

DOI: 10.11766/trxb201812130538

大气沉降对土壤和作物中重金属富集的影响及其研究进展*

刘 鹏^{1, 2} 胡文友^{1†} 黄 标¹ 刘本乐^{1, 2} 周 怡^{1, 3}

(1 土壤环境与污染修复重点实验室(中国科学院南京土壤研究所), 南京 210008)

(2 中国科学院大学, 北京 100049)

(3 扬州大学环境科学与工程学院, 江苏扬州 225127)

摘 要 以我国农田土壤-作物-大气系统为研究对象, 综述了近年来大气沉降中重金属的来源及时空分布规律以及大气沉降对农田土壤和作物中重金属富集的影响及其研究进展。人为活动产生的重金属进入大气后, 受多种自然和人为因素及环境保护政策等综合因素的影响, 导致大气沉降中的重金属具有明显的时空分异特征: 从时间分异来看, 大气重金属含量呈现出冬季高于其他季节, 供暖期高于非供暖期的特点; 从空间分异来看, 工业发达地区较高, 燃煤为主的地区高于其他城市, 城区高于郊区及远郊地区。大气沉降不仅会使土壤重金属含量上升, 也会对农作物造成直接和间接的影响。大气中的重金属会通过气孔进入作物细胞, 在细胞壁、液泡中积累, 当含量过高时会影响作物正常生长或引起作物重金属超标风险, 不利于农业安全生产。未来的研究应将传统分析方法与空间和地统计技术、多元同位素示踪技术、数学模型模拟等多种技术手段相结合, 在区域尺度和田间自然条件下开展土壤-作物-大气系统重金属循环过程的研究, 为区域农田重金属污染防控和环境管理提供科学依据和决策支撑。

关键词 农田生态系统; 大气沉降; 重金属; 来源; 时空演变

中图分类号 X53 **文献标识码** A

近年来, 强烈人为活动, 如工业生产、快速城镇化、高强度农业利用、矿山开采与冶炼等, 已经导致我国部分地区重金属污染日趋严重, 严重威胁土壤环境质量和农产品安全。据2014年原国家环境保护部和国土资源部联合发布的《全国土壤污染状况调查公报》显示, 全国土壤环境状况总体不容乐观, 污染物类型以镉、汞、砷、铜、铅等重金属污染为主, 且

长江三角洲、珠江三角洲等部分经济快速发展区土壤重金属污染问题较为突出^[1]。区域土壤、作物乃至大气重金属污染已经成为我国当前面临的重大环境问题。2016年国家发布的《土壤污染防治行动计划》(简称“土十条”)以及2018年最新颁布的《中华人民共和国土壤污染防治法》, 均强调土壤污染风险管控与治理, 并要求加大土壤污染防治科技研发力度,

* 国家自然科学基金项目(41877512)、江苏省生态环境厅环保科研课题(2018013)和江苏省科技厅重大科技示范项目(BE2016812)资助 Supported by the National Natural Science Foundation of China (No.41877512), the Environmental Protection Research Project of Department of Ecology and Environment of Jiangsu Province (No.2018013) and the Key Science and Technology Demonstration Project of Jiangsu Province (No.BE2016812)

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

作者简介: 刘 鹏(1994—), 男, 安徽阜阳人, 硕士研究生, 主要从事区域土壤环境地球化学与风险评估研究。E-mail: pliu@issas.ac.cn

收稿日期: 2018-12-13; 收到修改稿日期: 2019-01-27; 优先数字出版日期(www.cnki.net): 2019-02-21

遏制土壤污染趋势，改善土壤环境质量，表明国家层面已经高度重视土壤污染与防治问题。

农田土壤重金属污染严重影响了我国居民的“菜篮子”和“米袋子”安全，准确识别农田土壤重金属污染源及其贡献是开展重金属污染防治的前提。对于作物中重金属的来源，一直倾向于认为土壤是其最主要的来源，而对大气沉降对作物重金属富集的影响缺乏足够重视。随着调查研究的不断深入，越来越多的研究报道了大气沉降对土壤和作物重金属富集的贡献^[2-4]。大气沉降对土壤和作物会产生双重效应，一方面附着大量重金属的颗粒物沉降于土壤及作物表面，导致土壤、作物重金属富集；另一方面，作物根部从土壤中吸收的重金属可转移至地上各个器官导致农产品重金属超标^[5-6]。

由于重金属污染具有隐蔽性和滞后性，往往需要在动植物、人体内积累到一定程度才能表现出相应的症状，因此国内外对重金属大气沉降方面的研究多偏重于人口较为集中的城市地区，认为城市交通、工业排放等人为活动加重了大气中的重金属污染，导致城市土壤重金属含量超标^[7-9]。虽然越来越多的研究开始认识到大气沉降是土壤和农作物重金属积累的重要原因^[3-4, 10-11]，但对我国大气沉降中重金属的来源、时空分布以及大气沉降对农田土壤和作物中重金属富集的影响研究仍相对滞后。本文通过系统总结我国农田生态系统重金属的来源与污染现状，分析大气沉降中重金属的来源及时空分布特征，探讨大气沉降对土壤和作物中重金属富集的

影响及其贡献，进而提出下一步研究建议与展望，以期为我国农田重金属污染防治、农业安全生产及农田环境质量综合管理提供科学依据和参考资料。

1 我国农田土壤重金属来源与污染现状

重金属进入农田土壤主要有自然来源和人为活动两个途径。在自然因素中，主要受成土母质和成土过程的影响，在人为活动因素中，主要包括工业排放、大气沉降、肥料和农药施用、灌溉等^[3, 12] (图1)。农田土壤重金属的累积一般同时受到自然来源和人为活动的叠加影响，准确识别土壤中重金属的来源及其贡献，是环境地球化学研究的重要内容，也是农田重金属风险管控与污染治理的关键。

在耕地、林地、园地等不同的土地利用类型中，耕地土壤人为开发程度高、利用强度大，土壤重金属含量明显高于其他利用类型土壤^[3, 13]。根据原国家环境保护部公布的资料，1989年全国受污染农田600万 hm^2 ^[14]，占耕地总面积的4.6%；2014年全国土壤总超标率16.1%，耕地点位超标率为19.4%，其中以镉、汞、砷、铜、铅等重金属污染最为突出^[1]。研究者近期对三江平原、松嫩平原、长江中游及江淮地区、黄淮海平原和四川盆地粮食主产区土壤重金属时空变化与来源的研究中发现，自20世纪80年代以来，我国粮食主产区土壤重金属点位超标率显著增加，从7.16%增加至21.49%，不到三十年的时间里快速增长了14个百

