,评价各粒组重金属的贡献. 计算公式如下^[5]:

$$\operatorname{GSF}_{\operatorname{loading}} = (c_i \times \operatorname{GS}_i) / (\sum_{i=1}^{6} (c_i \times \operatorname{GS}_i)) \times 100$$

式中, c_i 为各个粒径中的重金属元素含量; GS_i 为相

式中, c_i 为各个粒径中的重金属元素含量; GS_i 为相应粒径的质量分数,范围为 $1\% \sim 100\%$.

2 结果与讨论

2.1 土壤性质

供试土壤样品的物理化学性质见表 1. 海口土壤

样品中 53~250 μm 团聚体颗粒组占最大比例 (48.09%); 而在琼海和屯昌土壤样品中,2000~4000 μm 的团聚体颗粒组所占比例最大,分别是 34.79%和33.61%. <53 μm 的最小粒径团聚体颗粒组含量均较低,在海口、琼海和屯昌土壤中分别为 4.92%、5.03%和9.03%. 土壤中有机碳与污染物的强络合能力已经引起了众多的关注,而团聚体是土壤有机质分解转化和腐殖质形成的最重要场所. 如前言所述,由于粉黏颗粒组中的有机碳生物稳定性强,其所吸附的重金属更容易对环境造成更严重的危害^[7,15],因此在环境风险评估中应当引起重视.

如表 1 所示,海口、琼海和屯昌土壤有机碳含量分别为 22.62、11.95 和 10.70 g·kg⁻¹,其中海口土壤有机碳含量与海南省农用土壤有机碳平均值(22.99 g·kg⁻¹)相当,而琼海和屯昌土壤有机碳明显较低.供试样品均呈现随粒径减小而有机碳含量增加的趋势,其在 <53 μm 颗粒组中含量最高,即海口 28.89 g·kg⁻¹、琼海 21.52 g·kg⁻¹和屯昌 17.81 g·kg⁻¹.另外,铁氧化物的吸附作用被认为是土壤重金属离子保留的主要机制之一^[20,21].海口土壤中Fe 含量为 45.43 g·kg⁻¹,琼海和屯昌土壤的 Fe 含量

相对较低,分别为 8. 95 g·kg⁻¹和 5. 38 g·kg⁻¹. 各团 聚体土壤颗粒中 Fe 含量分布与有机碳分布相似,即 <53 μ m 颗粒组中 Fe 含量最大,其中,海口 55. 00 g·kg⁻¹、琼海 17. 31 g·kg⁻¹和屯昌 17. 81 g·kg⁻¹.

下文将进一步讨论土壤团聚体有机碳以及铁氧 化物含量和重金属分布的关系.

2.2 重金属分布与富集

本土中 Cr 等 7 种重金属含量见表 1. 值得注意的是,海口土壤中 Cr、Ni、Cu 和 Zn 的含量为165.57、129.93、168.64 和 108.12 g·kg⁻¹,为琼海本土重金属含量的 12.12、21.69、10.30 和 3.03倍,是屯昌本土重金属含量的 17.45、71.00、13.28和4.77倍.并且,Cr、Ni 和 Cu 的含量明显超出为保障农业生产和维护人体健康而制定的国家农业土壤环境质量二级标准(Cr:150 mg·kg⁻¹; Ni:40mg·kg⁻¹; Cu:150 mg·kg⁻¹),但均小于为保障农林业生产和植物正常生长的土壤临界值(Cr:300mg·kg⁻¹; Ni:200 mg·kg⁻¹; Cu:400 mg·kg⁻¹).该土壤母质中有很高的 Cr、Ni、Cu 和 Zn 含量,可能与该采样区土壤是海南岛玄武岩风化的铁质砖红壤有一定的关系^[22].

