

冻融集约化农区面源 重金属流失转化特征及原位稳定

欧阳威 郝芳华 林春野 著



科学出版社

“十二五”国家科技支撑计划课题“东北规模集约化农区农业面源污染
防控技术集成与示范”(2012BAD15B05)

国家自然科学基金项目“规模化冻融农区水文特征及非点源污染效应
研究”(No. 41371018)

共同资助

冻融集约化农区面源重金属 流失转化特征及原位稳定

欧阳威 郝芳华 林春野 著

科学出版社

北 京

内 容 简 介

针对我国冻融集约化农区农业生产过程中重金属蓄积、流失、转化和控制特征,本书首先分析了冻融集约化农区重金属和农药分布特征,对代表性流域研究了重金属流失及流失匡算,反演了重金属流失时空特征,重点研究了冻融循环过程和降雨等自然因素及翻耕和农药化肥等农业活动联合作用下,重金属流失转化特征的数据化响应特征,提出了利用秸秆等固体废弃物原位稳定重金属的原位控制效果,对于我国冻融集约化农区重金属面源污染物流失与控制工作提出了针对性建议。

本书可供环境科学与工程、农业资源与环境、农业生态工程等相关专业的科研人员与管理人员、高等院校相关专业师生阅读参考。

图书在版编目(CIP)数据

冻融集约化农区面源重金属流失转化特征及原位稳定/欧阳威,郝芳华,林春野著.—北京:科学出版社,2016.9

ISBN 978-7-03-050085-4

I. ①冻… II. ①欧… ②郝… ③林… III. ①三江平原—面源污染—重金属污染—研究 IV. ①X53

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2016)第 233764 号

责任编辑:朱 丽 / 责任校对:何艳萍
责任印制:张 伟 / 封面设计:耕者设计

科学出版社出版

北京东黄城根北街 16 号

邮政编码:100717

<http://www.sciencep.com>

北京中石油彩色印刷有限责任公司印刷

科学出版社发行 各地新华书店经销

*

2016 年 9 月第 一 版 开本: B5 (720×1000)

2016 年 9 月第一次印刷 印张: 15 1/4

字数: 292 000

定价: 78.00 元

(如有印装质量问题,我社负责调换)

前 言

面源污染一直是环境科学领域研究的热点问题,其中冻融集约化农区典型重金属污染物流失特征研究尚缺乏系统性,开展这一方面工作,对于农业大国的土壤环境和水体环境保护具有重要的理论意义和应用价值。农业面源重金属流失是指农田土壤中的重金属在降雨、灌溉等过程形成的径流冲刷作用下,扩散到其他环境(尤其是水体环境)中的过程。集约化农业活动被认为是引起环境中面源重金属流失的主要因素之一,低温-高温循环的冻融过程是一种冻融集约化农区相当常见的自然环境因子,不但对土壤物理化学和生物学性质有重要影响,而且能够影响地表径流和土壤侵蚀过程,进而影响土壤中重金属的面源流失转化特征。

本书内容立足于我国冻融集约化农区自然和人为因素的综合效应下的面源重金属流失问题,结合室内模拟分析与田间原位试验,研究了在冻融集约化农区这种特定环境中,典型环境因子 FT 作用下,代表性农用化学品农药的施用对面源重金属流失转化特征的潜在影响,并计算了各影响因子的潜在贡献率,探讨了其影响机制。具体开展工作包括:分析了不同开垦方式土壤中重金属和农药蓄积特征,确定主要环境和人为影响因素,揭示了长期农业集约化农业活动胁迫下典型重金属的面源流失特征,反演了长期农业大开发进程中典型重金属的蓄积过程;在室内试验分析与模型模拟的基础上,揭示了典型环境因素和农业活动干扰因素对典型重金属流失转化特征的潜在影响,通过回归通径分析,探讨了其影响机理;通过固定效应模型计算了各影响因子对典型重金属流失转化的潜在贡献率,通过合理利用当地固体废弃资源控制面源重金属流失,提供了一种既能有效将典型重金属固定在土壤中,同时能够保持土壤功能和生态完整性,又能减轻当地固体废物处置压力的经济环保型控制措施,旨在为我国土壤和地表水重金属污染的防控提供科学的理论依据和决策支持。