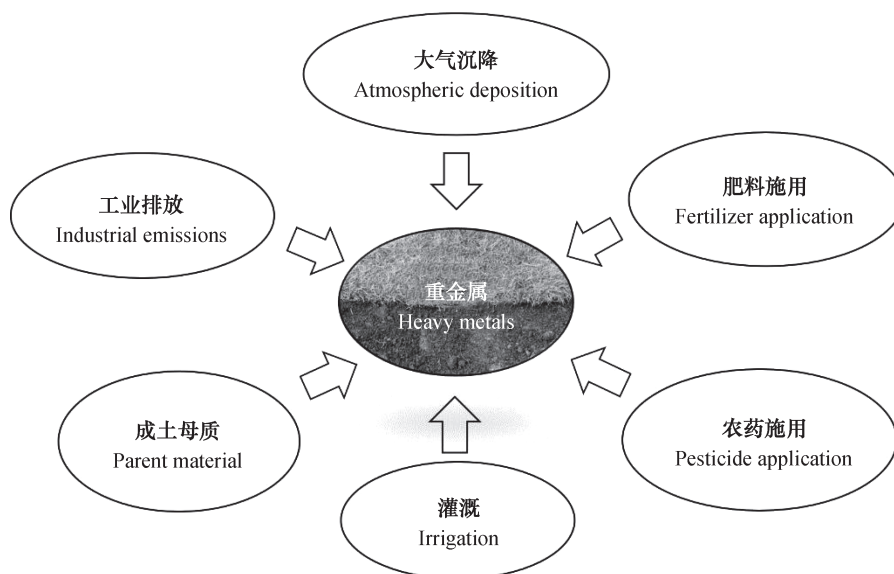


图1 农田土壤重金属的主要来源

Fig.1 Main sources of heavy metals in farmland soils

分点, 区域土壤重金属污染问题进一步凸显, 其中西南、华中、长江三角洲及珠江三角洲等区域土壤重金属污染尤为突出^[12]。究其原因主要有以下两点: 一是我国快速的工业化和城镇化推进过程中, 大量的工业活动增加了重金属的排放; 二是快速增长的人口加大了对粮食的需求, 高强度的农业生产活动加重了土壤重金属的积累。

2 我国大气沉降中重金属的来源与时空分布

重金属主要通过煤等化石燃料燃烧、土壤扬

尘、工业冶炼、汽车尾气排放等人为途径进入大气, 吸附于气溶胶分子上, 再通过干湿沉降两种方式进入农田生态系统中^[15] (表1)。我国对大气沉降的研究起初大多针对河流、海岸带生态系统, 认为大气沉降是导致河流重金属含量上升的主要原因^[16-17]。近年来, 我国近地表降尘量和降尘中的重金属含量均表现出逐渐增加的趋势, 大气沉降已经被认定为区域农田土壤重金属的重要来源^[3, 18]。由于大气沉降会受到污染源、长距离运输、降水等气象因素的影响, 因此区域大气沉降中的重金属往往也表现出明显的时空分布差异^[19-20] (图2, 表2)。

表1 大气沉降中重金属的主要来源

Table 1 Main sources of heavy metals in atmospheric deposition

元素 Element	主要来源 Main sources	文献来源 References
Cd	汽车尾气、工业冶炼、燃煤排放、电镀、塑料工业	[7, 21-23]
Pb	燃煤排放、汽车尾气、工业冶炼、土壤扬尘、矿石开采	[7, 21-22, 24]
Cu	汽车尾气、工业冶炼、土壤扬尘	[7, 23]
Zn	矿石开采、汽车尾气、工业冶炼	[7, 21]
As	矿石开采、燃煤排放、汽车尾气、工业冶炼	[7, 21-22]
Hg	燃煤排放、工业排放、汽车尾气、电池、塑料工业	[7, 21-22]
Cr	工业冶炼、汽车尾气、燃煤排放、钢铁生产、电镀	[21]
Ni	矿山开采、化石燃料燃烧、电镀	[23]

受重金属来源的多样性和自然因素的综合影响, 目前, 对于大气沉降重金属时间分布多从重金属含量变化的角度进行研究。通过总结对比我国北方和南方典型地区夏冬两季大气重金属含量差异 (图1), 可以发现, 不同地区重金属含量差异明显, 与研究区特定的工业结构和气候条件有关, 但总体上均呈现出冬季高于其他季节, 供暖期高于非供暖期的特点。主要原因可以归纳为以下三点: (1) 我国冬季寒冷, 供暖导致对能源需求的增加, 尤其是北方地区, 大规模的集中供暖增加了重金属的排放; (2) 冬季部分地区会出现逆温现象, 阻碍了空气的垂直对流运动, 不利于重金属的扩散和迁移; (3) 我国降水季节分明, 夏季多冬季少, 降水的冲刷作用也会显著降低大气中重金属的含量。北方供暖期时长根据地区纬度差异略有不同, 哈尔滨相比北京, 更为寒冷, 供暖期更长,

煤作为供暖原料极大地增加了Ni、Cu、Zn、Pb等重金属的排放, 供暖期大气重金属含量约为非供暖期的1.8倍^[25-26]。青岛地区冬季重金属含量上升不仅与燃煤供暖有关, 强烈的西北风从内陆地区带来大量的气溶胶颗粒也进一步加重了大气重金属污染^[27]。东莞有着全国最大的虎门沙角火电厂群, 加上当地大量的造纸和纺织印染企业, 每年需要消耗大量的燃煤, 加上冬季少雨的特点, 形成了大气重金属浓度高于夏季的现象^[28]。浦口作为南京的重要工业园区, 大量工厂的共同排放致使相关重金属元素排放量增加, 导致冬夏两季大气重金属差异并不显著, Ni的排放夏季甚至高于冬季^[29], 这也从一定程度上反映出大气重金属的时空分布受污染源影响较大的特点。

