

松嫩平原黑土核心区土壤砷空间变异特征及污染评价^①

张立¹, 雷风华², 崔玉军¹, 杨元江¹, 王恩宝¹

(1 黑龙江省自然资源调查院, 黑龙江省黑土地水土资源研究重点实验室, 哈尔滨 150036; 2 中国地质调查局成都地质调查中心, 成都 610081)

摘要: 基于多目标区域地球化学调查数据, 采用地统计分析与 GIS 空间分析方法, 对松嫩平原黑土核心区土壤 As 含量进行冷热点分析和空间变异特征分析, 运用地累积指数法、潜在生态风险指数法对研究区土壤 As 污染进行了评价。结果表明: 研究区土壤 As 含量范围在 2.1 ~ 107.7 mg/kg, 平均含量 9.09 mg/kg, 略高于黑龙江省松嫩平原土壤 As 含量背景值; 土壤 As 高值聚类区主要分布在呼兰河上游, 低值聚类区主要分布在呼兰河下游和松花江流域; 土壤 As 含量具有强烈的空间自相关性, 以结构性变异为主, 空间分布受成土母质、水系等因素影响显著; 研究区 98.52% 的地区为无污染的状态, 99.88% 的地区为低潜在生态风险。建议通过改善农业耕作方式、调整种植结构、减少农药和化肥使用量等人为因素来减缓土壤中 As 含量增加的趋势。

关键词: 砷; 农业土壤; 空间变异; 污染评价; 黑土核心区

中图分类号: X53 文献标志码: A

Spatial Variability and Pollution Evaluation of Soil Arsenic in the Core Area of Black Soil in Songnen Plain

ZHANG Li¹, LEI Fenghua², CUI Yujun¹, YANG Yuanjiang¹, WANG Enbao¹

(1 Heilongjiang Institute of Natural Resources Survey, Key Laboratory of Black Soil and Water Resources Research of Heilongjiang Province, Harbin 150036, China; 2 Chengdu Center of Geological Survey, China Geological Survey, Chengdu 610081, China)

Abstract: Based on the multi-objective regional geochemical survey data, soil arsenic (As) content in the core area of black soil in Songnen Plain was analyzed by means of geostatistical analysis and GIS spatial analysis, and soil As pollution was evaluated by means of geo-accumulation index and potential ecological risk index. The results showed that soil As content ranged from 2.1 to 107.7 mg/kg with the average of 9.09 mg/kg, slightly higher than the corresponding background value of soil As. The high-value clustering area of soil As was mainly distributed in the upper reaches of Hulan River, while the low-value clustering area was mainly distributed in the lower reaches of Hulan River and Songhua River basin. Soil As content had a strong spatial autocorrelation, which is dominated by structural variation. The spatial distribution of soil As was significantly affected by factors such as soil parent material and water system. 98.52% or 99.88% of the study areas were pollution-free or with low potential ecological risk. It is suggested to slow down the increase of soil As content by improving agricultural cultivation methods, adjusting planting structure, reducing the use of pesticides and chemical fertilizers and other human factors.

Key words: Arsenic; Agricultural soil; Spatial variability; Pollution evaluation; Core area of black soil

2017 年 10 月, 砷(As)被世界卫生组织国际癌症研究机构列入一类致癌物清单, 毒性高、危害大、难降解是 As 元素的重要特点^[1]。As 广泛存在于自然界中, 多以重金属的砷化物存在于金属矿床、硫化物矿床及火山岩地区^[2]。矿业活动是激活砷等有害重金属元素迁移能力的重要因素, 水是最主要的传输媒介,

As 的迁移转化受地球化学规律和当地水文动态所支配^[3]。在农业活动中, As 元素易在土壤-农作物-人体的迁移过程中被人体过量吸收, 进而引起人体肾脏、皮肤、心脑血管、血液系统及生殖系统病变, 甚至诱发癌变^[4-6]。建国以来, 我国陆续在 12 个省(区)发现地砷病^[7]。地方性砷中毒已成为全世界共同的难

