

基于文献计量分析的三峡库区消落带土壤 重金属污染特征研究^①

孙虹蕾^{1,2}, 张维^{3*}, 崔俊芳², 张建强¹, 唐翔宇²

(1 西南交通大学地球科学与环境工程学院, 成都 611756; 2 中国科学院水利部成都山地灾害与环境研究所, 山地表生过程与生态调控重点实验室, 成都 610000; 3 重庆工商大学旅游与国土资源学院, 重庆 400067)

摘要: 三峡库区消落带土壤/沉积物中重金属的研究受到日益重视, 重金属的归趋对三峡库区的水环境和生态安全有重要意义。通过 CNKI 和 Web of Science 数据库检索了 2001—2016 年三峡消落带土壤/沉积物重金属污染特征研究的文献, 并利用文献计量学方法分析文献特性及研究进展。2001—2016 年, 国内外发表的相关中英文文献分别为 69 篇、12 篇, 2011 年发文量最多(15 篇), 此后一直维持在年产量 ≥ 5 篇的水平, 重庆和湖北的高校及研究所是研究主力。刊载论文最多的是环境学方面的期刊(19.75%)。所涉最多的主题是“重金属的污染调查及评价”(51.85%)。Cd 的污染程度最大, 且易迁移形态平均比例相对较高($>38\%$), 是消落带首要的污染控制元素, 施肥是农业消落带 Cd 的主要来源。Pb 和 Hg 的污染程度也较大且易迁移形态的比例均大于 22%, 交通污染是其主要来源。工业废物的点源排放对消落带重金属(Cd、Pb、Cu、Zn、As)普遍有较大贡献。消落带内重金属以垂向迁移为主, 而植物对 Cd、Cu、Zn 具有较强的富集能力。淹水导致的 pH、Eh、温度、有机质等变化对固液界面重金属的交互作用及形态变化有重要影响。今后, 应加强消落带土壤理化性质和水力学性质变化对重金属地球化学行为影响, 以及重金属示踪技术应用和泥沙富集重金属二次释放行为的研究。

关键词: 三峡库区; 消落带; 重金属; 土壤; 文献计量分析

中图分类号: P345 文献标识码: A

长江三峡库区位于坝址湖北宜昌至库尾重庆江津之间(图 1A), 在 2003 年、2006 年及 2010 年分别实现淹水高度 135、156 和 175 m 后, 三峡水库成为了目前世界上最大的水利工程^[1]。随着三峡工程的推进及水库的调整运行, 其潜在的环境影响如水环境质量、泥沙输移、地形地貌演变等受到了国内外的广泛关注^[2]。

三峡库区消落带是三峡水库在最高运行水位(175 m)和最低水位(145 m)之间形成的落差近 30 m, 面积约 349 km² 的水陆交错带(图 1B)。每年 5 月底开始, 库区水位阶段性降至最低点 145 m, 消落带逐级出露, 受到雨季集中降雨的作用。这期间消落带农业活动、库区生产和生活废弃物的排放以及上游来水和泥沙携带等途径输入的污染物的沉降, 可能使消落带成为污染物(如重金属)的汇。而每年 9 月底库区水位

逐渐上升至 175 m, 旱季期间消落带绝大部分处于淹水状态。淹水期间消落带沉积物及土壤中的污染物可能通过溶解、交换等方式迁移进入水体, 使得消落带成为库区的水污染源。除反季节的水位变化外, 在如此高强度、长时间的周期性干湿交替以及夏季出露期降雨侵蚀的耦合作用下, 三峡库区消落带土壤的理化性质、结构及稳定性可能发生较大变化, 进而影响污染物的形态分布以及释放迁移等地球化学行为。

重金属从广义上来说包括比重 >4.0 的约 60 种元素或比重 >5.0 的约 45 种元素, 且包含毒性较大的 As 等类金属元素^[3]。环境意义上关注的重金属主要包括 Cd、Pb、Cr、Hg、Cu、Zn、As 等生物毒性较显著的元素。重金属可能直接影响土壤的生物活性和养分吸收, 同时通过食物链富集放大后间接威胁人体健康^[4]。另一方面, 土壤及沉积物中的重金属在理化条件改变

基金项目: 国家自然科学基金项目(41601539), 重庆市教委科学技术研究项目(KJ1600615)和中国科学院山地表生过程与生态调控重点实验室开放基金项目资助。

* 通讯作者(zw512119@163.com)

作者简介: 孙虹蕾(1993—), 女, 四川成都人, 硕士研究生, 主要研究方向为土壤重金属污染。E-mail: WWWSHL222@163.com

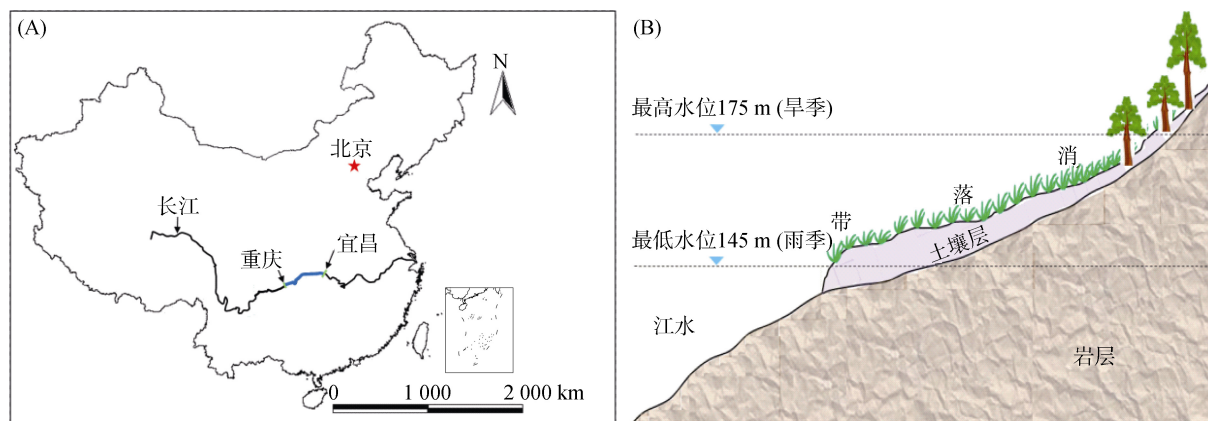


图 1 三峡库区位置(A)及消落带示意图(B)