表 1 供试土壤本土和团聚体颗粒组性质及重金属含量

Table 1	Properties and	contents of heavy	metals in the bull	k soil and their	particle size fractions
---------	----------------	-------------------	--------------------	------------------	-------------------------

	Та	able l Prop	erties and con	itents of heav	y metals in the		d their particle		3	
团聚体颗粒组	质量分数	总有机碳	铁氧化物				含量/mg·kg-	1		
/µm	/%	/g•kg ⁻¹	/g•kg ⁻¹	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb
海口										
本土		22.62	45. 43	165. 57	129. 93	168.64	108. 12	1.41	0.20	9. 27
F1	4. 92	28. 89	55.00	204. 22	134. 99	199. 36	161.34	1.47	0.44	13. 25
F2	48. 09	22.01	52. 95	168. 81	128. 22	164. 67	104. 10	1.77	0.18	6. 59
F3	27.00	22. 39	30. 58	161.76	121.45	176. 27	112.56	1.70	0. 23	14. 19
F4	11.09	23.46	44. 39	161.58	124. 67	161. 29	104. 51	0. 13	0.08	7. 84
F5	5. 57	23. 69	45. 51	164. 79	125. 58	161.65	98. 87	0. 22	0.07	9. 72
F6	3. 34	21.83	31.91	142. 58	117. 82	154. 89	107.04	0.32	0.18	8. 58
琼海										
全土		11. 95	8.95	13.66	5. 99	16. 38	35. 73	2. 10	0. 15	16.60
F1	5. 03	21.52	17. 31	34. 07	20.86	59. 35	116.75	1.09	0.37	41.06
F2	9. 23	14.08	10.64	18.68	9.78	32. 96	57. 51	2. 68	0. 29	27. 95
F3	17. 75	9. 24	8. 10	13. 26	4. 03	9. 99	25. 73	4. 17	0.10	14. 21
F4	27.81	7.87	4. 95	5. 68	2. 20	6. 44	14. 87	3. 23	0.07	5. 97
F5	33. 61	15. 86	10. 39	15. 48	6.83	16.72	38. 89	0.43	0. 17	18.87
F6	6. 57	10. 24	11.68	16. 54	6. 36	17. 69	42. 34	0. 25	0. 20	21.67
屯昌										
本土		10.70	5. 38	9.49	1.83	12.70	22.66	1. 37	0. 17	11. 93
F1	9.03	17.81	11.76	25. 37	4. 63	37. 97	81.00	1.03	0.44	29. 21
F2	10. 96	10.87	5.51	7. 03	1.46	16.40	23.50	1.70	0. 20	15. 39
F3	12.61	9. 12	5.48	4. 89	0.61	7. 90	13.82	3. 58	0. 10	8. 44
F4	23.86	9. 26	2.40	10.99	1.94	8.72	17. 20	1. 69	0.06	8. 27
F5	34. 79	9. 57	6. 59	8. 67	2.01	12. 23	19.50	0. 59	0. 19	12.88
F6	8. 75	10. 25	1.55	1.91	0.08	1. 67	1.63	0.35	0. 15	1.03

不同粒径土壤团聚体颗粒中重金属分布的特点,将影响土壤中重金属的环境行为.不同粒径颗粒中重金属分布因子如图 1 所示,总体来讲,除了 As 外,其它 6 种重金属具有类似的分布模式,即随着团聚体粒径的减小而呈现富集增大的趋势,在粉-黏团聚体颗粒组中的分布因子最高,是本土含量的 1.04~3.62倍,表明各种途径进入土壤的重金属最终倾向被吸附在小粒径的团聚体颗粒中.前人的相关研究中指出,小粒径颗粒比表面积大以及负电荷的存在使得重金属元素最终被保护起来而较难被消耗^[5,9,19].

不同采样区域土壤团聚体重金属的分布存在明显差异,总体上,除了 As 和 Cd 外,琼海和屯昌土壤样品中其他重金属在粉黏团聚体中的分布因子都明显高于海口的,且 Cr、Cu 和 Zn 在海口不同粒径土壤团聚体的分布因子变化较平坦,而琼海和屯昌土

壤样品中7种重金属在不同颗粒粒组中的分布因子均呈剧烈变化,这很可能是由于琼海和屯昌样品粒径在250~2000 μm 的团聚体中含沙量较大,从而降低了这些团聚体对重金属的吸附能力. Ljung等^[23]研究指出,在含沙58%的土壤中,<50 μm 团聚体中的重金属含量约为本土的两倍,而在含沙13%的土壤中该比例约为1,这佐证了笔者的推断. 另外,海口样品中的 Pb 除在最小粒径中明显赋存外,在250~1000 μm 团聚体组中也有较大的分布因子(1.53). 李恋卿等^[6]对水稻土的研究也指出, Pb 主要赋存在在<20 μm 和250~2000 μm 团聚体颗粒土壤中. As 在全部样品中主要富集在53~1000 μm 的团聚体土壤中,特别是琼海和屯昌林地土壤中,250~1000 μm 团聚体组中有最大分布因子1.98 和 2.61.