①基金项目: 全国土壤现状调查及污染防治专项(GZTR20080103)和中国地质调查局项目(1212010511217)资助。

作者简介: 张立(1981—), 男, 陕西汉中人, 硕士, 高级工程师, 主要从事环境地球化学研究工作。E-mail: 11741785@qq.com

题, 以孟加拉国^[8]、印度^[9]、巴基斯坦^[10]和中国最为严重。因此, 土壤 As 污染已受到国内外学者的广泛关注。

习近平总书记考察黑土地时强调要保护好、利用好黑土地这个“耕地中的大熊猫”, 使之永远造福人民。松嫩平原黑土核心区土壤腐殖质含量是黄土和红壤土的 5 倍~10 倍, 这块土地上孕育出的农产品以品质优良而著称于世。近年来, 随着社会经济的高速发展、土地集约化利用程度的提高、农药化肥的过量使用, 土壤侵蚀、盐渍化、水环境污染、农产品农药残留和重金属含量超标等生态问题相继出现并日趋严重^[11-12]。前人对土壤 As 污染的研究大多集中在采矿区等人类活动引起的 As 污染^[13-15], 而关于农业土壤 As 的累积状况方面研究较少, 对黑土地土壤重金属污染评价方面的研究更少。张慧等^[16]对黑龙江省松嫩平原南部土壤重金属污染评价认为 97.72% 的土地无 As 污染; 高凤杰等^[17]对黑龙江省海沟河小流域耕地重金属污染进行评价, 结果表明, 土壤 As 有致癌斜率, 有一定的致癌风险; 陈玉东等^[18]对黑龙江省海伦市农田土壤重金属污染研究发现, 耕地土壤未受 As 污染, As 元素仅在海伦市西部有一些高含量点, 随着时间的变化 As 富集趋势不明显。土壤作为农业生产的载体, 在保障国家粮食质量安全方面起着至关重要的作用。因此, 对松嫩平原黑土核心区开展土壤重金属元素 As 污染调查及生态风险评价具有重要的现实意义。本研究以松嫩平原黑土核心区为研究对象, 采用冷热点分析与半方差函数拟合, 对土壤 As 含量进行空间变异性分析, 通过地累积指数法、潜在生态风险指数法对 As 进行污染评价, 并探讨影响 As 空间分布的主要因素, 为黑土地污染防治、农产品质量安全管理等提供科学理论依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于黑龙江省中部, 松嫩平原黑土核心区, 行政区划主要包括哈尔滨市、绥化市和伊春市辖的部分县市(图 1), 地理坐标为 $126^{\circ}00' \sim 128^{\circ}15' E$, $45^{\circ}40' \sim 47^{\circ}25' N$, 面积约 3.07 万 km^2 。该区属大陆性季风气候, 冬季干寒漫长, 夏季湿热短暂, 年平均气温 $1.2^{\circ}C$, 年平均降水量 $550 mm$ 。区内河流密布, 主要为松花江最大支流呼兰河及其支流, 包括依吉密河、欧根河、诺敏河、克音河、通肯河、泥河等, 南部松花江干流东西向贯穿全区。研究区成土母质主要为第四系冲洪积物和残积物, 包括冲洪积黄土状黏质

土、冲积黏质土、钙质岩残积物、泥质岩残积物、中性岩残积物、酸性岩残积物和冲积砂、砂砾石。松嫩平原黑土核心区地势平坦, 土地肥沃, 土壤类型有黑土、草甸土、黑钙土、暗棕壤、白浆土、水稻土和沼泽土等。土地利用类型以耕地为主, 耕地又以旱地为主, 水田为辅。松嫩平原黑土核心区是我国重要的商品粮生产基地, 粮食作物有玉米、大豆、水稻、高粱、马铃薯等, 经济作物有西瓜、甜菜、烟草等。

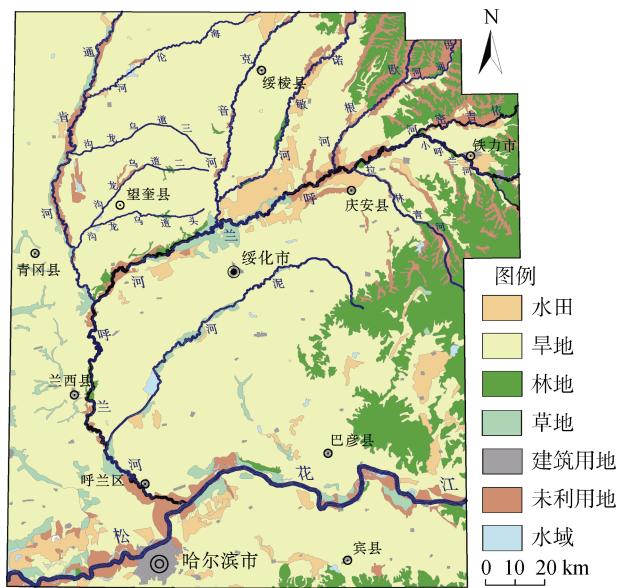


图 1 研究区位置及土地利用方式
Fig. 1 Location and land use patterns of the study area

1.2 样品采集与分析

土壤样品采样方法参照 DZ/T 0258—2014《多目标区域地球化学调查规范(1 : 250 000)》执行。按照网格化的方法进行采样点布设, 采样密度为 1 个点/ km^2 。样品布设以农业用地为主, 为了保证采样点的均匀性, 对部分大面积建设用地也进行了取样。以 GPS 定点为中心点位, 子样点位距中心点位距离约 20 m, 采集表土层($0 \sim 20 cm$)土壤, 保证上下均匀采集, 由 3 个等量子样混合组成一件样品, 样品重量约 1 kg, 共采集土壤样品 7 761 件。土壤样品自然风干后, 对干燥后的样品用木槌适当敲打、破碎, 过 $0.084 mm$ (20 目)尼龙筛, 混合均匀后称重 500 g 装入牛皮纸袋备用。