Fig. 1 Location of TGR (A) and sketch map of WFLZ (B)

的情况下可能通过水力扰动释放、迁移转化等途径进入水体,对水生生态系统安全构成较大威胁^[5]。全球层面上,尤其对于新建的水库,河滨带土壤及沉积物中重金属的积累与释放是最重大的环境问题之一,并且与人类活动密切相关^[6]。随着三峡工程的推进,三峡库区消落带土壤及沉积物中重金属污染特征的研究受到日益重视。从 2003 年开始,相关论文数量持续增长,2009 年后论文数量跃居消落带土壤研究主题的首位^[7]。但目前还缺乏文献对该区域重金属研究的总体情况进行评述,尤其是三峡库区消落带不同区段和淹水高度上重金属分布及地球化学行为的对比。因此,本文从文献计量分析的角度出发,总结消落带土壤及沉积物中重金属分布的时空异质性、消落带重金属污染评价和来源探析以及消落带重金属的地球化学行为特征,以期“后三峡”时代库区生态安全和水环境保护提供参考。

1 三峡库区消落带土壤重金属的文献计量分析

1.1 文献检索

中文文献基于中国学术期刊网络出版总库及中国学位论文全文数据库,以“主题”、“篇名”、“关键词”为检索字段,以“三峡”、“消落带/消落区/涨落带/河滨带”、“土壤”、“沉积物”、“重金属”为检索词进行文献检索,检索到 69 篇文献,其中期刊论文、学位论文及会议论文分别为 54、14 和 1 篇。英文文献以 Web of science 数据库为数据源,以“主题”、“标题”为检索字段,以“Three Gorges Reservoir”、“water level fluctuation zone”、“riparian zone”、“heavy metal”、“soil”、“sediment”为检索词,检索到 12 篇

文献。中英文文献一共 81 篇。所有文献检索信息的截止时间是 2016 年 12 月。

1.2 文献计量分析

1.2.1 研究机构分布 表 1 列出了三峡库区消落带土壤/沉积物中重金属研究论文发表总量排名前十的研究机构(以第一作者的通讯地址统计)。这些机构总共发表论文 70 篇,占检索文献总数的 86.42%。研究机构存在明显的地域分布特征。三峡库区所跨的重庆市和湖北省的高校及研究所是研究主力。重庆市的科研机构所发表的相关中英文论文数量占排名前十的所有机构发文总量的比例分别为 84.48% 和 33.33%。西南大学以 19 篇的发文量位居第一,但还未发表相关英文论文。重庆三峡学院所处三峡库区腹地(万州区)给消落带研究提供了便利条件,其发文量位居第二,但其英文论文数量只有 1 篇。中国科学院武汉植物园英文论文发文量最多(4 篇)。因此,不同机构在中英文论文发表的侧重方面差异较大。

1.2.2 年度论文发表数量的变化 2001 年最早出现了关于三峡消落带土壤重金属的文献(图 2)。随着 2003 年三峡工程第一次蓄水及其后续推进建设,消落带土壤/沉积物中重金属研究的论文数量逐渐增加。三峡水库实现最高淹水高度后(2010 年),2011 年相关论文数量达到峰值(15 篇/年),且 2009—2011 年相关论文统计数量占检索文献总量的比例高达 30.86%。此后发文量虽有所下降,但一直维持在较高水平(5 篇/年),表明消落带重金属的研究受到持续较高度度的关注。相应地,消落带土壤研究主题中以“重金属”为关键词的论文数量高于以“氮”、“磷”等为关键词的论文发表量^[7]。

表 1 三峡库区消落带土壤重金属研究发文量前十的研究机构及其文献统计
Table 1 Top 10 institutes ranked by published papers on heavy metals in WLFZ in TGR

研究机构	所属省/直辖市	论文总量(篇)	论文总量排名	中文论文数量(篇)	英文论文数量(篇)
西南大学	重庆	19	1	19	0
重庆三峡学院	重庆	14	2	13	1
重庆交通大学河海学院	重庆	8	3	7	1
中国科学院武汉植物园	湖北	6	4	2	4
重庆大学	重庆	5	5	5	0
长江师范学院	重庆	4	6	4	0
中国科学院成都山地灾害与环境研究所	四川	3	6	0	3
重庆市环境科学研究院	重庆	3	8	1	2
三峡大学	湖北	3	8	3	0
华中农业大学/中国科学院水工程生态研究所	湖北	2	10	2	0
水利部中国科学院水工程生态研究所	湖北	2	10	2	0

注：表中论文形式包括期刊论文和学位论文。

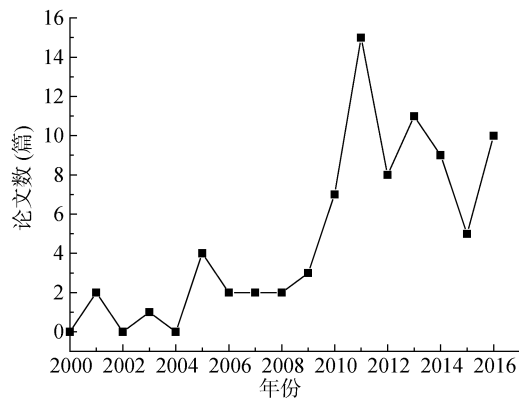


图 2 三峡库区消落带土壤/沉积物重金属研究年度论文发表数量

Fig. 2 Annual yield of published papers on heavy metals in WLFZ in TGR

从图 3 可以看出,中文论文是期刊论文发文量的绝对主体。从 2001 年到 2015 年,中文期刊论文数量快速增长,在 2011 年达到最高水平(14 篇)。而英文期刊论文直至 2011 年才开始出现,2014 年达到 4 篇的最高产量。2011—2016 年,英文期刊论文占全年发文总数的比例介于 6.67%~44.44%。因此,虽然近年来三峡消落带土壤/沉积物重金属的研究成果开始向国际推广,但推广的面和强度仍需提升,未来可以加强国内外科研机构在消落带的合作研究。

1.2.3 文献来源统计 所检索到的中文文献中,硕博学位论文为 14 篇,占论文总数的 17.28%,其中 12 篇论文的完成单位均为重庆市和湖北省的高校和研究所。期刊论文方面,表 2 列出了刊载篇数 2 篇的中英文期刊发文情况。对于中文期刊论文,环境学方面的期刊刊载最多,《环境科学》《环境科学与技