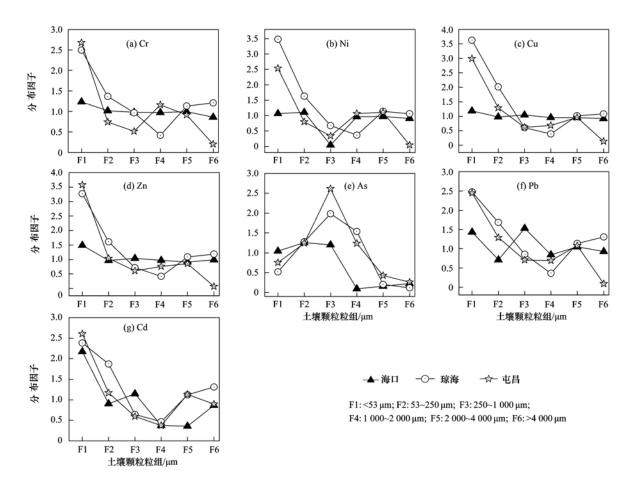


图1 重金属土壤颗粒组中的分布因子

Fig. 1 Distribution factors of heavy metals in various grain size fractions

土壤重金属元素不仅被束缚在比表面积大的细粒径颗粒中,而且在粗颗粒中也存在明显的富集,这可能是由于大气沉降等新输入的重金属最初先被吸

附在大颗粒土壤中,并且含重金属的细颗粒在一定 条件下可聚合成粗团聚体等复合因素造成的^[7]. 大 小土壤颗粒组分中重金属富集程度的较大变异,说 明重金属在海南林地土壤颗粒间活动活跃而容易迁移,这一点应该在环境风险评估中引起重视.

2.3 重金属质量负载

各土壤团聚体颗粒组的重金属质量负载如图 2 所示,在海口土壤样品中,除 Pb 外的其它 6 种重金属在 53~250 μm 的颗粒组中的质量分数最高,为 45.78%~59.95%,其次是 250~1000 μm 粒组,占 26.06%~32.84%; Pb 则相反,在 250~1000 μm 粒组中有最大质量分数 40.98%,其次,33.90%的贡献量来自于 53~250 μm 粒组;而在最小粒径颗粒组(<53 μm)中,7 种重金属的质量分数较低,为 5.28%~11.45%.在琼海土壤样品中,除 As 的其它 6 种重金属的最大贡献量来自于 2000~4000 μm 颗粒组,占 34.32%~38.31%,在粒径<53 μm 粉粒级团聚体中的质量分数为12.17%~18.23%; As 的最大贡献量来自于1000~2000 μm 颗粒组,为 42.74%,粒径 250~1000 μm 颗粒组也贡献了 35.22%的 As,而粉粒级团聚

体仅贡献了 2.61% 的 As. 在屯昌土壤样品中,除 As 和 Zn 外的其它 5 种重金属在2 000 ~ 4 000 μm 粒组中的质量分数最高,即 31.81%~40.82%,在 <53 μm 的粉粒级团聚体中所占比例高达 21.90%~28.86%; As 的最大贡献量来自于250 ~1000 µm 颗粒中(33.51%),而在粉粒级团聚体 中仅为 6.68%; Zn 的最大贡献量来自于 < 53 μm 的最小粒径颗粒组中(32.01%). 总体来讲,所有 土壤样品中的7种重金属的最小贡献量均来自 >4 000 µm 的最大粒径颗粒组,为 0.64% ~ 8.60%; 而在微团聚体(<250 μm)的贡献量为 14.38%~65.04%,其中, < 53 μm 的粉粒级团聚 体中的贡献量在 2.61% ~ 32.01% 之间变动. Wang 等^[9]对道路土壤的研究中发现, < 45 μm 团 聚体的重金属贡献量在 2.9% ~18.3% 之间波动. 而 Acosta 等^[7]的研究中发现,未被干扰土壤的 Pb、 Zn、Cu 和 Cd 在 50 ~ 20 μm 水稳性团聚体组中的 贡献量为 24%、23%、25% 和 24%.