本书是“十二五”国家科技支撑计划课题“东北规模集约化农区农业面源污染防治技术集成与示范”和国家自然科学基金项目“规模化冻融农区水文特征及非点源污染效应研究”研究工作的总结,也是多位研究生论文的精华。本书写作分工如下:第1章绪论,由郝芳华、王芳丽和焦伟完成;第2章研究区概况,由欧阳威、王芳丽和郝芳华完成;第3章冻融集约化农区土壤中重金属和农药蓄积特征,由王芳丽、欧阳威完成;第4章不同土地开垦方式下重金属含量与形态变

异, 由焦伟、欧阳威完成; 第 5 章长期农业活动影响下土壤重金属运移和分布, 由焦伟、欧阳威完成; 第 6 章基于沉积物磷定量关系的流域土壤重金属流失负荷模拟, 由焦伟、郝芳华、欧阳威完成; 第 7 章基于沉积物应用的流域面源重金属流失历史反演, 由焦伟、林春野完成; 第 8 章冻融集约化农区农田土壤中面源镉流失特征, 由王芳丽、欧阳威完成; 第 9 章冻融作用下农药施用对土壤中镉等温吸附-解吸特性影响, 由王芳丽、林春野完成; 第 10 章冻融作用下农药施用对土壤中镉释放和形态转化特征影响, 由王芳丽、郝芳华完成; 第 11 章冻融作用下农药施用对不同水分含量土壤中镉流失的潜在贡献, 由王芳丽、林春野完成; 第 12 章集约化农区农田土壤中镉原位稳定技术, 由王芳丽、欧阳威完成; 第 13 章基于生物碳土壤改良应用的流域重金属污染防控建议, 由黄威佳、欧阳威完成; 第 14 章基于沉积物应用的流域重金属来源解析及污染防控建议, 由焦伟、欧阳威完成; 第 15 章结论与展望, 由王芳丽、焦伟完成。全书由欧阳威和林春野统稿。

在项目研究和书稿的撰写过程中, 得到黑龙江省实验农场、黑龙江省农科院、吉林农业大学和大连理工大学等部门的大力支持。本书的撰写还得到了北京师范大学环境学院程红光教授的大力协助。感谢课题组郭波波、魏鹏、高翔、黄浩波、黄威佳、蔡冠清、曹嘉祺、许雪婷、杨万新、史炎丹、吴雨阳、连仲民、鞠欣妍、徐宜雪、徐逸、邬昊天和张琦等同学的努力与贡献。

全书从重金属面源污染流失与控制的科学性和实用性角度, 在总结我国代表性冻融集约化农区重金属时空分布特征、污染风险和典型流域流失研究工作基础上, 阐述了运用固体废弃物并优化配置控制重金属污染的理论、方法和应用, 供广大环境科学与生态学工作者借鉴和批评。

作 者

2016 年 5 月

目 录

前言

第1章 绪论	1
1.1 研究背景及意义	1
1.1.1 研究背景	1
1.1.2 研究意义	3
1.2 研究现状	4
1.2.1 农田土壤重金属污染评价研究	4
1.2.2 农业活动胁迫下土壤重金属流失研究	6
1.2.3 基于沉积物应用的农业面源污染特征研究	8
1.2.4 沉积物中重金属来源解析研究	8
1.2.5 农田面源重金属流失环境风险、途径以及影响因素	9
1.2.6 重金属和农药复合污染相关研究进展	15
1.2.7 环境因子干扰对重金属和农药复合污染效应影响	19
1.2.8 集约化农业经营对农田面源重金属流失的影响研究	20
1.2.9 冻融过程对农田面源重金属流失的影响研究	23
1.2.10 农田面源重金属流失原位钝化措施研究	25
1.2.11 问题的提出	27
1.3 研究内容和技术路线	28
1.3.1 研究目标和研究内容	28
1.3.2 技术路线	30
第2章 研究区概况	32
2.1 引言	32
2.2 自然环境	32
2.2.1 地理位置	32
2.2.2 气候和水文特征	33
2.2.3 土壤特性	35
2.3 农业活动	36
2.3.1 土地利用变化	36