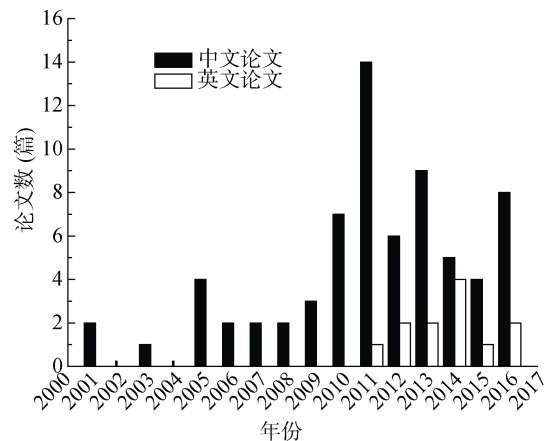


图 3 三峡库区消落带土壤/沉积物重金属研究中英文论文发表数量

Fig. 3 Annual yield of published papers in Chinese and English on heavy metals in WLFZ in TGR

术》《环境化学》及其他环境学方面的期刊共 16 篇,占论文总数的 19.75%。其次是土壤科学方面的期刊如《水土保持学报》《土壤学报》及《土壤通报》等共 8 篇,占论文总数的 9.88%。此外,生态学方面的期刊如《水生态学杂志》《生态科学》《中国生态农业学报》等共 4 篇,占论文总数的 4.94%。以上表明三峡消落带土壤/沉积物重金属的研究受到了多种学科科研工作者的关注。而对于英文期刊论文,只有“Environmental Science and Pollution Research”刊载了 2 篇,其余刊载英文期刊包括“Environmental Pollution”、“Science of the Total Environment”及“Ecological Indicators”等(均为 1 篇,表中未列出)。

1.2.4 关键词统计 按论文的关键词对检索文献进行统计分析,结果如表 3 所示。中英文文献中普遍

表 2 刊载篇数 2 篇及 2 篇以上的期刊汇总
Table 2 Collection of Journals published at least 2 related articles

期刊名称	刊载论文量(篇)
环境科学	5
环境科学与技术	3
环境化学	3
水土保持学报	2
土壤学报	2
土壤通报	2
水生态学杂志	2
环境科学研究	2
重庆三峡学院学报	2
环境与健康杂志	2
西南农业大学学报(自然科学版)	2
Environmental Science and Pollution Research	2

存在的关键词为“重金属”、“三峡”、“消落带”/“消落区”等。此外，“调查”或“评价”是出现频率最多的关键词，共有 20 篇；而“分布”、“形态”、“迁移”等也是较常见的关键词。以“修复”为关键词的论文是最少的，只有 6 篇。可见，对三峡消落带土壤/

表 4 三峡库区土壤中主要重金属含量(mg/kg)

Table 4 Contents of main heavy metals in TGR

统计因子	Zn	Cu	Pb	Cr	Hg	As	Cd
含量范围	36.1~318.75	7.0~98.78	9.2~145	14.5~145.23	0.009~3.72	2.8~60.14	0.01~3.03
均值	105.37	33.92	27.66	48.92	0.16	11.95	0.58
三峡库区背景值 ^[8]	69.88	25.0	23.88	78.03	0.046	5.84	0.13

由表 4 可看出，主要重金属元素 Zn、Cu、Pb、Cr、Hg、As、Cd 中除 Cr 外均已超过三峡库区背景值，且每种重金属元素的含量范围均跨度很大，这与三峡库区地域及土地利用类型有关。三峡库区的土地利用类型主要有农用地(耕地、园地、林地)、采矿地、城镇住宅及工业用地和荒地。香溪河流域分布有磷矿，其土壤中的 Cr 含量显著高于其他土地利用类型，最高含量达背景值的 2 倍左右，而其余地区的 Cr 含量大多在背景值以下。农用地的 Cd 含量相对较高，最高含量达到 3.03 mg/kg^[9]，与农药化肥的施用有关，是其余土地类型中的 5~10 倍。工业较集中的地方 Zn 含量普遍高于其他土地利用类型，城镇住宅区的 Cu、Hg、Pb 污染较为突出。荒地的重金属污染相较前面几种类型较为轻缓，除部分荒地 As 含量超过均值 1 倍外，其余重金属含量多在均值以下。

除土地利用类型外，蓄水情况也是影响土壤重金属含量的因素之一。三峡工程蓄水前，长江干流忠县

表 3 文献中主要关键词统计情况
Table 3 Statistics of major key words in retrieved literatures

关键词	论文数(篇)	关键词	论文数(篇)
重金属	58	污染	19
三峡	50	吸附/解吸	12
消落带	47	沉积物	12
土壤	34	分布	10
调查	20	形态	10

沉积物重金属的研究主要集中在重金属的污染评价及其地球化学行为方面。

2 研究内容及进展

2.1 消落带土壤重金属污染调查与评价

土壤重金属类别及含量的调查是其环境风险评价的前提。三峡库区消落带该主题的中英文文献分别有 34 篇、8 篇，占有检索文献的 51.85%。陈梓云与彭梦侠^[10-12]最早展开了三峡库区消落带土壤重金属(Pb、Cr、Cd)的背景调查工作。表 4 总结了三峡库区消落带土壤中主要重金属含量。

至奉节段及支流彭溪河(也称小江)消落带土壤中 Pb、Cr 含量均在自然背景范围内，Cd 含量达到土壤环境质量标准(GB15618-1995)二级标准^[10-12]。从土壤类型来看，石灰岩土中重金属的含量普遍高于紫色土和潮土^[13]。土壤剖面上，淋溶层、淀积层与母质层中重金属分布存在较大异质性，表层土壤中 Hg、Cd、As 含量的变异系数均较高(>60%)，且 Cd 表现出强烈的表层富集特征^[14-15]。消落带高程内(145~175 m)重金属含量呈现上部>中部>下部的分布方式^[10-12]。2010 年完全蓄水后，消落带下部(145~155 m)土壤中重金属含量持续增高，表明消落带下部土壤/沉积物有重金属富集的趋势^[1, 16-18]。此外，消落带不同区段上重金属也存在较大的空间异质性。长江干流消落带的样带调查研究表明，土壤中重金属在空间区域上总体呈现出库尾和坝址前区段较高，中间段较低的“两头高中间低”的分布特征，主要与库尾重庆主城区污染物的集中排放、库区下游石灰岩成土母质特征及上游携带