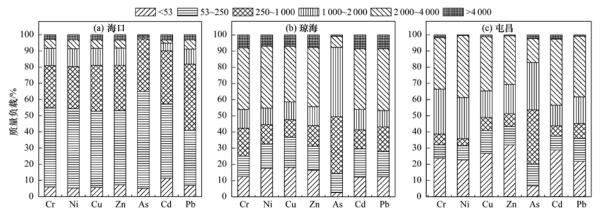


Fig. 2 Heavy metal mass loading of six particle size fractions in forest soil

图 2 重金属在林地土壤颗粒组中的质量负载

2.4 重金属与有机碳和铁含量的关系

土壤有机碳是原状土壤颗粒中重金属移动和分配的驱动与控制因素^[24]. 图 3 展示了海口、琼海和屯昌林地土壤团聚体颗粒中重金属赋存与有机碳含量的相关性. 除了 As 以外, Cr、Ni、Cu、Zn、Cd 和Pb 的含量均与土壤有机碳含量分布呈正相关性. 这表明土壤团聚体中有机碳含量分布对众多重金属的分布具有很大的影响力,其他学者的研究也有相似结论^[6,25]. 有机碳含量丰富的海口土壤中, As 与有机碳含量无明显关系, 而在有机碳含量较少的琼海和屯昌林地中, As 含量与有机碳呈现负相关. 以上说明, As 在林地土壤中不容易被有机碳吸附"固持", 从而容易在颗粒间迁移, 这也是 As 在土壤微

域环境中分布差异较大的原因.

除了有机碳,铁氧化物的吸附作用被认为是土壤重金属离子保留的主要机制之一 $[^{20}]$,本研究也证明了这一点(图 4). 除 As 和海口的 Cd 和 Pb 外,其他的重金属均与土壤 Fe 含量呈正相关性,表明团聚体中 Fe 的分布也是重金属富集的重要影响因素之一. Acosta 等 $[^{10}]$ 对处女地团聚体的 Zn、Cu 和 Cd 与 Fe 含量相关性研究中,展示了极显著正相关性(P < 0.01, r 为 $0.64 \sim 0.71$). 琼海As 与 Fe 呈负相关性,海口和屯昌的 As 与 Fe 无相关性,Cai 等 $[^{26}]$ 研究出,As 与 Fe 呈弱相关性($R^2 = 0.48$),但团聚体土壤中 Mn 含量对 As 的分布存在很强的影响($R^2 = 0.77$).

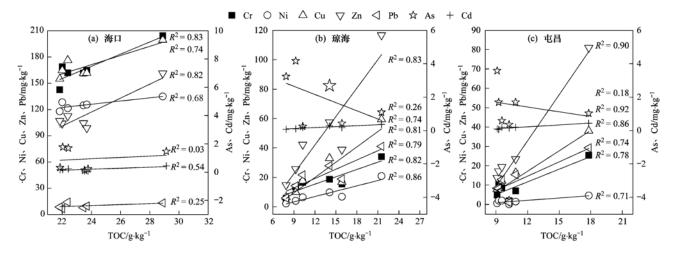


图 3 土壤颗粒中重金属与有机碳含量的关系

Fig. 3 Correlation between the heavy metal contents and the TOC content in the size fractions

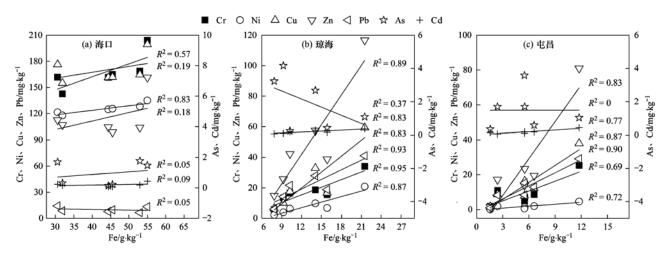


图 4 土壤颗粒中重金属与铁含量的关系

Fig. 4 Correlation between the heavy metals metal contents and the Fe content in the size fractions