2.3.2 耕作制度	38
第3章 冻融集约化农区土壤中重金属和农药蓄积特征	39
3.1 引言	39
3.2 材料和方法	40
3.2.1 样品采集和处理	40
3.2.2 重金属和农药总量分析	41
3.2.3 土壤污染风险评价	41
3.2.4 质量控制和数据统计	42
3.3 结果	43
3.3.1 不同开垦方式的土壤中重金属蓄积特征	43
3.3.2 不同开垦方式的土壤中农药蓄积特征	45
3.3.3 集约化农业活动胁迫下土壤中重金属和农药总量之间内部联系	46
3.3.4 土壤污染风险评价	47
3.4 讨论	48
3.4.1 集约化农业活动胁迫下土壤中重金属和农药的内部联系与源解析	48
3.4.2 冻融农区集约化耕作模式对土壤中重金属和农药蓄积特征影响	49
3.4.3 冻融农区集约化耕作下土壤污染环境和健康风险	50
3.4.4 代表性典型污染物选取	50
3.5 小结	51
第4章 不同土地开垦方式下重金属含量与形态变异	53
4.1 引言	53
4.2 材料和方法	53
4.2.1 样品采集	53
4.2.2 样品分析	54
4.2.3 统计分析	55
4.3 结果	55
4.3.1 不同土地利用类型土壤理化性质	55
4.3.2 不同土地利用类型土壤重金属含量与形态组成	56
4.3.3 不同土地开垦方式下土壤重金属含量变异	57
4.3.4 不同土地开垦方式下土壤理化性质与重金属关系	58
4.4 讨论	60
4.4.1 土地利用方式对重金属含量与形态分布的影响	60
4.4.2 农田开垦中影响土壤重金属变异的主要因子	61

4.4.3 长期农业开发下土壤重金属环境和食品安全风险	62
4.5 小结	63
第5章 长期农业活动影响下土壤重金属运移和分布	64
5.1 引言	64
5.2 材料和方法	64
5.2.1 样品采集	64
5.2.2 样品分析	65
5.2.3 统计分析	65
5.3 结果	66
5.3.1 不同景观类型土壤理化性质	66
5.3.2 不同景观类型土壤重金属含量与形态组成	66
5.3.3 不同景观类型土壤重金属环境风险	67
5.3.4 土壤重金属多元统计分析	69
5.4 讨论	70
5.4.1 长期农业活动影响下土壤重金属运移和分布	70
5.4.2 面源重金属污染过程阻控	71
5.4.3 土壤重金属分布控制因素	72
5.5 小结	72
第6章 基于沉积物磷定量关系的流域土壤重金属流失负荷模拟	73
6.1 引言	73
6.2 材料和方法	74
6.2.1 研究框架	74
6.2.2 样品采集和分析	74
6.2.3 SWAT 模拟流域泥沙、磷流失负荷	75
6.2.4 田间尺度土壤颗粒态重金属流失估算	76
6.2.5 统计和空间分析	77
6.3 结果	77
6.3.1 流域不同土地利用类型土壤重金属含量	77
6.3.2 流域出口沉积物中重金属含量垂直分布	78
6.3.3 流域出口沉积物中重金属与总磷含量关系	78
6.3.4 流域颗粒态重金属流失负荷长期估算	79
6.3.5 流域颗粒态重金属流失关键源区识别	80
6.4 讨论	81

6.4.1 流域沉积物重金属累积变化	81
6.4.2 土地利用方式转换对流域面源重金属流失负荷的影响	82
6.4.3 流域面源重金属污染模拟的不确定性	83
6.5 小结	84
第7章 基于沉积物应用的流域面源重金属流失历史反演	85
7.1 引言	85
7.2 材料和方法	85
7.2.1 样品采集与处理	85
7.2.2 ^{210}Pb 活度分析	86
7.2.3 沉积速率测定	86
7.2.4 重金属含量分析	87
7.3 结果	87
7.3.1 流域沉积年代序列建立	87
7.3.2 流域沉积物重金属含量历史变化	89
7.3.3 流域重金属沉积通量历史变化	90
7.3.4 流域沉积年代序列验证	91
7.4 讨论	94
7.4.1 挠力河流域土壤侵蚀动态变化	94
7.4.2 挠力河流域面源重金属流失历史	95
7.5 小结	96
第8章 冻融集约化农区农田土壤中面源镉流失特征	97
8.1 引言	97
8.2 材料和方法	98
8.2.1 样品采集	98
8.2.2 样品分析	99
8.2.3 统计分析	100
8.3 结果	100
8.3.1 冻融集约化农区土壤中镉空间分布特征	100
8.3.2 冻融集约化农区农田土壤面源镉流失特征	102
8.3.3 冻融集约化农区流域面源镉流失历史反演	102
8.4 讨论	103
8.4.1 长期集约化耕作和冻融过程对土壤中镉空间分布影响	103
8.4.2 长期集约化耕作对农田土壤镉流失的影响	104