污染物在坝址前区段内沉积的影响有关^[15, 19-21]。但也有学者研究发现,从重庆主城沿江而下,除 Cd 外,其余重金属(Hg、Pb、Zn、Cr、As)平均含量逐渐降低^[16, 22]。这可能与不同学者在消落带采样点的高程、土地利用方式不同有关。在干流消落带两岸,土壤中重金属(Cu、Zn、Cd、Hg)含量存在显著差异。相对于左岸消落带,右岸消落带土壤中重金属平均含量更高且变异系数更大^[16]。而干流消落带与支流消落带相比,干流土壤或沉积物中重金属含量均相对较高^[1, 18, 23],这与三峡工程蓄水前消落带的情况类似^[10-12]。虽然三峡消落带淹水年限不长,但长江上游持续的高负荷泥沙输入及三峡水库特定的水位调节模式导致消落带泥沙强烈的沉积效应。消落带泥沙沉积物中重金属含量显著高于底层土壤剖面中重金属含量^[18, 20, 24],这是悬移质泥沙富集携带重金属能力较强所致^[1, 6]。类似土壤中的情况,消落带下部沉积物中重金属含量也普遍高于上部消落带,主要归因于富集重金属能力更强的细颗粒在消落带下部的沉积^[8, 18, 25]。

在三峡库区消落带土壤及沉积物重金属含量调查基础上,污染评价有助于鉴别消落带主要污染元素,对重金属污染控制有重要作用。文献中广泛采用的污染评价方法包括:单因子污染指数法、内梅罗综合污染指数法、地球化学评价方法。单因子污染指数或内梅罗综合污染指数法是参照土壤环境质量标准(GB15618-1995)进行的重金属污染评价。地球化学评价方法主要基于区域重金属的自然背景并考虑到人为活动因素来衡量重金属的污染程度,常用的指标包括地累积指数(I_{geo})和富集因子(Enrichment Factor)。Hakanson 潜在生态风险指数法在地球化学评价的基础上,进一步考虑重金属的毒性参数对生态系统健康的影响。表 5 列出了这些评价方法的代表性结果。不同学者监测评价的点位、时间及重金属类别不同,但从区域层面来说,Cd 是目前三峡库区消落带土壤和沉积物中污染程度最大的重金属元素。此外,Pb、As、Hg 等在某些点位也存在不同程度的污染。

表 5 三峡库区消落带土壤及沉积物中重金属评价方法及结果

Table 5 Assessment methods and results of heavy metal pollution in soil and sediment in WLFZ of TGR

评价指标	主要风险元素	污染程度	参考文献
单因子污染指数	Cd、As、Cu	轻度污染	[22, 26-27]
内梅罗综合污染指数	Cd、Cu、Pb	轻度污染	[22, 27]
地累积指数	Cd、Pb、As、Hg、Cu	轻度-重度污染	[1, 18, 28-30]
富集因子	Cd、Pb、As、Hg	中度-重度污染	[1, 21]
潜在生态风险指数	Cd	高-严重污染	[4, 18, 31]

2.2 消落带重金属来源分析

重金属的来源分析包括源识别和源解析。源识别主要是定性地揭示环境介质中不同重金属元素的潜在来源。而源解析则进一步定量确定不同源对不同金属元素的输入贡献。三峡库区消落带土壤及沉积物中重金属的潜在来源包括:自然源、工业废弃物、农业源(肥料和农药)、生活废弃物、交通污染物以及上游来水输入等。

目前该区域采取的重金属源识别的方法包括相关分析、主成分分析(PCA)、因子分析(FA)。通过对比重金属元素之间或重金属含量与土壤/沉积物特征参数(如有机质含量、粒径等)之间的相关系数,张雷等^[32]指出三峡库区澎溪河消落带土壤重金属主要是人为源而非自然源,且 Pb、Hg、Cu、As 可能有相似的污染来源。同时邹曦等^[33]对澎溪河消落带的分析表明 Cu、Pb 和土壤有机质显著相关,推断 Cu 和 Pb 主要源于农业。敖亮等^[8]通过主成分分析法识别了忠县消落带不同高程(155 ~ 175 m)土壤中

重金属的来源。因子分析通过提取因子载荷,分析变量间的相互联系,进而推测重金属的来源。叶琛等^[21, 34]通过对三峡库区 12 个区县消落带表层土壤重金属的因子分析,并根据各个重金属元素的载荷得出 Cd、Pb、Cu、Zn、Mn 主要源于工业废水,Cr、Fe 主要源于自然风化,As 主要源于生活废水,而 Hg 主要源于交通运输等。在因子分析的基础上,结合多元统计分析的因子分析-多元线性回归(FA-MLR)方法能够定量确定各个污染源对不同重金属的输入贡献。表 6 列出了三峡库区消落带不同区域土壤重金属源解析的结果。总的来说,矿物的自然风化是 Cr 的主要来源,贡献比例超过 72%。消落带周边的陆路和水路运输对 Pb 和 Hg 的贡献比例较高。对于农业消落带,化肥(尤其是磷肥)的施用是消落带土壤 Cd 的主要来源,贡献比例超过 60%;农药对 Cu 有一定贡献(>15%);生活废水的排放对消落带土壤 As 的贡献比较突出(>45%);而工业废水的排放或堆积废渣的淋溶作用对多种重金属(如

Cd、Pb、Cu、Zn 等)均有显著贡献。消落带周边地质背景、工农业生产、生活和交通等状况不同,导

致消落带土壤中重金属的主要来源或污染贡献的比例产生较大异质性。

表 6 三峡库区消落带土壤重金属 FA-MLR 源解析结果
Table 6 Results of source apportionment of soil heavy metals in WLFZ of TGR

消落带区域	重金属	潜在污染源及贡献比(%)						参考文献
		农业源	工业废物	生活废物	自然风化	交通	其他	
香溪河	Pb	6.32	NM	NM	12.69	75.60	5.39	[17]
	Cd	62.03			8.70	22.35	6.92	
	Cu	15.21			64.71	11.20	8.88	
	Cr	9.50			75.36	12.09	3.05	
干流消落带	Hg	NM	11.0	4.1	4.7	80.0	NM	[35]
	As		34.3	45.2	16.6	3.9		
	Cr		15.8	10.4	72.7	1.2		
	Cd		59.0	21.3	6.6	13.1		
	Pb		73.3	0.6	20.0	6.1		
	Cu		62.2	5.3	14.8	17.7		
	Zn		50.3	17.2	20.4	12.1		