从空间分布来看, 不同功能区大气沉降中重金属通量存在明显的差异性, 工业发达地区相对较

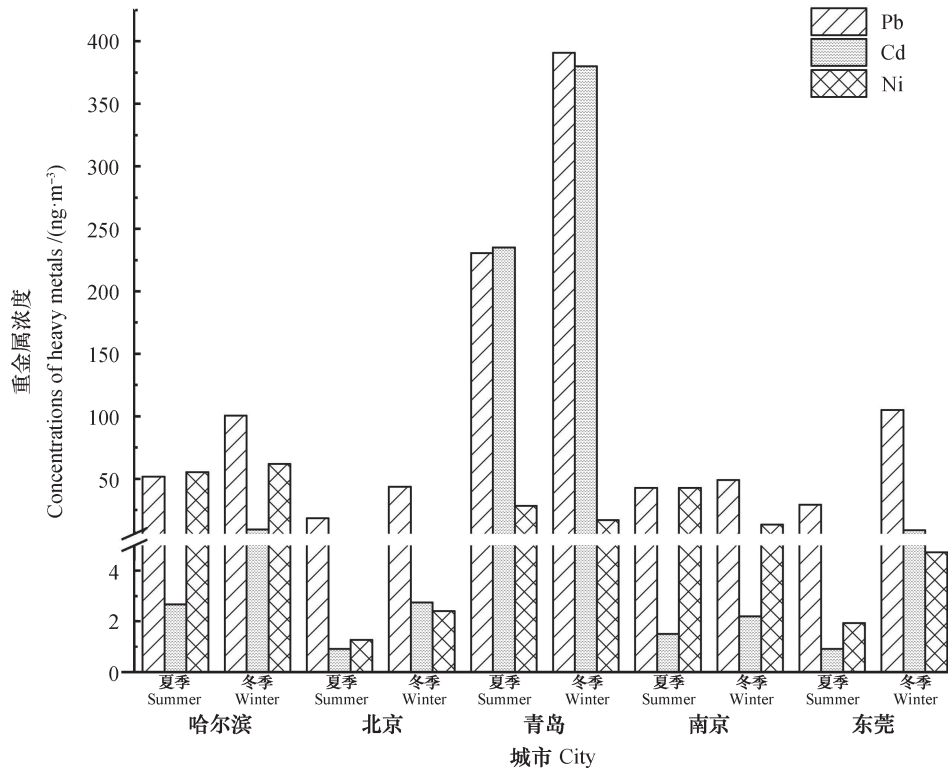


图2 我国不同地区夏季和冬季大气中重金属含量

Fig. 2 Concentrations of heavy metals in the atmosphere in summer and winter relative to region in China

高、燃煤为主的地区高于其他城市、城区高于郊区及远郊地区^[30-31]。沈阳等东北老工业基地城市及周边大气中的重金属沉降量显著高于地理位置相近的松嫩平原农业区，燃煤、交通、工业建设带来的诸多污染源，加重了该区域大气中的重金属污染^[32-33]。太原市年降水量只有468 mm，但由于当地的火力发电、交通运输大大增加了重金属排放使其湿沉降通量显著高于其他地区^[34]。长江三角洲地区是我国经济最发达的地区之一，高度的工业化需要大量的燃煤作为能源支撑，燃煤等生产过程中产生的Pb和Cr等重金属含量明显高于周边其他地区^[35-36]。南京沿江流域由于受到沿岸工业生产的影响，大气沉降中的Cd、Pb、As、Hg等重金属含量及年输入通量明显高于周边农业区^[3]。珠江三角洲地区是我国重要的电子产品生产地区之一，工业过程中产生的“电子垃圾”是导致该区域大气中Cu、Cr、Ni含量上升的主要原因^[37]。总体而言，不同功能区大气沉降中重金属通量的排序依次为：工业区>商业区>居民区>农业区。由于工业区、商业区的工业活动和交通负荷大，大气沉降中的重金属来源广泛，导致其重金属污染一般高于居民区和

农业区^[20]。

我国不同经济发展阶段及相应的环境保护政策也会直接或间接影响大气重金属的时空分布。Cheng等^[42]通过研究1990-2009年期间我国大气Cr排放发现，经济相对落后的西北地区大气Cr输入量远低于经济水平较高的中部及南方地区，总体上Cr的排放量与我国GDP保持着同步增长的趋势。同样的结果也在Ni和Luo等^[43-44]的研究中得以证实，2015年我国GDP是2006年的3.14倍，而Cr的年输入通量前者是后者的2.63倍。从国内外对比来看，虽然目前我国大气沉降中的重金属年输入通量普遍高于国外，但这是由于现阶段我国正处于经济快速发展时期。以Pb为例，我国当前大气沉降中Pb的年平均输入通量为 $21.81 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ ^[23]，瑞典大气沉降中Pb的年最大平均输入通量为 $15 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ ，出现在20世纪70年代国家经济快速发展时期^[45]。由此可见，在国家社会经济快速发展阶段，大气沉降中重金属含量增高是一个难以避免的暂时现象。近年来，随着我们国家对大气污染防治工作的重视程度的不断提高，出台的一系列环境保护和大气污

表2 我国不同区域大气沉降中重金属的输入通量

Table 2 Fluxes of heavy metals in atmospheric deposition relative to region in China/(mg·m⁻²·a⁻¹)

研究区 Region	时间 Period	沉降类型 Deposition type	Cd	Pb	Cu	Zn	As	Hg	Cr	Ni	参考文献 Reference
松嫩平原	2005-2007	干湿沉降	0.36	19.18	16.93	96.52	4.61	0.03	20.33	-	[33]
沈阳市	2012-2013	干湿沉降	0.73	60.32	32.67	159.2	9.28	0.11	25.93	18.25	[32]
北京市	2013-2014	干湿沉降	0.46	19.60	19.80	86.50	3.73	-	6.47	6.63	[38]
华北地区	2007-2010	干湿沉降	0.54	26.50	15.10	106.5	4.25	-	7.28	7.87	[30]
太原市	2013-2015	湿沉降	0.73	2.92	7.30	185.1	4.38	-	3.65	6.21	[34]
南京市	2011-2012	干湿沉降	0.70	48.50	46.00	248.0	4.05	0.04	16.90	-	[3]
长江三角洲	2006-2007	干湿沉降	0.41	35.90	13.90	89.50	1.57	0.03	13.20	4.60	[36]
大亚湾	2015-2017	干沉降	0.04	0.84	0.70	9.46	0.44	-	0.27	0.21	[39]
		湿沉降	0.12	6.79	3.97	84.50	3.20	-	2.68	1.70	
广州市	2014-2015	干沉降	0.17	6.60	9.06	56.49	-	-	3.82	-	[8]
		湿沉降	0.83	10.40	13.17	105.6	-	-	6.04	-	
珠江三角洲	2001-2002	干湿沉降	0.07	12.70	18.60	104	-	-	6.43	8.35	[40]
香港	1998-1999	干沉降	-	29.10	5.20	29.2	-	-	-	-	[41]
		湿沉降	-	87.40	4.67	34.70	-	-	-	-	