样品分析测试工作由黑龙江省地质矿产实验测试研究中心完成, 按照 $2 km \times 2 km$ 的网格将采集的 4 个土样混合成 1 件样品进行分析。采用 HNO_3 - H_2SO_4 - $HClO_4$ 进行土壤样品消解, 用原子荧光法(AFS)测定土壤中 As 的含量, 检出限为 $1 \mu\text{g/g}$; pH 采用玻璃电极法, 检出限为 0.05。分析过程中利用插入国家

土壤 I 级标准物质 GSS-1 ~ GSS-8 来进行质量监控, 分析方法准确度、精密度合格率达 100%, 报出率均为 100%。

1.3 数据处理与评价方法

1.3.1 数据处理 数据处理采用 Microsoft Excel 2016 软件, 统计分析运用 IBM Statistics SPSS19.0 软件; 半方差函数拟合及其参数确定利用 GS+7.0 软件; 冷热点分析、土壤 As 空间插值图利用 ArcGIS10.2 软件。

1.3.2 冷热点分析 利用 ArcGIS10.2 软件空间统计工具下的聚类分布冷热点分析模块(Getis - Ord Gi*), 将具有相似属性的空间数据进行分类。某个采样点的局部指数为正数且数值较高, 若其 As 含量与周围采样点 As 含量均为高值称为高值聚类(HH), 若其 As 含量与周围采样点 As 含量均为低值称为低值聚类(LL); 采样点的局部指数为负数且数值较高, 则采样点为离散点, 若其 As 含量为低值、周围采样点 As 含量为高值称为低高值聚类(LH), 若其 As 含量为高值、周围采样点 As 含量为低值称为高低值聚类(HL)。

1.3.3 空间变异分析 利用 GS+7.0 软件进行半方差函数的构建, 以残差最小、决定系数最大、样本间隔距离要小于最大变程为标准选择最优模型, 通过块金系数来判断 As 的空间自相关性及变异特征。将最优模型参数代入 ArcGIS10.2 软件空间分析模块下进行普通(kriging)插值, 得到土壤 As 空间分布图。

1.3.4 土壤污染评价 运用国内外土壤环境评价中广泛采用的地累积指数法对研究区土壤 As 含量进行评价^[19], 计算公式为:

$$I_{\text{geo}} = \log_2(C/kB) \quad (1)$$

式中: I_{geo} 为地累积指数; C 为土壤 As 含量实测值 (mg/kg); k 为修正系数, 用于校正区域背景值的差异, 一般取常数 1.5; B 为土壤 As 的区域背景值 (mg/kg)。 I_{geo} 分级标准: $I_{\text{geo}} \leq 0$, 无污染; $0 < I_{\text{geo}} \leq 1$, 轻微污染; $1 < I_{\text{geo}} \leq 2$, 轻度污染; $2 < I_{\text{geo}} \leq 3$, 中度污染; $3 < I_{\text{geo}} \leq 4$, 偏重污染; $4 < I_{\text{geo}} \leq 5$, 重污染; $I_{\text{geo}} > 5$, 高度污染。

按照瑞典科学家 Hakanson 提出的潜在生态风险指数法对研究区土壤 As 进行潜在生态风险指数评价^[20-21], 计算公式为:

$$E_r = (C_s/C_n) \times T_r \quad (2)$$

式中: E_r 为潜在生态风险指数; C_s 为土壤 As 含量实测值 (mg/kg); C_n 为计算所需的参比值, 以区域背景值为参照 (mg/kg); T_r 为毒性响应系数, As 的毒性响

应系数为 10。 E_r 分级标准: $E_r < 40$, 低潜在生态风险; $40 \leq E_r < 80$, 中等潜在生态风险; $80 \leq E_r < 160$, 中高等潜在生态风险; $160 \leq E_r < 320$, 高等潜在生态风险; $E_r \geq 320$, 极高潜在生态风险。

2 结果与分析

2.1 土壤砷含量描述性统计

本研究中原始数据采用 3 倍标准差法剔除离群数据后符合正态分布, 实际使用数据点为 7 726 个, 剔除异常值的数据更符合研究区实际情况。土壤 As 含量、pH 特征统计见表 1, 研究区 As 平均含量为 9.09 mg/kg, 略高于黑龙江省松嫩平原土壤 As 背景含量 8.6 mg/kg^[22], As 含量变化范围较大, 变幅为 2.1 ~ 107.7 mg/kg, 变异系数 27.72%, 呈中等程度变异。土壤 pH 变化范围较大, 平均值 6.79, 以酸性、中性土壤为主, 低于区域平均值。

表 1 土壤 As、pH 描述性统计
Table 1 Descriptive Statistics of soil As content and pH value

指标	范围	平均值± 标准差	变异系数 (%)	松嫩平原 平均值 ^①
As(mg/kg)	2.1 ~ 107.7	9.09 ± 2.52	27.72	8.6
pH	4.92 ~ 10.39	6.79 ± 0.95	13.99	8.06