注: NM: not mentioned, 指文献中没有提到。

2.3 消落带重金属地球化学行为特征

2.3.1 重金属释放与迁移

以上不同途径来源的重金属进入消落带后,其在土壤和沉积物中的释放与迁移是消落带重金属主要的地球化学行为之一。该方面相关论文有 19 篇,占总检索文献的 23.46%。重金属的释放与迁移主要包括 3 种途径:消落带内部土体、土壤/沉积物-水界面及土壤/沉积物-植物界面。消落带出露期正值库区雨季集中降雨季节,以缓坡为主的地貌利于重金属在消落带坡面及垂向进行迁移。吉方英等^[36]的研究表明消落带出露期沉积物中重金属(Cd、Pb、Cu、Cr)的释放迁移能力较强,其平均迁移率介于 11.8%~33.5%。而胥焱等^[17]通过对三峡库区香溪河消落带出露初期(6月)与后期(9月)0~20 cm 和 20~40 cm 土壤重金属的调查研究证实,上述 4 种重金属在消落带内均以垂向迁移为主。普遍来说,土壤重金属有从高海拔向低海拔迁移的趋势,导致消落带下部土壤/沉积物中重金属的富集。重金属本身移动性较差,其在坡面的迁移与径流、泥沙等辅助运移有关。肖广全等^[37]通过土柱实验证实了三峡消落带土壤胶体能显著促进 Cd 在消落带土壤中的迁移。但对于消落带内部土体,研究偏重于重金属迁移的结果对其再分布的影响,缺乏产流产沙过程中重金属释放机理和迁移过程的探索。

在土壤/沉积物-水界面上,一方面,消落带淹水后,土壤/沉积物中部分重金属可能通过溶解、解吸而释放进入水体。重金属的释放量与土壤 pH、有机质含量及界面温度密切相关^[38-40]。同时,淹水可能导致重金属存在形式发生转化进而影响其在固液界面

的迁移能力。王欣悦等^[41]研究发现消落带长期淹水下,土壤中的汞易转化为甲基汞迁移进入上覆水。另一方面,库区弱碱性的江水利于水中重金属离子如 Pb、Cu 形成难溶物沉降进入土壤/沉积物^[42]。同时,淹水状态下溶解度较低的重金属硫化物的形成或土壤及沉积物中有机物(如胡敏酸)对重金属的吸附或络合作用也极大地促进水体中重金属向土壤/沉积物的迁移^[43]。总的来说,重金属在土壤/沉积物-水界面的交互作用与土壤特性、重金属自身化学性质和水体环境有关。

此外,消落带土壤/沉积物重金属还可能迁移进入植物并在植物体内进行转移分配,从而使消落带重金属污染土壤的植物修复成为可能。谌金吾等^[44]调查发现云阳消落带 14 种植物样品中 Cd、Cr、Cu、Mn、Pb 的生物富集系数(BF=植物重金属含量/土壤重金属含量)介于 0.000 04~0.695 2,其中 Cd、Cu 的 BF 值显著高于其余重金属。消落带土壤的盆栽试验证实,在不同重金属胁迫下,狗牙根、双穗雀稗、百喜草等草本植物以及秋华柳等灌木对 Cd 具有较高的生物吸收和富集能力,双穗雀稗、狗牙根、鸭拓草对 Cu 的生物吸收和富集能力较强^[45-48]。狗牙根作为三峡消落带生态系统恢复与重建中被广泛证实的优势草本植物,对多种重金属有较强的生物富集能力,同时具有显著的削减波浪侵蚀能力(减蚀效应>89%)^[49]。因此,消落带植被类型对土壤/沉积物-植物界面重金属的迁移影响较大。

2.3.2 重金属形态

虽然消落带土壤/沉积物中重金属的总量能一定程度反映其污染状况,但不同赋存

形态的重金属具有不同的地球化学行为特征,进而影响重金属的生物有效性和潜在环境风险。目前文献中广泛采用的重金属形态提取方法包括 Tessier 连续提取法和 BCR 提取法以及各自的改进方法。王亚平等^[50]对这些方法做了全面的总结和对比。Tessier 连续提取法常见的形态划分包括交换态、碳酸盐结合态、Fe-Mn 氧化物结合态、有机及硫化物结合态、残渣态。BCR 提取法则包括酸溶解态、可还原态、可氧化态以及残渣态。Tessier 连续提取法中的交换态和碳酸盐结合态包括吸附在颗粒表面或与碳酸盐结合的部分,可为生物直接利用或易于解吸释放而迁移,可被视为易迁移态,此部分基本对应于 BCR 提取法的酸溶解态部分^[1]。而 Fe-Mn 氧化物结合态、有机及硫化物结合态分别刻画的是被 Fe-Mn 氧化物吸附或包裹以及与有机质活性基团/疏离子结合的部分,主要对应于 BCR 提取法的可还原态和可氧化态。两种方法的残渣态均为包含在矿物晶格中的重金属形态,不具有生物可利用性或环境风险。

该主题检索文献有 18 篇,占总检索文献的 22.22%。基于前文重金属污染评价的结果,表 7 总结了污染水

平较高的 Cd、Pb、Cu 及 Hg 的形态分析结果。对于整个消落带(涪陵-巴东,表 7 文献[54]及[55]),Cd、Pb、Hg 易迁移态的平均比例分别为 38.51%、24.74%、>22.1%,表明消落带土壤/沉积物中 Cd、Pb、Hg 不仅污染程度高,还具有较高的可移动性和生物可利用性,环境风险较高。在 Bing 等^[1]和 Wei 等^[5]利用 BCR 提取分析的结果中消落带沉积物中 Cd 的酸溶解态平均比例更是超过 50%。因此,综合来看 Cd 是三峡库区消落带生态保护应优先考虑的重金属元素。但云阳消落带 Cu 的高活性态比例高达 64.00%(表 7 文献[44]),远高于万州消落带相应水平(0.60%,表 7 文献[53])或消落带平均水平,表明不同地区重金属赋存形态差异较大。重金属赋存形态的区域差异主要与重金属来源、总量及土壤性质如 pH、Eh、粒径分布、有机质等有关^[36, 51]。此外,Cd 和 Pb 均含有较高比例(>20%)的 Fe-Mn 氧化物结合态,消落带淹水情况下,该部分可能因 Fe-Mn 氧化物的还原而被释放进入水环境^[52],因而具有潜在的可迁移性。除以上重金属,Cr、Zn、Cu 在消落带土壤中均主要以残渣态形式存在,最高比例占到 90% 以上^[51, 53]。