染防控措施已经开始在一定程度上降低了大气中的重金属等污染物排放。我国自2000年推行无铅汽油以来, 香港地区Pb的沉降量从1998-1999年的116.5 mg·m⁻²·a⁻¹降至2000年后的6.75 mg·m⁻²·a⁻¹, 显著低于政策执行前的水平^[40-41]。2010年我国出台了更为严格的大气Hg排放标准, 在废气处理技术提升和污染控制装置进步的双重作用下, 全国Hg的年平均输入通量从2006年的0.14 mg·m⁻²·a⁻¹下降至2015年的0.092 mg·m⁻²·a⁻¹, 减少了34.2%^[43-44]。北京作为我国首都, 环境保护措施相对严格, 污染大的企业生产受到严格限制, 北京地区与工业相关的Pb、Cd、Cr、Mn、As、Ni的大气沉降通量均低于华北地区的平均值^[30,38]。我国大气治理工作已初有成效, 但部分重金属, 如Cr、Ni、Zn的输入通量仍呈现出逐年增加的趋势^[43-44], 对生态环境存在一定的潜在危害。因此, 需要继续加强我国大气污染防治及环境管理工作的力度, 通过制定更为严格的大气污染物排放标准, 从而保障农产品安全生产及农田生态系统的健康可持续发展。

3 大气沉降对农田土壤重金属富集的影响

由于近地表降尘含量和降尘中所包含的重金

属含量均表现出逐年增加的趋势, 大气沉降已经被认为是区域土壤重金属的重要来源^[3,30]。在许多工业、交通发达国家, 大气沉降对土壤重金属贡献率在各种外源输入因子中排首位。有研究者通过分析城市和工厂周边地区大气中重金属污染程度、大气降尘通量与表层土壤中重金属含量的相关关系发现, 大气中重金属污染程度和降尘通量越高, 土壤重金属含量越高^[5,46]。近年来, 不同国家通过重金属调查清单的方法来定量分析农田土壤重金属的主要来源及输入通量, 结果显示, 欧美国家肥料和农药的施用以及灌溉是导致农田土壤重金属累积的主要原因, 而我国, 通过大气沉降进入农田土壤中的重金属已经成为部分区域农田土壤重金属的最主要输入方式^[44,47]。

根据Luo等^[44]对1999-2006年我国农田土壤重金属的来源与输入通量的研究发现, 我国目前67%的能源来自于煤的燃烧, 这一过程中释放的大量Pb、As、Hg显著提高了大气中重金属的输入通量, 进而影响到农田土壤中Pb、As、Hg的积累量, As、Cr、Hg、Ni和Pb的大气沉降贡献率占农田土壤重金属总输入量的42%~86%。Xia等^[33]通过对我国粮食主产区之一的黑龙江松嫩平原土壤重金属来源的研究发现, 通过大气沉降输入的Cd、Hg、As、Cu、Pb和Zn量占总输入量

的78%~98%，大气沉降已经成为该区域农田土壤重金属的重要来源。Pan和Wang^[30]通过对比栾城站大气Cd沉降量和表层土壤富集量，可以发现该地区几乎所有Cd元素富集均是由大气沉降所引起的，表明华北地区已成为我国重金属大气沉降通量最高的地区。长江三角洲地区城市发达，人口众多，繁重的交通和发达的工业大大加重了Cr、Pb、Zn的排放，大气沉降对农田土壤中的Cr、Pb、Zn的贡献率分别达72%、84%和72%^[35]。Zhang等^[4]通过对苏南典型工业区周边土壤和水稻中Hg污染状况与来源的研究发现，尽管部分Hg污染较重的工业企业已经搬迁或进行产业结构调整，农田土壤和稻米中Hg的污染状况仍然不容乐观，并且土壤Hg污染呈现明显的带状分布特征，且与当地的工业布局与主导风向有关。结合Hg稳定同位素组成特征分析，发现大气沉降是该区域农田土壤Hg的重要来源之一。水稻土是我国特有的土壤类型之一，大气沉降对其影响也十分显著。Liang等^[31]对湖南涟源水稻土的研究发现，当地由于煤的燃烧极大地增加了Pb、Sb、As和Hg的大气沉降量，占重金属总输入比重的26.05%，高出农业活动近十个百分点，大气沉降对该地区水稻土的影响显著高于农业活动。同样的结论在湖南醴陵也得到证实，Yi等^[48]通过研究四种功能区（工矿区、畜牧区、郊区和风险管控区）的水稻土，大气沉降输入的重金属占总输入的51.21%~94.74%，远远超过施肥和灌溉等农业生产活动的影响。综合上述研究结果可以发现，大气重金属沉降是农田土壤重金属污染的重要来源之一，Cd、Pb、Hg又是我 国农产品中超标最突出的重金属元素，因此在控制因大气沉降为主的农田重金属污染源时应优先针对Cd、Pb、Hg等元素采取措施^[3-4, 23]。

4 大气沉降对农作物重金属富集的影响

大气沉降对作物重金属富集的影响包括间接和直接影响，即通过污染土壤影响作物重金属积累以及通过作物地上部分（叶片）吸收进入体内。人类活动产生的重金属释放到大气后会沉降到土壤中，由于土壤高保留的能力通常被认为是环境中重金属的汇，因此城镇、工业区及其周边农产品中往往含有较高的重金属^[6, 49-50]。土壤作为一个复杂

的有机体，影响农作物吸收重金属的因素有很多，如：土壤质地、有机质含量、阳离子交换量、pH、根系分泌物等^[51]，诸多因素交织一起引起的复杂变化导致了某些情况下土壤-作物重金属累积的线性关系并不明显。在对Cd的分析中发现土壤-作物系统中Cd的线性关系并不显著，Cd污染土壤生产的大米Cd未必超标，未污染的土壤会生产Cd超标大米的现象广泛存在^[51-53]。董騄睿等^[54]对南京沿江流域典型蔬菜生产基地土壤、作物以及大气降尘中重金属富集与来源的研究发现，虽然该蔬菜基地耕作条件相似、土壤类型和性质比较一致，但土壤和作物中的重金属含量并不存在明显的线性关系，即使部分土壤中重金属含量较低，但作物中重金属依然存在超标现象。该区域大气干湿沉降中的Cd和Pb年沉降通量分别为7.0 g·hm⁻²和485 g·hm⁻²，明显高于背景区域，表明大气沉降对该区域作物重金属的富集可能具有明显的影响。