2.2 土壤砷含量冷热点分析与空间聚类

运用 ArcGIS 冷热点分析模块对土壤 As 含量数据进行分析(图 2)。由图 2 可见, 4 个区域存在较明显的高值聚类(HH), 包括东北部铁力市、庆安县、绥棱县境内呼兰河上游支流; 西北部望奎县、青冈县境内通肯河流域; 中部绥化市周边呼兰河、泥河流域; 南部哈尔滨呼兰区和巴彦县。结合研究区河流分布特征, 高值聚类区与河流分布密切相关, 呼兰河上游支流、通肯河流域高值聚类区 As 含量主要受成土母质的影响, 其次受矿业活动、灌溉、地表径流和地形地貌的影响, 这两个区域成土母质酸性岩残积物、泥质岩残积物中 As 含量本身较高。绥化市周边、哈尔滨呼兰区和巴彦县高值聚类区分布于城镇区, 土壤 As 主要受人类活动影响。低值聚类区(LL)整体上相连, 主要分布在呼兰河下游、松花江干流、小呼兰河上游、拉林青河上游等地区, 其中呼兰河下游、松花江干流远离 As 潜在污染源, 污染物沿水系迁移过程中易受地形因素制约形成局部富集沉降; 小呼兰河上游、拉林青河上游低值聚类区位于污染源的上游, 污染物无

① 黑龙江省地质调查研究总院. 黑龙江省松嫩平原南部多目标区域地球化学调查报告. 2010.

法通过地表径流、水系等方式迁移至上游^[23]。总体来看, As 空间异常值较少, 仅有 68 个, 高低聚类区(HL)略高于低高聚类区(LH)。高低聚类区和低高聚类区分布上部分相似, 在巴彦县北部、庆安县拉林青河、铁力市小呼兰河流域均有分布, 其次, 高低聚类区还分布在松花江干流流域, 低高聚类区还分布在庆安县欧根河流域。推测这些异常值是由于采样环境或者分析误差造成的, 研究区土壤 As 平均含量较低, 且这些异常值相对于 As 平均值变幅不大, 不会对研究结果产生影响。

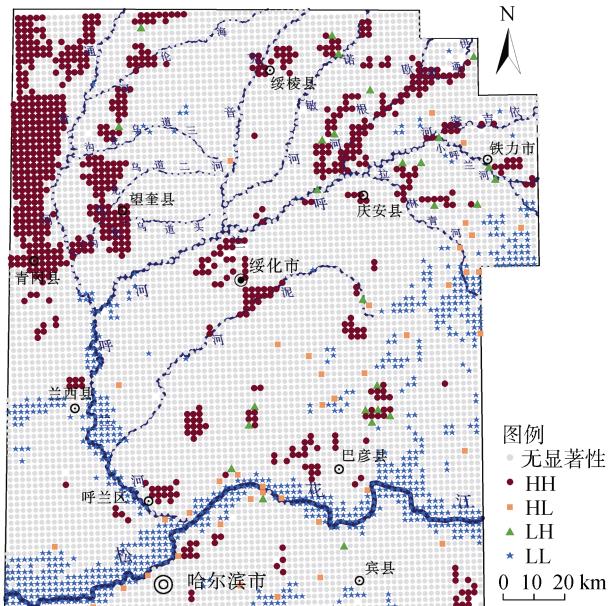


图 2 土壤样点 As 空间聚类
Fig. 2 Spatial clustering of As contamination in soil

2.3 土壤砷含量的空间变异

对土壤 As 含量进行半方差函数拟合, 4 种模型参数统计结果见表 2。 C_0 为块金方差, 表示取样间距为 0 时的方差, 代表随机性因素引起的变异; C 为结

构方差, 代表结构性因素引起的变异; C_0+C 为基台值, 是半方差函数随间距递增到一定程度后出现的平衡值, 表示系统内总的变异; a 为变程, 表示半方差达到基台值时的样本距离, 当样本的某变量观测值之间的距离大于该值时, 说明他们之间是相互独立的, 若小于该值, 说明他们之间存在着空间相关关系; 块金方差与基台值的比值 $C_0/(C_0+C)$ 为块金系数, 是反映区域化变量空间变异性程度的指标。块金系数可表示变量的空间自相关程度: 块金系数小于 25%, 变量具有强烈的空间自相关性; 块金系数在 25%~75%, 变量具有中等程度的空间自相关性; 块金系数大于 75%, 变量的空间自相关性很弱, 块金系数接近 1, 表明该变量在整个研究区域内各取样点之间是相互独立的, 即无空间自相关性^[24]。按照决定系数 R^2 越大, 残差平方和 RSS 越小, 拟合出的模型效果最优的原则^[25], 研究区土壤 As 含量以指数模型拟合效果最好(图 3), 块金方差和基台值分别为 0.118 和 1.922, 块金系数为 6.14%, 样点距离小于最大变程, 表明土壤 As 含量具有强烈的空间自相关性, 以结构性变异为主, 受自然条件因素影响显著。