表 7 三峡库区消落带土壤/沉积物中典型重金属形态构成及比例

Table 7 Fractions of typical heavy metals in WLFZ of TGR

重金属	Tessier 及其改进提取法各形态及比例(%)					可迁移态占比(%)	文献来源
	交换态	碳酸盐结合态	Fe-Mn 氧化物结合态	有机及硫化物结合态	残渣态		
Cd	10.30	28.21	34.78	12.22	14.49	38.51	[52]
	13.36	3.01	24.62	4.19	54.78	16.37	[44]
	12.66	2.53	53.16	8.86	24.05	15.19	[53]
Pb	1.54	23.20	29.74	5.38	40.04	24.74	[54]
	12.91	17.45	21.37	25.49	22.77	30.36	[44]
	0.33	0.33	52.46	11.01	35.91	0.66	[53]
Cu	1.21	8.62	9.23	29.60	51.33	9.83	[54]
	30.43	33.57	18.02	13.38	4.60	64.00	[44]
	0.33	0.27	11.50	16.04	71.86	0.60	[53]
Hg	水溶态	酸溶态	碱溶态	过氧化氢溶态	残渣态	可迁移态占比(%)	
	4.1	15.5	18.3	10.9	51.3	22.1~51.6	[55]

注: 包括交换态和碳酸盐结合态; 包括水溶态、酸溶态及碱溶态; 文献[53]是涪陵-巴东消落带的平均水平,文献[44]是云阳消落带,文献[53]是万州消落带,文献[55]是消落带重庆段 14 个区县。

3 结论

1) 三峡库区消落带土壤/沉积物中重金属研究以中文论文为绝对主体,占全年发文总数的比例均>55%。重庆市和湖北省的高校及研究所为主要的研究机构。关于重金属的污染调查与评价的研究主题所占

比例最高(51.85%)。

2) Cd 是消落带污染程度最高、生态风险最大的重金属元素。Pb、Hg、Cu 等在某些点位污染程度也较大且可迁移态比例较高(>20%)。重金属的分布及污染情况受三峡库区土地利用类型、消落带高程、地域及淹水状况的影响。

3) 消落带内部重金属以垂向迁移为主, 迁移率 <35%, 迄今为止消落带下部土壤及沉积物中重金属含量普遍呈现增加的趋势。土壤中 Cd、Cu、Zn 易迁移进入植物。土壤/沉积物中重金属向水体的释放迁移受淹水前后 pH、Eh、温度、有机质及重金属形态的变化影响较大。

4 展望

1) 消落带土壤理化性质和水力学性质变化对重金属地球化学行为影响的研究。在消落带季节性淹水-排干的交替作用以及夏季出露期降雨侵蚀的综合作用下, 消落带土壤理化性质及水力学性质变化较大^[27,56]。因此, 结合土壤物理、水文学以及环境科学的技术手段和方法对于更全面地刻画三峡库区消落带土壤自身特性的变化对重金属迁移的影响有重要意义。

2) 消落带土壤重金属迁移机理及其示踪技术的应用与模型拟合的研究。对于重金属, Pb 的同位素示踪技术目前应用相对成熟与广泛^[57-58], 但仅限于定性分析^[1]。此外, 其他环境介质中 Cd、Zn 等重金属的同位素示踪技术也有一定发展^[59-60]。因此, 如何利用多种重金属同位素的示踪技术获取三峡消落带中更可靠的重金属“指纹”信息, 并结合计算机与数学建模分析, 定量了解重金属来源及其在消落带内部、土水界面以及土壤与植物界面的迁移过程和归宿是今后需要加强的方向。

3) 消落带泥沙沉积对重金属再分布的影响与泥沙结合态重金属二次释放的研究。研究证实, 迁移进入径流或悬浮于江水中的泥沙颗粒富集重金属的能力较强^[18, 61]。其富集的重金属在泥沙再悬浮时可能导致泥沙(包括土壤胶体)结合态重金属再次释放或迁移进入水体。因此, 消落带泥沙沉积及其富集的重金属的二次释放或迁移的研究对“后三峡”时代库区生态安全有重要意义。

参考文献:

- [1] Bing H J, Zhou J, Wu Y H, et al. Current state, sources, and potential risk of heavy metals in sediments of Three Gorges Reservoir, China[J]. *Environmental Pollution*, 2016, 214: 485-496
- [2] Bao Y H, Gao P, He X B. The water-level fluctuation zone of Three Gorges Reservoir—A unique geomorphological unit[J]. *Earth-Science Reviews*, 2015, 150: 14-24
- [3] 刘冠男, 刘新会. 土壤胶体对重金属迁移行为的影响[J]. *环境化学*, 2013(7): 1308-1317
- [4] 王业春, 雷波, 杨三明, 等. 三峡库区消落带不同水位高程土壤重金属含量及污染评价[J]. *环境科学*, 2012, 33(2): 612-617
- [5] Wei X, Han L F, Gao B, et al. Distribution, bioavailability, and potential risk assessment of the metals in tributary sediments of Three Gorges Reservoir: The impact of water impoundment[J]. *Ecological Indicators*, 2016, 61: 667-675
- [6] Holbach A, Norra S, Wang L J, et al. Three Gorges Reservoir: Density pump amplification of pollutant transport into tributaries[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(14): 7798-7806
- [7] 吕明权, 吴胜军, 陈春娣, 等. 三峡消落带生态系统研究文献计量分析[J]. *生态学报*, 2015(11): 3504-3518
- [8] 敖亮, 雷波, 王业春, 等. 三峡库区典型农村型消落带沉积物风险评价与重金属来源解析[J]. *环境科学*, 2014, 35(1): 179-185
- [9] 林俊杰, 刘丹, 何立平, 等. 三峡库区消落带农作区镉污染特征研究[J]. *生态科学*, 2011(6): 586-589
- [10] 陈梓云, 彭梦侠. 三峡库区消落带土壤中铅污染调查[J]. *土壤与环境*, 2001, 10(2): 165-166
- [11] 陈梓云, 彭梦侠. 三峡库区消落带土壤中重金属铬调查与分析[J]. *四川环境*, 2001, 20(1): 53-54
- [12] 陈梓云, 彭梦侠. 三峡库区消落带土壤中镉污染调查及分析[J]. *西南民族大学学报(自然科学版)*, 2003, 29(4): 494-495
- [13] 韩勇. 三峡库区消落带污染特性及水环境影响研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2007
- [14] 唐将. 三峡库区镉等重金属元素迁移富集及转化规律[D]. 成都: 成都理工大学, 2005
- [15] 裴廷权, 王里奥, 韩勇, 等. 三峡库区消落带土壤剖面中重金属分布特征[J]. *环境科学研究*, 2008, 21(5): 72-78
- [16] 刘丽琼, 魏世强, 江韬. 三峡库区消落带土壤重金属分布特征及潜在风险评价[J]. *中国环境科学*, 2011, 31(7): 1204-1211
- [17] 胥焘, 王飞, 郭强, 等. 三峡库区香溪河消落带及库岸土壤重金属迁移特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2014, 35(4): 1502-1508
- [18] Tang Q, Bao Y H, He X B, et al. Sedimentation and associated trace metal enrichment in the riparian zone of the Three Gorges Reservoir, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 479: 258-266
- [19] 黎莉莉, 张晟, 刘景红, 等. 三峡库区消落区土壤重金属污染调查与评价[J]. *水土保持学报*, 2005, 19(4): 127-130
- [20] 王图锦, 杨清伟, 潘瑾, 等. 三峡库区消落带土壤与沉积物重金属分布特征[J]. *环境化学*, 2013, 32(4): 700-701
- [21] Ye C, Li S Y, Zhang Y L, et al. Assessing soil heavy metal pollution in the water-level-fluctuation zone of the Three Gorges Reservoir, China[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 191(1/2/3): 366-372
- [22] 张艳敏, 刘海, 魏世强, 等. 三峡库区消落带不同垂直高程土壤重金属污染调查与评价[J]. *中国农学通报*, 2011, 27(8): 317-322

- [23] 王永艳, 文安邦, 史忠林, 等. 三峡库区典型支流库湾消落带沉积泥沙特征及重金属评价[J]. 环境科学, 2016, 37(3): 935-941
- [24] Wang Y C, Lei B, Yang C H, et al. Heavy metal contamination from sediment and soil in the riparian zone of the Three Gorges Reservoir, China// Zhang L. Applied mechanics and materials[C]. Environmental Technology and Resource Utilization II. 2014: 675-677
- [25] Cao Z J, Bao Y H. Sediment quality in the water-level-fluctuation-zone of the Three Gorges Reservoir, China// Collins A L, Golosov V, Horowitz A J, et al. Erosion and sediment yields in the changing environment[C]. IAHS Publication, 2012: 114-121
- [26] 罗毅, 敖亮, 罗财红, 等. 三峡库区消落带土壤镉环境风险研究[J]. 环境科学与管理, 2014(5): 180-183
- [27] 储立民, 谢宗强, 常超, 等. 三峡水库蓄水对消落带土壤重金属的影响[J]. 土壤学报, 2011, 48(1): 192-196
- [28] 胥焘. 三峡库区香溪河区域重金属污染溯源、风险评价及植物修复初步研究[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2014
- [29] Ye C, Li S Y, Zhang Y L, et al. Assessing heavy metal pollution in the water level fluctuation zone of China's Three Gorges Reservoir using geochemical and soil microbial approaches[J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2013, 185(1): 231-240
- [30] Wang T J, Pan J, Liu X L. Characterization of heavy metal contamination in the soil and sediment of the Three Gorges Reservoir, China[J]. Environmental Letters, 2017, 52(3): 201-209
- [31] Lin J J, Fu C, Zhang X D, et al. Heavy metal contamination in the water-level fluctuating zone of the Yangtze River within Wanzhou Section, China[J]. Biological Trace Element Research, 2012, 145(2): 268-272
- [32] 张雷, 秦延文, 赵艳明, 等. 三峡澎溪河回水区消落带岸边土壤重金属污染分布特征[J]. 环境科学学报, 2012, 32(12): 3021-3029
- [33] 邹曦, 郑志伟, 张志永, 等. 三峡水库小江流域消落区土壤重金属时空分布与来源分析[J]. 水生态学杂志, 2012(4): 33-39
- [34] 叶琛, 李思悦, 张全发. 三峡库区消落区表层土壤重金属污染评价及源解析[J]. 中国生态农业学报, 2011, 19(1): 146-149
- [35] Ye C, Li S Y, Zhang Y L, et al. Assessing soil heavy metal pollution in the water-level-fluctuation zone of the Three Gorges Reservoir, China[J]. Journal of Hazardous Materials, 2011, 191(1/2/3): 366-372
- [36] 吉芳英, 王图锦, 胡学斌, 等. 三峡库区消落区水体-沉积物重金属迁移转化特征[J]. 环境科学, 2009, 30(12): 3481-3487
- [37] 肖广全, 温华, 魏世强. 三峡水库消落区土壤胶体对Cd在土壤中迁移的影响[J]. 水土保持学报, 2007, 21(4): 16-20
- [38] 蒲鹏. 三峡库区消落带沉积物的 Cd^{2+} 吸附特征及对水体污染潜在危害研究[D]. 重庆: 西南大学, 2011
- [39] 王素梅. 三峡库区消落带土壤对 Cu、Zn 的吸附-解吸特征研究[D]. 武汉: 华中农业大学, 2011
- [40] Zheng S N, Chen C, Li Y N, et al. Characterizing the release of cadmium from 13 purple soils by batch leaching tests[J]. Chemosphere, 2013, 91: 1502-1507
- [41] 王欣悦, 贺春风, 孙荣国, 等. 三峡库区消落带土壤淹水过程中汞的释放及甲基化特征[J]. 环境化学, 2015(1): 172-177
- [42] 傅杨武, 陈明君, 祁俊生. 重金属在消落带土壤-水体系中的迁移研究[J]. 水资源保护, 2008, 24(5): 8-11
- [43] 傅杨武. 三峡水库消落带土壤-水系统中重金属模拟研究[J]. 环境科学与技术, 2007, 30(10): 14-16
- [44] 谏金吾, 孙一铭, 杨占南, 等. 三峡库区云阳消落带土壤重金属形态及其在植物中的富集和转移[J]. 中国岩溶, 2012, 31(4): 415-422
- [45] 陈明君, 傅杨武, 周群英, 等. Cd、Zn 在水体-土壤-双穗雀稗间的迁移模拟研究[J]. 环境科学与技术, 2015(7): 65-70
- [46] 莫福孝, 秦宇, 杨白露. 3种植物对三峡库区消落带土壤重金属铜和镉的去除效果[J]. 贵州农业科学, 2013, 41(8): 204-206
- [47] 曾成城. 水淹条件下秋华柳对 Cd 污染土壤生化特征的影响[D]. 重庆: 西南大学, 2016
- [48] 莫福孝. 三峡库区消落带土壤重金属污染特征及植物修复技术研究[D]. 重庆: 重庆交通大学, 2014
- [49] 钟荣华, 贺秀斌, 鲍玉海, 等. 狗牙根和牛鞭草的消浪减蚀作用[J]. 农业工程学报, 2015, 31(2): 133-140
- [50] 王亚平, 黄毅, 王苏明, 等. 土壤和沉积物中元素的化学形态及其顺序提取法[J]. 地质通报, 2005, 24(8): 728-734
- [51] 王晓阳, 傅瓦利, 张蕾, 等. 三峡库区消落带土壤重金属 Zn 的形态分布特征及其影响因素[J]. 地球与环境, 2011, 39(1): 85-90
- [52] 李佳璐, 姜霞, 王书航, 等. 丹江口水库沉积物重金属形态分布特征及其迁移能力[J]. 中国环境科学, 2016(4): 1207-1217
- [53] 牟新利, 刘婷, 郭佳, 等. 三峡库区万州段消落带土壤重金属形态风险评价[J]. 光谱实验室, 2013, 30(5): 2072-2077
- [54] 王图锦, 杨清伟, 潘瑾, 等. 三峡库区消落带沉积物重金属形态分布特征[J]. 环境与健康杂志, 2012, 29(10): 905-909
- [55] 张成, 陈宏, 王定勇, 等. 三峡库区消落带土壤汞形态分布与风险评价[J]. 环境科学, 2014, 35(3): 1060-1067
- [56] 康义. 三峡库区消落带土壤理化性质和植被动态变化研究[D]. 北京: 中国林业科学研究院, 2010