为了进一步明确大气沉降如何影响作物积累重金属以及重金属在作物体内的循环过程和迁移转化机制，常选用扫描电镜和透射电镜的观测方法分别从植物组织水平和亚细胞水平上对重金属分布进行定性、定量分析^[49, 55]。通过观察重金属在作物中的亚细胞分布，可以发现进入作物体内的重金属通常会聚集在细胞壁或者液泡中，一般不会在高活性的细胞器中积累。这是由于细胞壁中存在的果胶和半纤维素会与重金属络合，从而提高作物对重金属的耐受性，保证作物在较低重金属浓度下细胞的正常代谢^[56-57]。Xiao等^[58]通过对比生长在不同大气沉降环境下的小麦，发现小麦芽会直接吸收大气中的Cd、Pb、Cu、Zn、Cr、As，这些重金属不仅会转移至小麦根部影响作物生长，同时也会在细胞壁中积累，当含量过高时就会损伤叶绿体功能从而影响小麦光合作用。相比于其他农作物，蔬菜具有相对更大的叶表面积以及更多的气孔，因而更容易受到大气沉降中的重金属影响。Uzu等^[49]通过研究莴苣从大气中吸收的Pb发现，在工业区周边大气中含有大量的PM₁₀、PM_{2.5}、PM₁甚至纳米颗粒物，对莴苣Pb的富集会有显著的影响。此外，直径在50 nm和1 μm之间的颗粒物不仅可以聚集在叶片表面，同时也会直接随气孔的开闭进入莴苣体内，造成莴苣的Pb污染。因此，在重金属污染高风险区，不仅要考虑作物从土壤中吸收的重金属，

还应重点衡量大气沉降对作物尤其是蔬菜类作物中重金属积累的贡献^[3,10]。

5 展 望

加强区域尺度和田间自然条件下土壤-作物-大气系统重金属循环过程的研究。受制于农田生态系统的开放性和复杂性,室内模拟实验的研究结果很难准确反映田间实际条件下的自然规律和综合效应^[59],区域农田重金属污染往往呈现出明显的空间异质性^[3,60]。因此,在区域尺度和田间自然条件下,将土壤-作物-大气系统作为一个整体,全面系统地研究重金属在农田生态系统不同环境介质间的迁移转化、来源及其循环过程的研究将具有重要的理论和现实指导意义。

综合利用多种技术手段开展区域农田重金属源解析研究。随着近年来分析方法和手段的不断发展,基于空间和地统计分析、受体模型以及同位素示踪技术的源解析方法日趋成熟。受体模型是一种直接以污染区域为研究对象,能够避免因地形或气象数据的复杂性和不确定性造成结果偏差的源解析方法^[61-62]。Pb等重金属稳定同位素示踪技术因具有精准量化各污染源对重金属富集贡献率的优势而得到广泛运用^[63-65],随着质谱技术的革命性发展,更多的金属元素同位素得以被精确地测定,为多元同位素示踪提供了可能^[66]。如果能够综合利用空间分析、不同源解析模型及多元同位素示踪技术优势,可以解决因单一分析方法产生的多解性和模糊性,从而更加全面地了解重金属的来源,以便更好地对重金属污染源及污染贡献做出准确评价^[3,67]。

利用数学模型开展区域土壤-作物系统重金属循环过程的动态模拟与预警研究。在对区域土壤-作物系统重金属进行风险评价与预测预警时,需要明晰土壤重金属的长期甚至是上百年的累积趋势,而在正常的工农业生产活动下,重金属在土壤中的积累是一个长期缓慢的过程,难以用常规的方法进行监测。现有的土壤重金属累积质量平衡模型主要关注重金属输入输出通量的估算^[68-69],虽然避免了对土壤复杂的物理化学过程的计算,但在一定程度上降低了模拟结果的精确性。因此,需要在充分考虑重金属的来源及输入输出通量、土壤中的形态

变化、各种迁移转化途径以及土壤性质变化对输入输出通量影响的前提下,将田块尺度模型扩展到区域尺度,结合最新的空间和地统计方法,将采样监测与数学模型模拟的方法相结合,能够在空间和时间的宏观尺度上掌握重金属的迁移转化和时空演变规律,从而实现区域土壤-作物系统重金属循环过程的动态模拟与预警研究。

参 考 文 献

- [1] 中华人民共和国环境保护部,中华人民共和国国土资源部. 全国土壤污染状况调查公报. 2014
Ministry of Environmental Protection of China, Ministry of Land and Resources of China. National soil pollution survey bulletin (In Chinese). 2014
- [2] Pandey J, Pandey U. Accumulation of heavy metals in dietary vegetables and cultivated soil horizon in organic farming system in relation to atmospheric deposition in a seasonally dry tropical region of India. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2009, 148 (1/4): 61—74
- [3] Hu W Y, Wang H F, Dong L R, et al. Source identification of heavy metals in peri-urban agricultural soils of southeast China: An integrated approach. *Environmental Pollution*, 2018, 237: 650—661
- [4] Zhang Y X, Wang M, Huang B, et al. Soil mercury accumulation, spatial distribution and its source identification in an industrial area of the Yangtze Delta, China. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 163: 230—237
- [5] Bermudez G M A, Jasan R, Pla R, et al. Heavy metals and trace elements in atmospheric fall-out: Their relationship with topsoil and wheat element composition. *Journal of Hazardous Materials*, 2012, 213: 447—456
- [6] 谢正苗, 李静, 徐建明, 等. 杭州市郊蔬菜基地土壤和蔬菜中Pb、Zn和Cu含量的环境质量评价. *环境科学*, 2006, 27 (4): 742—747
Xie Z M, Li J, Xu J M, et al. Evaluation on environmental quality of Pb, Zn and Cu contents in vegetable plantation soils and vegetables in Hangzhou suburb (In Chinese). *Environmental Science*, 2006, 27 (4): 742—747
- [7] Yang Z P, Lu W X, Long Y Q, et al. Assessment of heavy metals contamination in urban topsoil from Changchun City, China. *Journal of Geochemical Exploration*, 2011, 108 (1): 27—38
- [8] Ye L M, Huang M J, Zhong B Q, et al. Wet and dry