3 结论

海口林地土壤中的 Cr、Ni、Cu 和 Zn 含量高,但都没超出为保障林业和植物正常生长的土壤临界值.除 As 外,其它 6 种重金属总体呈现随团聚体颗粒粒径减小而增大的趋势,在最小粒径(<53 µm)有最大含量,使得微团聚体土壤颗粒(<250 µm)对本土中重金属的含量贡献率高达 20.14%~65.04%. As 在53~1000 µm 颗粒中有最大赋存,在<53 µm 团聚体中分布量较低,但微团聚体颗粒(<250 µm)也贡献了 14.38%.微团聚体容易迁移,其对重金属的富集具有潜在的环境风险.除 As 及海口土壤中 Cd 和 Pb 外,土壤有机碳和铁含量与其他重金属在土壤颗粒间的富集有显著的相关性.

致谢:感谢中国地质科学院地球物理与地球化 学勘查研究所及相关单位在样品采集中的大力

协助!

参考文献:

- [1] Huang S W, Jin J Y. Status of heavy metals in agricultural soils as affected by different patterns of land use [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2008, 139(1-3): 317-327.
- [2] Järup L. Hazards of heavy metal contamination [J]. British Medical Bulletin, 2003, 68(1): 167-182.
- [3] 赵新双. 土壤污染现状及防治措施[J]. 现代农业科技, 2009, (12): 37-39.
- [4] 潘根兴. 地球表层系统土壤学[M]. 北京: 地质出版社, 2000.22-45.
- [5] Sutherland R A. Lead in grain size fractions of road-deposited sediment[J]. Environmental Pollution, 2003, 121(2): 229-237.
- [6] 李恋卿,潘根兴,张平究,等.太湖地区水稻土颗粒中重金属元素的分布及其对环境变化的响应[J].环境科学学报,2001,21(5):607-611.
- [7] Acosta J A, Faz á, Kalbitz K, et al. Heavy metal concentrations

- in particle size fractions from street dust of Murcia (Spain) as the basis for risk assessment [J]. Journal of Environmental Monitoring, 2011, 13(11): 3087-3096.
- [8] Danis B, Wantier P, Dutrieux S, et al. Contaminant levels in sediments and asteroids (Asterias rubens L., Echinodermata) from the Belgian coast and Scheldt estuary: polychlorinated biphenyls and heavy metals [J]. Science of the Total Environment, 2004, 333(1-3): 149-165.
- [9] Wang X S, Qin Y, Chen Y K. Heavy meals in urban roadside soils, part 1: effect of particle size fractions on heavy metals partitioning[J]. Environmental geology, 2006, 50(7): 1061-1066.
- [10] Acosta J A, Martínez-Martínez S, Faz A, et al. Accumulations of major and trace elements in particle size fractions of soils on eight different parent materials[J]. Geoderma, 2011, 161(1-2): 30-42
- [11] Uusitalo R, Turtola E, Kauppila T, et al. Particulate phosphorus and sediment in surface runoff and drainflow from clayey soils [J]. Journal of Environmental Quality, 2001, 30 (2): 589-595.
- [12] 郭灵辉, 王道杰, 张云红, 等. 泥石流源区新银合欢林地土 壤微团聚体分形特征[J]. 水土保持学报, 2010, **24**(5): 243-247.
- [13] Jiménez J J, Lorenz K, Lal R. Organic carbon and nitrogen in soil particle-size aggregates under dry tropical forests from Guanacaste, Costa Rica-implications for within-site soil organic carbon stabilization[J]. Catena, 2011, 86(3): 178-191.
- [14] 葛东媛, 张洪江, 郑国强, 等. 重庆四面山 4 种人工林地土 壤粒径分形特征 [J]. 水土保持研究, 2011, **18**(2): 148-151.
- [15] Semlali R M, Van Oort F, Denaix L, et al. Estimating distributions of endogenous and exogenous Pb in soils by using Pb isotopic ratios [J]. Environmental Science and Technology, 2001, 35(21): 4180-4188.
- [16] 辛琨, 赵广孺, 孙娟, 等. 红树林土壤吸附重金属生态功能