依据半方差函数拟合结果, 利用 ArcGIS10.2 对土壤 As 含量进行普通 Kriging 空间插值, 绘制研究区土壤 As 含量空间分布图(图 4)。由图 4 可见, 研究区土壤 As 含量在 7~9 mg/kg 的面积分布最广; 高背景场在铁力和庆安以北呈小面积条状分布, 其次, 在青冈和望奎地区有大面积近南北向条带状较高背景场分布, 绥化、巴彦等地也有分布; 哈尔滨松花江沿岸土壤 As 含量呈极低背景场分布, As 含量范围在 4~7 mg/kg。As 空间分布特征与研究区水系分布高度吻合, 在呼兰河流域上游和中游 As 含量较高, 流域下游和松花江干流 As 含量明显降低, 这说明水系分布对土壤 As 含量特征有重要的影响。

表 2 半方差函数模型拟合参数
Table 2 Fitting parameters of the semivariogram models

模型名称	块金方差 C_0	结构方差 C	基台值(C_0+C)	块金系数(%)	决定系数 R^2	残差 RSS	变程 a (km)
指数模型	0.118	1.804	1.922	6.14	0.722	0.126	15.00
球形模型	0.001	1.905	1.906	0.05	0.632	0.166	10.30
线性模型	1.616	0.487	2.103	76.84	0.691	0.139	117.31
高斯模型	0.112	1.795	1.907	5.87	0.634	0.165	8.66

2.4 土壤砷污染评价

参照 GB 15618—2018《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》^[26]中土壤 As 风险管制值和风险筛选值的要求, 研究区未出现土壤 As 含量超过风险管制临界值, 有 12 件土壤样品 As 含量超

过风险筛选临界值, 超标率 0.16%, 表明研究区土壤 As 污染风险低, 可忽略不计。利用地累积指数法对研究区土壤 As 含量进行污染评价, I_{geo} 变化范围为 -2.62~3.06, I_{geo} 平均值为 -0.53。评价结果见表 3, 研究区土壤 As 绝大部分呈无污染的状态, 轻微污染、

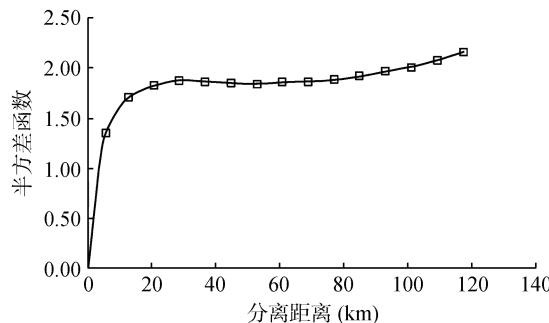


图 3 土壤 As 含量的半方差函数
Fig. 3 Semivariance function of soil As content

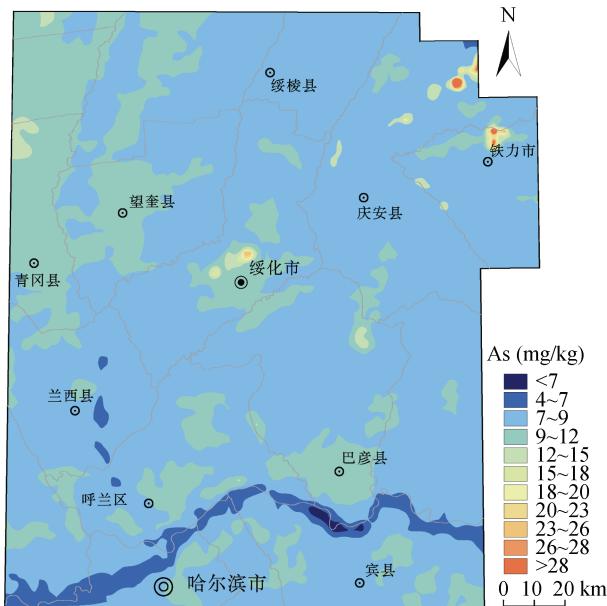


图 4 土壤 As 含量的空间分布
Fig. 4 Spatial distribution of As content in soil

表 3 土壤 As 地累积指数结果
Table 3 Geoaccumulation index of As in soil

I_{geo}	累积程度	样本数(件)	所占比例(%)
≤ 0	无污染	7 646	98.52
0 ~ 1	轻微污染	103	1.33
1 ~ 2	轻度污染	8	0.1
2 ~ 3	中度污染	3	0.04
3 ~ 4	偏重污染	1	0.01

轻度污染、中度污染和偏重污染的样本数分别为 103、8、3 和 1 件，无 As 重污染和高度污染的土壤。土壤 As 轻微污染、轻度污染、中度污染和偏重污染的样本数占总样本数的 1.33%、0.10%、0.04% 和 0.01%。对研究区土壤 As 进行潜在生态风险指数评价(表 4)，结果表明，研究区土壤 As 为中等潜在风险的样本仅有 6 件，中高等潜在生态风险的仅 3 件，其余样本均为低潜在生态风险，低潜在生态风险、中等潜在风险和中高等潜在生态风险的样本占比分别为