- deposition fluxes of heavy metals in Pearl River Delta Region (China): Characteristics, ecological risk assessment, and source apportionment. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, 70: 106—123
- [9] Luo X S, Xue Y, Wang Y L, et al. Source identification and apportionment of heavy metals in urban soil profiles. *Chemosphere*, 2015, 127: 152—157
- [10] 程珂, 杨新萍, 赵方杰. 大气沉降及土壤扬尘对天津城郊蔬菜重金属含量的影响. *农业环境科学学报*, 2015, 34 (10): 1837—1845
Cheng K, Yang X P, Zhao F J. Effects of atmospheric and dust deposition on content of heavy metals in vegetables in suburbs of Tianjin (In Chinese). *Journal of Agro-Environment Science*, 2015, 34 (10): 1837—1845
- [11] 胡恭任, 戚红璐, 于瑞莲, 等. 大气降尘中重金属形态分析及生态风险评价. *有色金属*, 2011, 63 (2): 286—291
Hu G R, Qi H L, Yu R L, et al. Speciation analysis of heavy metal in atmospheric dust and ecological risk assessment (In Chinese). *Nonferrous Metals*, 2011, 63 (2): 286—291
- [12] 尚二萍, 许尔琪, 张红旗, 等. 中国粮食主产区耕地土壤重金属时空变化与污染源分析. *环境科学*, 2018, 39 (10): 1—20
Shang E P, Xu E Q, Zhang H Q, et al. Spatial-Temporal trends and pollution source analysis in heavy metal contamination of cultivated soils in five major grain producing regions of China (In Chinese). *Environmental Science*, 2018, 39 (10): 1—20
- [13] 陈永, 黄标, 胡文友, 等. 设施蔬菜生产系统重金属积累特征及生态效应. *土壤学报*, 2013, 50 (4): 693—702
Chen Y, Huang B, Hu W Y, et al. Heavy metals accumulation in greenhouse vegetable production systems and its ecological effects (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2013, 50 (4): 693—702
- [14] 国家环境保护局. 1989年中国环境状况公报. 1990
Ministry of Environmental Protection of China. *Bulletin of state of the environment in China in 1989* (In Chinese). 1990
- [15] Connan O, Maro D, Hebert D, et al. Wet and dry deposition of particles associated metals (Cd, Pb, Zn, Ni, Hg) in a rural wetland site, Marais Vernier, France. *Atmospheric Environment*, 2013, 67: 394—403
- [16] 吕建树. 江苏典型海岸带土壤及沉积物重金属环境地球化学研究. 南京: 南京大学地理与海洋科学学院, 2015
- Lü J S. *The environmental geochemistry of heavy metals in soils and sediments in typical regions of Jiangsu coastal zone, Eastern China* (In Chinese). Nanjing: School of Geographic and Oceanographic Sciences, Nanjing University, 2015
- [17] 杨凡. 太湖流域大气湿沉降及其原位围隔实验研究. 武汉: 华中农业大学水产学院, 2013
Yang F. *Atmospheric wet deposition of nutrient and it's in situ enclosure experiment in lake Taihu watershed* (In Chinese). Wuhan: College of Fisheries, Huazhong Agricultural University, 2013
- [18] Yu Y, Li Y X, Li B, et al. Metal enrichment and lead isotope analysis for source apportionment in the urban dust and rural surface soil. *Environmental Pollution*, 2016, 216: 764—772
- [19] Lee C S L, Li X D, Zhang G, et al. Heavy metals and Pb isotopic composition of aerosols in urban and suburban areas of Hong Kong and Guangzhou, South China—Evidence of the long-range transport of air contaminants. *Atmospheric Environment*, 2007, 41 (2): 432—447
- [20] Sharma R K, Agrawal M, Marshall F M. Atmospheric deposition of heavy metals (Cu, Zn, Cd and Pb) in Varanasi City, India. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2008, 142 (13): 269—278
- [21] 鲍丽然, 杨乐超, 董金秀, 等. 重庆西部农业区大气沉降特征及其对地表的影响. *环境污染与防治*, 2016, 38 (1): 41—46
Bao L R, Yang L C, Dong J X, et al. Atmospheric deposition characteristic and its influence on the earth surface in western Chongqing agricultural area (In Chinese). *Environmental Pollution and Control*, 2016, 38 (1): 41—46
- [22] 赖木收, 杨忠芳, 王洪翠, 等. 太原盆地农田区大气降尘对土壤重金属元素累积的影响及其来源探讨. *地质通报*, 2008 (2): 240—245
Lai M S, Yang Z F, Wang H C, et al. Effects of atmospheric fallouts on heavy metal elements accumulation in soils in farmland areas in the Taiyuan Basin, Shanxi, China and sources of fallouts (In Chinese). *Geological Bulletin of China*, 2008 (2): 240—245
- [23] 王梦梦, 原梦云, 苏德纯. 我国大气重金属干湿沉降特征及时空变化规律. *中国环境科学*, 2017, 37 (11): 4085—4096
Wang M M, Yuan M Y, Su D C. Characteristics and spatial-temporal variation of heavy metals in atmospheric dry and wet deposition of China (In