- 价值估算——以海南省东寨港红树林为例[J]. 生态学杂志, 2005, 24(2); 206-208.
- [17] 丘耀文, 余克服. 海南红树林湿地沉积物中重金属的累积 [J]. 热带海洋学报, 2011, 30(2): 102-108.
- [18] 王仁恩,杨文杰,张钰,等.不同红树林群落土壤吸附重金属的研究[J].安徽农业科学,2012,40(4):2037-2038.
- [19] Acosta J A, Cano A F, Arocena J M, et al. Distribution of metals in soil particle size fractions and its implication to risk assessment of playgrounds in Murcia City (Spain) [J]. Geoderma, 2009, 149(1-2); 101-109.
- [20] Wragg J, Cave M, Nathanail P. A Study of the relationship between arsenic bioaccessibility and its solid-phase distribution in soils from Wellingborough, UK[J]. Journal of Environmental Science and Health, Part A, 2007, 42(9): 1303-1315.
- [21] Dixit S, Hering J G. Comparison of arsenic (V) and arsenic (III) sorption onto iron oxide minerals; implications for arseni mobility [J]. Environmental Science and Technology, 2003, 37 (18): 4182-4189.
- [22] 郭宇, 吴国爱, 杨奕, 等. 海南菠萝种植地土壤重金属环境地球化学研究[J]. 环境科学与技术, 2010, **33**(4): 100-103.
- [23] Ljung K, Selinus O, Otabbong E, et al. Metal and arsenic distribution in soil particle sizes relevant to soil ingestion by children [J]. Applied Geochemistry, 2006, 21 (9): 1613-1624.
- [24] 李恋卿,潘根兴,张平究,等. 植被恢复对退化红壤表层土壤颗粒中有机碳和 Pb、Cd 分布的影响[J]. 生态学报,2001,21(11):1769-1774.
- [25] Quenea K, Lamy I, Winterton P, et al. Interactions between metals and soil organic matter in various particle size fractions of soil contaminated with waste water [J]. Geoderma, 2009, 149 (3-4); 217-223.
- [26] Cai Y, Cabrera J C, Georgiadis M, et al. Assessment of arsenic mobility in the soils of some golf courses in South Florida [J]. Science of the Total Environment, 2002, 291(1-3): 123-134.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 34 No. 3 Mar. 15, 2013