99.88%、0.08% 和 0.04%。由此可见，松嫩平原黑土核心区土壤几乎无 As 污染，土壤生态环境风险很低，对农作物的生长影响微乎其微。

表 4 土壤 As 潜在生态风险指数结果
Table 4 Potential ecological risk index of As in soil

E_r	风险程度	样本数(件)	所占比例(%)
<40	低潜在生态风险	7 752	99.88
40 ~ 80	中等潜在生态风险	6	0.08
80 ~ 160	中高等潜在生态风险	3	0.04

3 讨论

与区域背景相比，研究区土壤 As 平均含量略高于黑龙江省松嫩平原土壤 As 背景值(8.6 mg/kg)，两者土壤 As 含量均低于全国土壤 As 背景值(11.2 mg/kg)^[27]。研究区东北部呼兰河上游为黑龙江省伊春—延寿铅锌多金属成矿带，主要矿床有伊春昆仑气铅锌矿、铁力二股东山铁多金属矿、铁力二股西山铁多金属矿、铁力二股响水铁多金属矿等。东北部高值聚类区近临伊春—延寿多金属成矿带，受矿业活动影响明显。尽管矿业活动对研究区土壤 As 含量产生一定的影响，但不是造成土壤 As 含量呈空间异质性的主要原因。对研究区成土母质土壤 As 含量参数进行统计发现(表 5)⁽²⁾，母质层土壤 As 平均含量为 10.5 mg/kg，高于表层土壤 As 平均含量 9.09 mg/kg，由酸性岩残积物、冲洪积黄土状黏质土发育的土壤 As 含量明显高于由冲积砂、砂砾石和冲积黏质土发育的土壤。不同成土母质土壤 As 平均含量由高到低依次为酸性岩残积物>冲洪积黄土状黏质土>中性岩残积物>泥质岩残积物>钙质岩残积物>冲积黏质土>冲积砂、砂砾石。对不同成土母质土壤 As 含量进行单因素方差分析，因方差齐性检验结果显著性小于 0.05，认为不符合方差分析的条件，故而进行非参数检验，结果显示，Kruskal Wallis 检验的渐进显著性为 0.000，远小于显著水平 0.01，故可以非常显著地否定原假设，接受备择假设，即认为不同成土母质土壤 As 含量有显著性差异。

通过对黑土区土壤 As 含量的冷热点分析，可见 As 高值区域主要集中于呼兰河流域上游和中游，以呼兰河最大支流通肯河流域、欧根河流域表现最为明显。As 沿通肯河、欧根河流两侧呈高值聚类区，该类地区上游成土母质 As 含量较高是导致其呈 As 高

⁽²⁾ 黑龙江省地质调查研究总院. 黑龙江省海伦—庆安地区多目标区域地球化学调查报告. 2014.

表5 不同成土母质土壤As含量描述性统计
Table 5 Descriptive statistics of soil As contents with different parent materials

成土母质	样本数(件)	含量范围(mg/kg)	平均值±标准差(mg/kg)	变异系数(%)
冲积砂、砂砾石	222	2.3~22.5	8.05±3.41	42.36
冲积黏质土	111	3.2~21.1	9.55±3.38	35.39
冲洪积黄土状黏质土	1 370	3.8~24.0	10.90±2.05	18.81
钙质岩残积物	19	6.4~19.6	9.85±3.15	31.98
泥质岩残积物	92	5.7~16.1	10.17±2.02	19.86
中性岩残积物	17	8.0~15.3	10.64±2.16	20.30
酸性岩残积物	111	5.8~170.5	12.44±16.09	129.34

背景场的主要原因，其他可能途径包括矿业活动、大气沉降等带来As的累积，污染物随河流迁移及地表污水灌溉，进而形成大面积高背景场。地表径流携带污染物通过冲沟、溪涧注入河流，汛期洪水漫过河岸污染两侧农田土壤，以往相关研究也体现出这种典型的流域性污染特征^[28-29]。相反地，呼兰河下游、松花江干流两侧农田土壤As含量呈低背景场，有研究证明As随河流迁移距离较其他重金属元素来说较短^[30]。表6为研究区主要流域土壤As含量特征统计，由表6

可见，在呼兰河上游欧根河流域、通肯河流域土壤As平均含量为11.66 mg/kg和11.05 mg/kg，至呼兰河中游，土壤As平均含量递减为9.26 mg/kg，至呼兰河下游，土壤As平均含量下降到6.96 mg/kg，汇入松花江后，流域土壤As平均含量仅为6.21 mg/kg。另外，大量研究证明，As在土壤中的累积距水系距离的增加逐渐降低，在一定距离后趋于稳定状态^[31-32]。As沿河流分布的这种特征在一定程度上反映了元素的迁移、沉积和成土过程^[33]。