- Chinese). *China Environmental Science*, 2017, 37 (11): 4085—4096
- [24] 龚香宜, 祁士华, 吕春玲, 等. 福建省兴化湾大气重金属的干湿沉降. *环境科学研究*, 2006, 19 (6): 31—34
Gong X Y, Qi S H, Lü C L, et al. Atmospheric deposition of heavy metals to Xinghua Bay, Fujian Province (In Chinese). *Research of Environmental Sciences*, 2006, 19 (6): 31—34
- [25] 迟婉秋. 哈尔滨大气细颗粒物重金属污染特征与健康暴露风险评价. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学环境学院, 2018
Chi W Q. The analysis of heavy metal pollution and health risk assessment of fine particles in Harbin (In Chinese). Harbin: School of Environment, Harbin Institute of Technology, 2018
- [26] 高阳. 雾霾与非雾霾期北京市北部城区大气颗粒物污染特征研究. 北京: 北京科技大学能源与环境工程学院, 2018
Gao Y. Pollution characteristics of atmospheric particulates in northern urban Beijing during haze-fog and non haze-fog periods (In Chinese). Beijing: School of Energy and Environmental Engineering, University of Science and Technology of Beijing, 2018
- [27] Hao Y C, Guo Z G, Yang Z S, et al. Seasonal variations and sources of various elements in the atmospheric aerosols in Qingdao, China. *Atmospheric Research*, 2007, 85 (1): 27—37
- [28] 黄娇. 珠三角地区大气重金属的污染特征与环境风险评价研究. 西安: 长安大学环境科学与工程学院, 2016
Huang J. Study on the pollution characteristics and environmental risk assessment on the heavy metal of the particles in Pearl River Delta (In Chinese). Xi'an: School of Environmental Science and Engineering, Chang'an University, 2016
- [29] Chen Y, Luo X S, Zhao Z, et al. Summer-winter differences of PM_{2.5} toxicity to human alveolar epithelial cells (A549) and the roles of transition metals. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 165: 505—509
- [30] Pan Y P, Wang Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at 10 sites in Northern China. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15 (2): 951—972
- [31] Liang J, Feng C T, Zeng G M, et al. Spatial distribution and source identification of heavy metals in surface soils in a typical coal mine city, Lianyuan, China. *Environmental Pollution*, 2017, 225: 681—690
- [32] 凌爽, 于成广, 卢思乔. 大气干湿沉降向城市系统输入重金属元素通量特征研究——以沈阳市为例. *安徽农业科学*, 2013, 41 (26): 10764—10765, 10792
Ling S, Yu C G, Lu S Q. Flux characteristics of heavy metals inputted by atmospheric dry and wet deposition to a city system-A case study of Shenyang City (In Chinese). *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2013, 41 (26): 10764—10765, 10792
- [33] Xia X Q, Yang Z F, Cui Y J, et al. Soil heavy metal concentrations and their typical input and output fluxes on the southern Song-nen Plain, Heilongjiang Province, China. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, 139: 85—96
- [34] 叶艾玲, 程明超, 张璐, 等. 太原市夏季降水中溶解态重金属特征及来源. *环境科学*, 2018, 39 (7): 3075—3081
Ye A L, Cheng M C, Zhang L, et al. Characteristics and sources of dissolved heavy metals in summer precipitation of Taiyuan City, China (In Chinese). *Environmental Science*, 2018, 39 (7): 3075—3081
- [35] Hou Q Y, Yang Z F, Ji J F, et al. Annual net input fluxes of heavy metals of the agro-ecosystem in the Yangtze River Delta, China. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, 139: 68—84
- [36] Huang S S, Tu J, Liu H Y, et al. Multivariate analysis of trace element concentrations in atmospheric deposition in the Yangtze River Delta, East China. *Atmospheric Environment*, 2009, 43 (36): 5781—5790
- [37] Wong M H, Wu S C, Deng W J, et al. Export of toxic chemicals-A review of the case of uncontrolled electronic-waste recycling. *Environmental Pollution*, 2007, 149 (2): 131—140
- [38] 张国忠. 华北地区大气干湿沉降及其对农田土壤的影响研究. 兰州: 甘肃农业大学林学院, 2015
Zhang G Z. Atmospheric wet and dry deposition and its impacts on agricultural soils in northern China (In Chinese). Lanzhou: College of Forestry, Gansu Agricultural University, 2015
- [39] Wu Y C, Zhang J P, Ni Z X, et al. Atmospheric deposition of trace elements to Daya Bay, South China Sea: Fluxes and sources. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 127: 672—683
- [40] Wong C S C, Li X D, Zhang G, et al. Atmospheric deposition of heavy metals in the Pearl River Delta, China. *Atmospheric Environment*, 2003, 37 (6): 767—776

- [41] Zheng M, Guo Z G, Fang M, et al. Dry and wet deposition of elements in Hong Kong. *Marine Chemistry*, 2005, 97 (1/2): 124—139
- [42] Cheng H, Zhou T, Li Q, et al. Anthropogenic chromium emissions in China from 1990 to 2009. *PLoS one*, 2014, 9 (2): e87753
- [43] Ni R X, Ma Y B. Current inventory and changes of the input/output balance of trace elements in farmland across China. *PLoS One*, 2018, 13 (6): e0199460
- [44] Luo L, Ma Y B, Zhang S Z, et al. An inventory of trace element inputs to agricultural soils in China. *Journal of Environmental Management*, 2009, 90 (8): 2524—2530
- [45] Renberg I, Brnnvall M-L, Bindler R, et al. 瑞典 4000 年来 (公元前 2000 年到公元 2000 年) 的大气铅污染史. *AMBIO-人类环境杂志*, 2000, 29 (3): 150—156
Renberg I, Brnnvall M L, Bindler R, et al. Atmospheric lead pollution history during four millennia (2000BC to 2000AD) in Sweden (In Chinese). *AMBIO-A Journal of the Human Environment*, 2000, 29 (3): 150—156
- [46] 张乃明. 大气沉降对土壤重金属累积的影响. *土壤与环境*, 2001, 10 (2): 91—93
Zhang N M. Effects of air settlement on heavy metal accumulation in soil (In Chinese). *Soil and Environmental Sciences*, 2001, 10 (2): 91—93
- [47] Shi T, Ma J, Wu X, et al. Inventories of heavy metal inputs and outputs to and from agricultural soils: A review. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 164: 118—124
- [48] Yi K X, Fan W, Chen J Y, et al. Annual input and output fluxes of heavy metals to paddy fields in four types of contaminated areas in Hunan Province, China. *Science of the Total Environment*, 2018, 634: 67—76
- [49] Uzu G, Sobanska S, Sarret G, et al. Foliar lead uptake by lettuce exposed to atmospheric fallouts. *Environmental Science and Technology*, 2010, 44 (3): 1036—1042
- [50] Voutsas D, Grimanis A, Samara C. Trace elements in vegetables grown in an industrial area in relation to soil and air particulate matter. *Environmental Pollution*, 1996, 94 (3): 325—335
- [51] 陈卫平, 杨阳, 谢天, 等. 中国农田土壤重金属污染防治挑战与对策. *土壤学报*, 2018, 55 (2): 261—272
Chen W P, Yang Y, Xie T, et al. Challenges and countermeasures for heavy metal pollution control in farmlands of China (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2018, 55 (2): 261—272
- [52] Yang Y, Wang M E, Chen W P, et al. Cadmium accumulation risk in vegetables and rice in southern China: Insights from solid-solution partitioning and plant uptake factor. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2017, 65 (27): 5463—5469
- [53] 张红振, 骆永明, 章海波, 等. 土壤环境质量指导值与标准研究 V. 镉在土壤-作物系统中的富集规律与农产品质量安全. *土壤学报*, 2010, 47 (4): 628—638
Zhang H Z, Luo Y M, Zhang H B, et al. Study on soil environmental quality guidelines and standards. V. Modeling of cadmium uptake in soil-crop systems for human food safety in China (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2010, 47 (4): 628—638
- [54] 董驷睿, 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. *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 (In Chinese). *China Environmental Science*, 2015, 35 (7): 2103—2111
- [55] Schreck E, Dappe V, Sarret G, et al. Foliar or root exposures to smelter particles: Consequences for lead compartmentalization and speciation in plant leaves. *Science of the Total Environment*, 2014, 476: 667—676
- [56] Polec-Pawlak K, Ruzik R, Lipiec E, et al. Investigation of Pb (II) binding to pectin in *Arabidopsis thaliana*. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 2007, 22 (8): 968—972
- [57] Li Z, Wu L H, Hu P J, et al. Copper changes the yield and cadmium/zinc accumulation and cellular distribution in the cadmium/zinc hyperaccumulator *Sedum plumbizincicola*. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, 261: 332—341
- [58] Xiao X, Qin K, Sun X, et al. Will wheat be damaged by heavy metals on exposure to coal fly ash? *Atmospheric Pollution Research*, 2018: S1309104217304312
- [59] 曾希柏, 徐建明, 黄巧云, 等. 中国农田重金属问题的若干思考. *土壤学报*, 2013, 50 (1): 186—194
Zeng X B, Xu J M, Huang Q Y, et al. Some deliberations on the issues of heavy metals in farmlands of China (In Chinese). *Acta Pedologica Sinica*, 2013, 50 (1): 186—194
- [60] 徐建明, 孟俊, 刘杏梅, 等. 我国农田土壤重金属污染防治与粮食安全保障. *中国科学院院刊*, 2018, 33