CONTENTS

Estimation of DM Estimated the MODIS Association of David University David Description of New Johnson	CHO I:
Estimation of PM _{2,5} over Eastern China from MODIS Aerosol Optical Depth Using the Back Propagation Neural Network Comparison of Atmospheric Particulate Matter and Aerosol Optical Depth in Beijing City	
Impacts of Meteorological Factors on Atmospheric Methane Mole Fractions in the Background Area of Yangtze River Delta	PU Jing-Jiao, AU riong-nui, GU Jun-qiang, et al. (853)
Dispersion and Analysis of Odor Pollution in Landfill Area Under the Enclosed Operation Condition	
Distribution Characteristics and Sea-Air Fluxes of Volatile Halocarbons in the East China Sea in Winter	
Intra- and Inter-annual Variabilities of Particulate Organic Matter in the Mirs Bay from 2000 to 2010	
Phytoplankton Assemblages and Their Relation to Environmental Factors by Multivariate Statistic Analysis in Bohai Bay	······ ZHOU Ran, PENG Shi-tao, QIN Xue-bo, et al. (864)
Characteristics and Evolution of Hydrochemical Compositions of Freshwater Lake in Tibetan Plateau	· · WANG Peng, SHANG Ying-nan, SHEN Li-cheng, et al. (874)
Estimation of Nonpoint Source Pollutant Loads and Optimization of the Best Management Practices (BMPs) in the Zhangweinan Rive	er Basin XU Hua-shan, XU Zong-xue, LIU Pin (882)
An Object-Oriented Intelligent Engineering Design Approach for Lake Pollution Control	ZOU Rui ZHOU Jing LIU Yong et al. (892)
Contribution of Plant Litters to Sediments Organic Matter in Jiulong River Estuary Wetland	
Application of Tiered Approach to Assess the Impact of Backfilling Remediated Soil on Groundwater	
Removal of Nitrate from Groundwater Using Permeable Reactive Barrier	II Vin li VANC lun iun III Vino vin et al. (014)
Research on Pollution Load of Sediments in Storm Sewer in Beijing District	LI Alu-II, TANG Juli-Juli, LO Alao-xia, et al. (214)
• 0	
Occurrence and Risk Assessment of Five Selected PPCPs in Municipal Wastewater Treatment Plant and the Receiving Water	WEN Zhi-hao, DUAN Yan-ping, MENG Xiang-zhou, et al. (927)
Microbial Risk Assessment of Urban Water Bodies for Aesthetical and Recreational Uses	
Study on Removal of Di-(2-Ethylhexyl) Phthalate by Using of Small-Scale Biological Aerated Filter	
Mechanism of Membrane Fouling and Filtration Characteristics in a Membrane Bioreactor for Industrial Wastewater Treatment	
Enhanced Electro-Chemical Oxidation of Acid Red 3R Solution with Phosphotungstic Acid Supported on γ-Al ₂ O ₃ ····································	········· YUE Lin, WANG Kai-hong, GUO Jian-bo, et al. (955)
Degradation Kinetics of Activated Carbon Catalyzed Persulfate Oxidation Orange G	·········· YANG Mei-mei, ZHOU Shao-qi, LIU Dan, et al. (962)
Study on the Start-up of the Anaerobic Baffled Reactor for Treating Alkali-deweighting and Dyeing-printing Wastewater	
Study on the Pollutants Removal Performance Along the Advanced Treatment in Tannery Wastewater by O ₃ -BAF	······································
Effect of Pilot UASB-SFSBR-MAP Process for the Large Scale Swine Wastewater Treatment	·· WANG Liang CHEN Chong-jun CHEN Ying-yu et al. (979)
Cultivation of Aerobic Granular Sludge with Municipal Wastewater and Studies on Its Characteristics Under the Continuous Flow	
Kinetic Model of Enhanced Biological Phosphorus Removal with Mixed Acetic and Propionic Acids as Carbon Sources (I): Model	
Kinetic Model of Enhanced Biological Phosphorus Removal with Mixed Acetic and Propionic Acids as Carbon Sources (II): Process	
Kinetic Model of Enhanced Biological Phosphorus Removal with Mixed Acetic and Propionic Acids as Carbon Sources (III): Model	
Comparative Study on Water-air CO2, CH4 Flux in Two Tributaries in the Three Gorges Reservoir, China	
Factors Influencing the Spatial Variability in Soil Respiration Under Different Land Use Regimes	····· CHEN Shu-tao, LIU Qiao-hui, HU Zheng-hua, et al. (1017)
Differences in Soil Respiration Between Cropland and Grassland Ecosystems and Factors Influencing Soil Respiration on the Loess Pl	ateau ·····
	· ZHOU Xiao-gang, ZHANG Yan-jun, NAN Ya-fang, et al. (1026)
Application and Benefit Evaluation of Tiered Health Risk Assessment Approach on Site Contaminated by Benzene	
History of Heavy Metal Pollution from Tidal Flat in Haizhou Bay	ZHANG Rui ZHANG Fan LIII Fu-cheng et al. (1044)
Accumulation, Distribution and Pollution Assessment of Heavy Metals in Surface Sediment of Caohai Plateau Wetland, Guizhou Pro	
Accumulation, Distribution and Foliation Assessment of Heavy steals in Surface Seament of Gaonal Flateau Wetania, Outziou 110	7HANC Oing hai LIN Chang hu TAN Hang at al. (1055)
Assessment and Correlation Analysis of Heavy Metals Pollution in Soil of Dajinshan Island	CHENC Forg CHENC lin ping SANC Hong obun et al. (1062)
Fraction Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Stream Sediments from a Typical Nonferrous Metals Mining City	
Contamination and Health Risk for Heavy Metals via Consumption of Vegetables Grown in Fragmentary Vegetable Plots from a Typic	al Nonferrous Metals Mine City
	····· LI Ru-zhong, PAN Cheng-rong, XU Jing-jing, et al. (1076)
Correlativity Study of the Distribution of Soil Magnetic Susceptibility and the Heavy Metal Contents in Xi'an City	
Distribution Characteristics and Environmental Significance of Heavy Metals in Soil Particle Size Fractions from Tropical Forests in C	lhina ·····
Domination of the Control of the Con	
Study on Phosphorus Adsorption Characteristic of Sediments in an Ecological Ditch	···· ZHANG Shu-nan, JIA Zhao-yue, XIAO Run-lin, et al. (1101)
Fractions and Adsorption Characteristics of Phosphorus on Sediments and Soils in Water Level Fluctuating Zone of the Pengxi River,	a Tributary of the Three Gorges Reservoir
	SUN Wen-bin DU Bin ZHAO Xiu-lan et al. (1107)
Sorption Behavior of Triton X-100 on Loess and Affecting Factors	
Residual Levels in Air, Soil and Soil-Air Exchange of Organochlorine Pesticides in Hami Region of Xinjiang and Its Potential Ecolog	
residual Levels in Air, 30ir and 30ir Air Exchange of Organochiothic Festicides in Haim Region of Airijiang and its Foreitial Leono	MA 7: long MAO Vice much DINC 7hong much et al. (1120)
Levels and Sources of Decabromodiphenyl Ether and Dechlorane Plus in Xining and Tianjun, Qinghai Province, China	
Vertical Distribution of PBDEs and DL-PCBs in Sediments of Taihu Lake	
Characteristics of Organic Pollutants in the Sediments from a Typical Electronics Industrial Zone	
Emission Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Exhaust Particles from a Diesel Car	
Characterization of PAHs in Fly Ashes from Coke Production · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
Comparison of PAHs Distribution in Stabilized Sludge by Sludge Drying Bed and Reed Bed	······ CUI Yu-bo, SUN Hong-jie, RAN Chun-qiu, et al. (1161)
Effects of Adsorbents on Partitioning and Fixation of Heavy Metals in the Incineration Process of Sewage Sludge	LIU Jing-yong, SUN Shui-yu, CHEN Tao (1166)
Environmental Toxicity of Waste Foundry Sand	
Construction and Properties of a Microbial Whole-cell Sensor CB10 for the Bioavailability Detection of Cr ⁶⁺	
Structure and Dynamics of Microbial Community in the Denitrifying Sulfide Removal Process	
Effects of Physico-chemical Parameters on the Abundance of the Denitrification-associated Genes nirK, nirS and nosZ During Agricu	
Effects of Physico-chemical Parameters on the Abundance of the Denitrification-associated Genes nith, nits and nosz During Agricu	HII Chan vice CHEN Version THANG P. 1 (1106)
Impact of PAHs on the Expression of PRDX in Earthworm (Eisenia fetida)	
Preparation of OMC-Au/L-Lysine/Au Modified Glassy Carbon Electrode and the Study on Its Detection Response to Hydroquinone at	nd Catechol
Topaution of State 1 and	ZHOU Yao-vu TANG Lin LI Zhen et al. (1211)
Risk Communication in Construction of New Nuclear Power Plant	