8.4.3 长期集约化耕作对水体环境污染风险影响	105
8.5 小结	106
第 9 章 冻融作用下农药施用对土壤中镉等温吸附-解吸特性影响	107
9.1 引言	107
9.2 材料和方法	108
9.2.1 样品的采集和理化性质分析	108
9.2.2 试验设计	110
9.2.3 质量控制和上清滤液中镉含量分析	110
9.2.4 统计分析方法	110
9.3 结果	112
9.3.1 冻融作用下农药施用对土壤等温吸附镉特征影响	112
9.3.2 冻融作用下农药施用对土壤镉解吸特征影响	117
9.4 讨论	120
9.4.1 冻融作用下农药施用对土壤中镉的等温吸附-解吸特性影响	120
9.4.2 冻融作用下农药对农业面源镉流失的影响	121
9.5 小结	122
第 10 章 冻融作用下农药施用对土壤中镉释放和形态转化特征影响	124
10.1 引言	124
10.2 材料和方法	125
10.2.1 样品采集和理化性质分析	125
10.2.2 土壤老化试验	126
10.2.3 冻融作用下农药处理试验	126
10.2.4 冻融作用下农药施用后土壤中镉提取试验	126
10.2.5 冻融作用下农药施用后土壤中镉形态测定	127
10.2.6 冻融作用下农药施用后土壤理化性质分析	127
10.2.7 镉含量分析、质量控制和统计分析	127
10.3 结果	130
10.3.1 冻融作用下农药施用对土壤中镉释放特征影响	130
10.3.2 冻融作用下农药施用对土壤中镉形态变化影响	133
10.3.3 冻融作用下农药施用后土壤理化性质变化特征	134
10.3.4 土壤中镉释放量影响因子分析	136
10.4 讨论	137
10.4.1 冻融作用下农药施用对土壤中镉释放特征的影响	137

10.4.2	冻融作用下农药施用对土壤中镉的再补给能力和释放动力学过程影响	138
10.4.3	冻融作用下农药施用对农田面源镉流失的影响	139
10.5	小结	140
第 11 章	冻融作用下农药施用对不同水分含量土壤中镉流失的潜在贡献	142
11.1	引言	142
11.2	材料和方法	143
11.2.1	样品采集	143
11.2.2	土壤老化试验	143
11.2.3	冻融作用下水分和农药处理试验	144
11.2.4	土壤中镉形态提取和活性计算	144
11.2.5	数据统计	144
11.3	结果	145
11.3.1	土壤中镉形态分布和镉活性对各处理响应	145
11.3.2	土壤中各形态镉和镉活性不同处理组内差异	146
11.3.3	土壤中各形态镉和镉活性不同处理组间差异	147
11.3.4	冻融作用下农药施用对不同含水量的土壤中镉流失的潜在贡献率	150
11.4	讨论	151
11.4.1	冻融作用下农药施用对不同含水量土壤中镉形态和活性的主效应及交互效应	151
11.4.2	冻融作用下农药施用对不同含水量土壤中镉形态和活性的影响机制	152
11.4.3	冻融集约化农区面源镉流失防控的意义	153
11.5	小结	154
第 12 章	集约化农区农田土壤中镉原位稳定技术	156
12.1	引言	156
12.2	材料和方法	157
12.2.1	试验区土壤基本理化性质	157
12.2.2	钝化材料收集	158
12.2.3	试验设计	158
12.2.4	植物和土壤中镉含量分析	159
12.2.5	质量控制和统计方法	160

12.3 结果	160
12.3.1 土壤 pH 和镉的植物有效性对钝化剂响应	160
12.3.2 钝化剂对土壤中镉的释放特征影响	162
12.3.3 土壤中镉生物有效性和渗出特性变化	163
12.3.4 土壤中镉的形态变化	164
12.3.5 土壤中各参数相关性分析	165
12.4 讨论	167
12.4.1 钝化剂对土壤 pH 和镉的植物有效性影响	167
12.4.2 钝化剂对土壤中镉释放特征影响	168
12.4.3 钝化剂对土壤中镉生物有效性和渗出特性影响	168
12.4.4 钝化剂对农田面源镉流失影响	169
12.5 小结	170
第 13 章 基于生物碳土壤改良应用的流域重金属污染防控建议	172
13.1 引言	172
13.2 材料和方法	173
13.2.1 样品和仪器	173
13.2.2 土壤培养	174
13.2.3 生物碳土壤改良	174
13.2.4 实验方法	176
13.3 结果	177
13.3.1 污染负荷与降雨强度对镉运移的影响	177
13.3.2 镉累积淋溶污染负荷	179
13.3.3 不同污染负荷下土壤中镉的垂向运移	180
13.3.4 生物碳改良土壤对镉的去除率	181
13.3.5 不同生物碳添加水平对镉运移的影响	182
13.4 讨论	183
13.4.1 农田面源重金属镉流失风险	183
13.4.2 生物碳对农田面源镉流失的影响	184
13.4.3 应用生物碳土壤改良方法控制流域农业面源污染物	184
13.5 小结	185
第 14 章 基于沉积物应用的流域重金属来源解析及污染防控建议	187
14.1 引言	187
14.2 材料和方法	187