- [57] 孙境蔚, 胡恭任, 于瑞莲, 等. 多元统计与铅同位素示踪解析旱地垂直剖面土壤中重金属来源[J]. 环境科学, 2016, 37(6): 2304–2312
- [58] 杨皓, 范明毅, 黄先飞, 等. 铅同位素在示踪土壤重金属污染研究中的应用[J]. 环境工程, 2015(12): 138–141
- [59] 李焕, 陈玖斌, 蔡虹明. 河流重金属污染源同位素示踪研究进展: 以法国塞纳河锌同位素研究为例[J]. 矿物岩石地球化学通报, 2014, 33(6): 941–949
- [60] 王银泉, 周涛发, 李湘凌. 镉同位素示踪技术在土壤和沉积物镉污染来源解析中的应用进展[J]. 矿物学报, 2013: 713–714
- [61] 严刚刚. 三峡库区重庆典型弯道段泥沙与重金属污染物关系研究[D]. 重庆: 重庆交通大学, 2014
- [62] 唐强, 贺秀斌, 鲍玉海, 等. 三峡水库干流典型消落带泥沙沉积过程[J]. 科技导报(北京), 2014(24): 73–77

Bibliometrical Analysis on Pollution Characteristics of Heavy Metals in Soil of Water Level Fluctuating Zone of Three Gorges Reservoir

SUN Honglei^{1,2}, ZHANG Wei^{3*}, CUI Junfang², ZHANG Jianqiang¹, TANG Xiangyu²

(1 Faculty of Geosciences and Environmental Engineering, Southwest Jiaotong University, Chengdu 611756, China; 2 Key Laboratory of Mountain Surface Processes and Ecological Regulation, Institute of Mountain Hazards and Environment, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610000, China; 3 School of Tourism and Land Resource, Chongqing Technology and Business University, Chongqing 400067, China)

Abstract: Increasing attention has been paid to heavy metal study in soil/sediment of the water fluctuating zone (WLFZ) in the Three Gorges Reservoir (TGR). The fate of heavy metals is significantly important to the water and ecological safety in the TGR region. The status quo of heavy metal study in soil/sediment of WLFZ in the TGR from 2001 to 2016 was critically reviewed based on the bibliometrical analysis according to the current publications in the database of CNKI and Web of Science. To date, in total of 81 papers, including 69 papers in Chinese and 12 papers in English, were published globally. 2011 had the most publications (15 papers) and the annual amount thereafter stayed no less than 5. The universities and institutes of Chongqing Municipality and Hubei Province were the major contributors to these publications. 19.75% of the papers were published in the journals related to environmental science while the topic of investigation and evaluation of heavy metal pollution contained the most publications (51.85%). Cadmium (Cd) showed the highest degree of contamination with the proportion of the readily movable form exceeding 38%. Therefore, Cd is the primary element for heavy metal pollution control. Fertilization was the major source of Cd in the agricultural WLFZ. Lead (Pb) and Mercury (Hg) in soil/sediment of WLFZ also showed a high contamination degree with the proportion of the readily movable form exceeding 22%. Traffic wastes were the major source for these two heavy metals. In addition, the industrial wastes that were discharged as point sources in the TGR region generally contributed to the accumulation of heavy metals, e.g., Cd, Pb, Cu, Zn and As in the WLFZ. Heavy metals travelled mainly downward in the WLFZ while Cd, Cu and Zn were relatively easily absorbed by several plants in this area. The variations of pH, Eh, temperature and humic matter due to the impoundment of WLFZ exerted great effects on the interactions of heavy metals at soil/sediment-water interface. In the future, the influence of soil physiochemical and hydraulic property variations, the application of isotope tracing technology of typical heavy metals as well as the re-releasing characteristics of sediment associated heavy metals are suggested to be further considered in the WLFZ of TGR region.

Key words: Three Gorges Reservoir; Water level fluctuating zone; Heavy metal; soil; Bibliometrical analysis