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编:欧阳自远

副主编:赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军

朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明

欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞

黄耀 鲍强潘纲潘涛魏复盛

环维种草

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊) 2013年3月15日 34卷 第3期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 3 Mar. 15, 2013

主	管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences		
主	办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese		
协	办	(以参加先后为序)			Academy of Sciences		
		北京市环境保护科学研究院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental		
		清华大学环境学院			Protection		
主	编	欧阳自远			School of Environment, Tsinghua University		
编	辑	《环境科学》编辑委员会	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan		
21111	14	北京市 2871 信箱(海淀区双清路	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING		
		18 号,邮政编码:100085)			KEXUE)		
		电话:010-62941102,010-62849343			P. O. Box 2871, Beijing 100085, China		
		传真:010-62849343			Tel:010-62941102,010-62849343; Fax:010-62849343		
		E-mail; hjkx@ rees. ac. cn			E-mail; hjkx@ rcees. ac. cn		
		http://www.hjkx.ac.cn			http://www. hjkx. ac. cn		
出	版	4 星 虫 版 社	Published	by	Science Press		
щ	/VX	北京东黄城根北街 16 号			16 Donghuangchenggen North Street,		
		邮政编码:100717			Beijing 100717, China		
印刷装	ìΤ	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House		
发	行	斜学出版社	Distributed	by	Science Press		
		电话:010-64017032			Tel:010-64017032		
		E-mail:journal@mail.sciencep.com			E-mail:journal@mail.sciencep.com		
订 购	处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China		
国外总发	钪行	中国国际图书贸易总公司	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji		
		(北京 399 信箱)			Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China		

中国标准刊号: ISSN 0250-3301 CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价:90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行