14.2.1	样品采集	187
14.2.2	元素含量分析	188
14.2.3	Pb 稳定同位素分析	189
14.2.4	人为贡献率计算	189
14.2.5	统计分析	190
14.3	结果	190
14.3.1	流域沉积物和背景土壤中重金属含量	190
14.3.2	流域沉积物重金属富集因子	191
14.3.3	流域沉积物和背景土壤中 Pb 稳定同位素组成	192
14.3.4	流域沉积物重金属主成分分析	193
14.4	讨论	195
14.4.1	挠力河流域重金属人为贡献率	195
14.4.2	挠力河流域重金属人为来源	195
14.4.3	三江平原农区重金属污染防控对策	196
14.5	小结	198
第 15 章	结论与展望	200
15.1	主要结论	200
15.2	研究特色与创新点	203
15.3	研究展望	204
	参考文献	206

第 1 章 绪 论

1.1 研究背景及意义

1.1.1 研究背景

自 20 世纪 80 年代初期,我国农业呈现高度地聚集于一定土地范围的发展趋势,集约化农业在我国迅速发展 (Guo et al., 2010)。集约化农业是现代农业的重要特征,多通过大型农业器械密集劳动、大量使用化肥农药等方式增加农作物产量,以满足人们日益增长的粮食需求 (Lou et al., 2015)。在长期的集约化农业发展过程中,土地利用类型的改变、频繁地翻耕土壤、灌溉、农业化学品的大量施用等措施不仅能够显著改变重金属的地球化学位置和赋存状态 (Chrastný et al., 2012),而且能够通过影响土壤的物理化学和生物学性质来间接影响重金属含量 (Qishlaqi et al., 2009)。土壤中积累的污染物不但可以通过作物吸收富集导致食品安全问题 (Zhou et al., 2015),而且可以通过土壤侵蚀、地表径流等方式对作物和水域造成严重污染 (McDowell et al., 2010),进而危害生态环境和生物体健康 (Yap et al., 2015)。早在 2008 年,就有报道指出由集约化农业活动引起的面源重金属流失加重了人类活动对流域环境的影响 (Zhang and Shan, 2008)。因此,集约化农业活动被认为是引起环境中面源重金属污染的主要因素之一 (Tang et al., 2010)。由长期的集约化农业活动引起的重金属污染问题也成了近年来环境领域的研究焦点 (Chrastný et al., 2012)。

农业面源污染最直接的危害对象是当地水环境,它主要包括以氮、磷为代表的营养盐污染和重金属等有毒物质污染两个方面。在过去几十年中,国内外相关学者通过应用各种水质模型深入探讨了人类农业开发活动与流域面源氮、磷污染间的响应关系,这极大改善了水体富营养化控制 (Kemanian et al., 2011)。相比其他欧美发达国家,我国化肥使用量高居世界第一位,但利用率却仍处于一个较低的水平,土壤氮磷流失引起的水体富营养化依旧是我国水环境面临的主要问题。因此,目前我国已开展的农业面源污染研究也大多集中在氮、磷等营养物质,而对于有着巨大生态安全和人体健康威胁的有毒重金属关注却不多。