表6 研究区主要流域土壤As描述性统计
Table 6 Descriptive statistics of soil As contents in main watersheds of the study area

流域范围	样本数(件)	含量范围(mg/kg)	平均值±标准差(mg/kg)	变异系数(%)
呼兰河上游(欧根河流域)	100	9.6~16.4	11.66±1.63	13.98
呼兰河上游(通肯河流域)	430	9.7~14.9	11.05±0.75	6.79
呼兰河中游	421	6.4~16.1	9.26±1.21	13.07
呼兰河下游	94	5.2~8.2	6.96±0.71	10.20
松花江流域	424	2.1~8.4	6.21±1.36	21.90

土壤As含量除受成土母质的影响外，土地利用方式、农业耕作模式、化肥和农药投入等也会对土壤As含量及分布产生影响。研究区土地利用方式以耕地为主，耕地又以旱地为主、水田为辅，有研究表明^[32]在淹水状态下，As元素易被水稻所吸收，富集于稻米中。因此，水田土壤中As含量低于旱地土壤As含量。松嫩平原耕作制度为一年一熟，耕作方式以大型机械化作业为主，农业土壤多为春季翻耕，近年来政府大力提倡秸秆还田，有利于增加土壤有机质含量。通过推广秋季翻耕，可以使作物根茬直接粉碎还田，增加土壤肥力，改善土壤理化性质，促进微生物活动，加速土壤养分转化，减少低温冷害和病虫草害对农业生产的影响。化肥和农药的长期使用对土壤As的累积主要取决于化肥、农药中As的含量及其使用量，因此，推广使用有机肥、减少化肥和农药使用量都能有效地降低研究区土壤中As的含量。

4 结论

1)松嫩平原黑土核心区土壤As含量范围在2.1~107.7 mg/kg，平均含量9.09 mg/kg，为中等程度变异。空间分布上，呼兰河上游铁力、庆安地区土壤As含量呈较高背景场，松花江干流流域哈尔滨地区土壤As含量呈极低背景场。

2)冷热点分析结果表明，研究区存在4个高值聚类区，主要分布在呼兰河上游支流、通肯河流域、泥河流域和哈尔滨呼兰区、巴彦县。低值聚类区主要分布在呼兰河下游、松花江干流、小呼兰河上游、拉林青河上游等地区。

3)土壤As含量具有强烈的空间自相关性，以结构性变异为主，受成土母质、水系分布等自然条件因素影响显著。

4)以GB 15618—2018中风险筛选临界值为标

准, 研究区 99.84% 的土壤 As 含量未超标; 地累积指数污染评价结果显示, 98.52% 的地区为无污染的状态; 潜在生态风险指数评价结果显示, 99.88% 的地区为低潜在生态风险。尽管研究区土壤 As 含量较低, 但与区域背景值相比有所增加, 建议通过推广秋季翻耕、增加水稻种植面积、使用有机肥、减少农药和化肥使用量等人为因素来减缓土壤中 As 含量增加的趋势。

参考文献:

- [1] 汪花, 刘秀明, 刘方, 等. 喀斯特地区小尺度农业土壤砷的空间分布及污染评价[J]. 环境科学, 2019, 40(6): 2895–2903.
- [2] 钱朝海, 许云生, 涂世英. 浅谈砷污染的危害及砷制剂的正确使用[J]. 云南畜牧兽医, 2010(1): 41–42.
- [3] 张辉. 地带性人群砷中毒的环境背景因素及其研究现状[J]. 地质论评, 2000, 46(4): 443–448.
- [4] Alam M O, Chakraborty S, Bhattacharya T. Soil arsenic availability and transfer to food crops in sahibganj, India with reference to human health risk[J]. Environmental Processes, 2016, 3(4): 763–779.
- [5] Sharifi R, Moore F, Keshavarzi B, et al. Assessment of health risks of arsenic exposure via consumption of crops[J]. Exposure and Health, 2018, 10(2): 129–143.
- [6] Melak D, Ferreccio C, Kalman D, et al. Arsenic methylation and lung and bladder cancer in a case-control study in northern Chile[J]. Toxicology and Applied Pharmacology, 2014, 274(2): 225–231.
- [7] 新华. 我国成为地砷病危害严重的国家[J]. 中华养生保健, 2005(5): 53.
- [8] Chakraborti D, Rahman M M, Mukherjee A, et al. Groundwater arsenic contamination in Bangladesh—21 Years of research[J]. Journal of Trace Elements in Medicine and Biology, 2015, 31: 237–248.
- [9] Bhowmick S, Pramanik S, Singh P, et al. Arsenic in groundwater of West Bengal, India: A review of human health risks and assessment of possible intervention options[J]. Science of the Total Environment, 2018, 612: 148–169.
- [10] Shakoor M B, Bibi I, Niazi N K, et al. The evaluation of arsenic contamination potential, speciation and hydrogeochemical behaviour in aquifers of Punjab, Pakistan[J]. Chemosphere, 2018, 199: 737–746.
- [11] Yang Q Q, Li Z Y, Lu X N, et al. A review of soil heavy metal pollution from industrial and agricultural regions in China: Pollution and risk assessment[J]. Science of the Total Environment, 2018, 642: 690–700.
- [12] Zhang P Y, Qin C Z, Hong X, et al. Risk assessment and source analysis of soil heavy metal pollution from lower reaches of Yellow River irrigation in China[J]. Science of the Total Environment, 2018, 633: 1136–1147.
- [13] Morales N A, Martínez D, García-Meza J V, et al. Total and bioaccessible arsenic and lead in soils impacted by mining exploitation of Fe-oxide-rich ore deposit at Cerro de Mercado, Durango, Mexico[J]. Environmental Earth Sciences, 2015, 73(7): 3249–3261.
- [14] Qi J Y, Zhang H L, Li X P, et al. Concentrations, spatial distribution, and risk assessment of soil heavy metals in a Zn-Pb mine district in Southern China[J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2016, 188(7): 1–11.
- [15] Posada-Ayala I H, Murillo-Jiménez J M, Shumilin E, et al. Arsenic from gold mining in marine and stream sediments in Baja California Sur, Mexico[J]. Environmental Earth Sciences, 2016, 75(11): 1–16.
- [16] 张慧, 马鑫鹏, 苏航, 等. 松嫩平原黑龙江省南部土壤重金属背景值及污染程度分析[J]. 干旱地区农业研究, 2018, 36(6): 230–236.
- [17] 高凤杰, 王鑫, 韩晶, 等. 东北黑土区小流域耕地土壤重金属污染特征及健康风险评价: 以海沟河小流域为例[J]. 中国农业大学学报, 2020, 25(8): 73–83.
- [18] 陈玉东, 王火焰, 周健民, 等. 黑龙江省海伦市农田土壤重金属分布特征及污染评价[J]. 土壤, 2012, 44(4): 613–620.
- [19] 方传棣, 成金华, 赵鹏大, 等. 长江经济带矿区土壤重金属污染特征与评价[J]. 地质科技情报, 2019, 38(5): 230–239.
- [20] Hakanson L. An ecological risk index for aquatic pollution control: A sedimentological approach[J]. Water Research, 1980, 14(8): 975–1001.
- [21] 李秀章, 曹世欣, 刘汉栋, 等. 表层土壤重金属元素污染特征及潜在生态风险评价: 以山东省东部为例[J]. 地质科技情报, 2013, 32(4): 191–195.
- [22] 崔玉军. 黑龙江省松嫩平原南部农业地质综合调查评价[M]. 哈尔滨: 黑龙江人民出版社, 2017: 79–90.
- [23] 刘畅, 宋波, 张云霞, 等. 西江流域土壤砷含量空间变异与污染评价[J]. 环境科学, 2018, 39(2): 899–908.
- [24] 马宏宏, 余涛, 杨忠芳, 等. 典型区土壤重金属空间插值方法与污染评价[J]. 环境科学, 2018, 39(10): 4684–4693.
- [25] 师荣光, 赵玉杰, 周启星, 等. 苏北优势农业区土壤砷含量空间变异性研究[J]. 农业工程学报, 2008, 24(1): 80–84.
- [26] 生态环境部南京环境科学研究所, 中国科学院南京土壤研究所, 中国农业科学院农业资源与农业区划研究所, 中国环境科学研究院. GB 15618—2018, 土

- 壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)[S]. 北京: 中国标准出版社, 2018.
- [27] 魏复盛, 陈静生, 吴燕玉, 等. 中国土壤环境背景值研究[J]. 环境科学, 1991, 12(4): 12–19, 94.
- [28] 缪雄谊, 叶思源, 郝玉培, 等. 黄河三角洲表层土壤重金属环境质量评价[J]. 海洋科学, 2016, 40(2): 65–76.
- [29] Domínguez M T, Alegre J M, Madejón P, et al. River banks and channels as hotspots of soil pollution after large-scale remediation of a river basin[J]. Geoderma, 2016, 261: 133–140.
- [30] Anirban B, Saroni B, Arabinda D, et al. Spatial variability and competing dynamics of arsenic, selenium, iron and bioavailable phosphate from ground water and soil to paddy plant parts[J]. Groundwater for Sustainable Development, 2018, 7: 328–335.
- [31] 刘伟, 郜允兵, 潘瑜春. 农田土壤重金属空间变异多尺度研究[J]. 江苏农业科学, 2018, 46(23): 357–361.
- [32] 余雪莲, 李启权, 彭月月, 等. 成都平原核心区土壤砷空间变异特征及影响因素[J]. 环境科学研究, 2020, 33(4): 1005–1012.
- [33] 李启权, 张少尧, 代天飞, 等. 成都平原农地土壤镉含量特征及来源研究[J]. 农业环境科学学报, 2014, 33(5): 898–906.