- (2): 153—159
- Xu J M, Meng J, Liu X M, et al. Control of heavy metal pollution in farmland of China in terms of food security (In Chinese). *Bulletin of Chinese Academy of Sciences*, 2018, 33 (2): 153—159
- [61] 卢鑫, 胡文友, 黄标, 等. 基于UNMIX模型的矿区周边农田土壤重金属源解析. *环境科学*, 2018, 39 (3): 1421—1429
- Lu X, Hu W Y, Huang B, et al. Source apportionment of heavy metals in farmland soils around mining area based on UNMIX model (In Chinese). *Environmental Science*, 2018, 39 (3): 1421—1429
- [62] Gordon G E. Receptor Models. *Environmental Science and Technology*, 1988, 22 (10): 1132—1142
- [63] Huang Y, Li T Q, Wu C X, et al. An integrated approach to assess heavy metal source apportionment in pen-urban agricultural soils. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, 299: 540—549
- [64] Feng X B, Yin R S, Yu B, et al. Mercury isotope variations in surface soils in different contaminated areas in Guizhou Province, China. *Chinese Science Bulletin*, 2013, 58 (2): 249—255
- [65] 余伟河, 于瑞莲, 胡恭任. 铅锌镉同位素在土壤和沉积物重金属污染溯源研究中的应用进展. *有色金属工程*, 2012 (4): 57—62
- Yu W H, Yu R L, Hu G R. Progress in the application of lead, zinc and cadmium isotopes in the traceability of heavy metals pollution in soils and sediments (In Chinese). *Nonferrous Metals Engineering*, 2012 (4): 57—62
- [66] 黄方, 南晓云. 土壤中非传统稳定同位素研究进展. *中国科学技术大学学报*, 2015, 45 (2): 87—100
- Huang F, Nan X Y. Advance in applications of non-traditional stable isotopes in soil studies (In Chinese). *Journal of University of Science and Technology of China*, 2015, 45 (2): 87—100
- [67] Wen H J, Zhang Y X, Cloquet C, et al. Tracing sources of pollution in soils from the Jinding Pb-Zn mining district in China using cadmium and lead isotopes. *Applied Geochemistry*, 2015, 52: 147—154
- [68] Hu W Y, Huang B, Shi X Z, et al. Accumulation and health risk of heavy metals in a plot-scale vegetable production system in a pen-urban vegetable farm near Nanjing, China. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, 98: 303—309
- [69] Peng C, Wang M E, Chen W P, et al. Mass balance-based regression modeling of Cd and Zn accumulation in urban soils of Beijing. *Journal of Environmental Sciences*, 2017, 53: 99—106

Advancement in Researches on Effect of Atmospheric Deposition on Heavy Metals Accumulation in Soils and Crops

LIU Peng^{1,2} HU Wenyong^{1†} HUANG Biao¹ LIU Benle^{1,2} ZHOU Yi^{1,3}

(1 Key Laboratory of Soil Environment and Pollution Remediation, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China)

(2 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(3 College of Environmental Science and Engineering, Yangzhou University, Yangzhou, Jiangsu 225127, China)

Abstract Focusing on the farmland soil-crop-atmosphere system in China, a review is presented in this paper of sources and spatial-temporal distribution of heavy metals, impacts of heavy metals atmospheric deposition on heavy metals accumulation in soils and crops and advancement in the researches in this aspect in recent years. Once entering the atmosphere, heavy metals would start to go back to the land in the form of atmospheric deposition, in which the heavy metals display a clear feature of spatio-temporal variation as affected comprehensively by a variety of natural and anthropogenic factors and environmental protection policies. In terms of temporal variation, heavy metals concentrations in the atmosphere are higher in winter than in the other seasons, and in the heating period than in the non-heating period, while in terms of spatial variation, they are higher in well-developed industrial areas than in the other areas, in cities based

mainly on coal as fuel than in the other cities and in urban areas than in suburbs. Atmospheric deposition not only increases the contents of heavy metals in the soil, but also have certain direct and indirect impacts on crops. Heavy metals in the atmosphere enter the plant cells through stomata and accumulate in cell walls and vacuoles. Once accumulating to a certain level, the heavy metals would affect normal growth of the crop and/or bring about the risk of heavy metals overproof in crops, which is a hazard to agricultural safety production. In future studies, it is advisable to integrate traditional analytic methods with modern technologies, like spatial and geostatistical analysis, multiple isotope tracing, mathematical modeling and so on, in exploring heavy metals recycling processes in the soil-crop-atmospheric system on a regional scale under natural field conditions so as to provide a scientific basis for regional prevention and control of heavy metal pollution of farmland soils, for environment management and for decision-making in these fields.

Key words Agroecosystem; Atmospheric deposition; Heavy metal; Sources; Spatial-temporal variation

(责任编辑：檀满枝)