近年来,我国许多地区都相继发生了群体性重金属中毒事件,造成了巨大社会影响。为了解决一批危害人民健康的突出问题,基本遏制住突发性重金属

污染事件高发态势,国务院于2011年批复实施了我国首个针对重金属污染综合防治的五年规划,体现了政府对于重金属污染问题的高度重视以及加强污染防治的决心。在农业生产过程中,污水浇灌、农药化肥等的过量施用均是土壤重金属的重要输入途径,其含量状况直接关系到农产品质量安全(曾希柏等,2010)。“看不见”的重金属污染已成为我国农产品的“隐形杀手”。根据农业部对全国24个省市的调查显示,重金属超标农产品已经占到所有超标农产品总面积的80%以上。为此,国家环保部早在2006年便投入10亿元资金启动了全国土壤污染状况普查工作。相关学者也通过选择典型区域,广泛开展了农田土壤重金属累积与风险评价研究(姜菲菲等,2011)。不过,针对长期农业活动影响下由土壤侵蚀引起的重金属流失问题却鲜有报道。事实上,由于缺乏合适的技术手段,尤其是能够在流域尺度上模拟土壤重金属流失的水质模型,这导致目前该方面的研究相对滞后,总体仍处于一个方法探索阶段。

同时,在农业生产活动中,长时间的施肥、喷农药等农业措施均可能导致重金属元素,如Hg、As、Cu、Zn、Cd等和农药在土壤中的积累(Nasar et al., 2014)。由农业生活引起的重金属和农药的复合污染问题也不可忽略。在大多数污染地区,重金属和以农药为主的有机污染物在环境中最为常见,而且经常同时存在于土壤环境中(Wang et al., 2007a; b)。当重金属和农药共同存在于环境中时,二者的环境行为过程极其复杂,且还可以通过交互作用产生复合污染效应。在已有的研究成果中,二者之间的复合效应主要表现为协同和拮抗两种现象。例如,在镉-乐果二阶复合体系中,镉对弹尾目昆虫 *Folsomia candida* 毒性效应增强,表现为协同作用(Amorim et al., 2012);而在镍-毒死蜱二阶复合体系中,毒死蜱的存在使镍的毒性效应降低,表现为拮抗作用(Broerse and van Gestel, 2010)。在铜-多菌灵二阶复合体系中,镉对新杆状线虫 *Caenorhabditis elegans* 繁殖的影响在低浓度多菌灵的水平条件下增强,而在高浓度多菌灵的水平条件下减弱(Jonker et al., 2004)。此外,由于农药的存在,土壤中重金属通过配位反应有机化使吸附量改变。例如,当阿特拉津或杀菌剂中的邻苯二胺存在时,土壤中的铜生成有机配合体,从而通过改变土壤-水界面上的分配系数,使红壤对铜的吸附量增加(王慎强等,2003; 张凤杰等,2014)。由以上研究可见,农田土壤中重金属的赋存状态和生态意义受土地利用类型和农药含量水平的影响。因此,当土地利用类型固定时,研究农药对重金属的地球化学行为影响对研究面源重金属流失问题具有重要意义。

迄今为止,已报道的重金属-农药复合效应的研究多数是在实验室内完成的,试验条件稳定可控(Laskowski et al., 2010)。但是,田间实际环境比实验室内环境要复杂得多,往往存在巨大的时空变异性。相较于室内的固定环境因子,实际

环境中不断波动的环境因子往往使化学物质之间的复合效应更为复杂多变,且表现出明显的随机性(Holmstrup et al., 2010)。但是,聚焦于环境因子和复合污染物综合作用的相关研究的极为有限。温度是一种常见且重要的环境因子,对土壤中的微生物和生活活性发挥着不可或缺的作用(Asadishad et al., 2013)。冻融过程是一种从低温到高温逐渐循环变化的过程,在中高纬度带相当常见(Hao et al., 2013)。冻融过程能够增加土壤侵蚀量和地表径流量(Xia et al., 2015a),从而携带大量颗粒态重金属进入水体环境中(Quinton and Catt, 2007)。同时,冻融过程能够显著影响土壤粒径分布(王恩娟等, 2014)、土壤铁锰氧化物和溶解性有机质含量、土壤 pH (Campbell et al., 2014)、土壤水热传导、溶质运移和水分入渗特性(Hansson et al., 2004)等物理化学性质和生物学性质(Asadishad et al., 2013),从而影响重金属在土壤中的存在形态、迁移能力以及生物有效性(Beesley et al., 2014),对面源重金属流失具有重要作用。并且有报道称在全球气候变暖的重要时期,气候变化的加剧会增加冻融循环过程发生的频率和区域范围(De Kock et al., 2015)。那么冻融循环过程会对农药作用下的重金属环境行为产生什么影响?又会对面源重金属流失产生什么影响?

1.1.2 研究意义

随着人们对粮食的需求日益增长,为了追求农作物高产量,目前,集约化农区多通过大量施用化肥、农药等农用化学品,造成土壤中重金属和农药的复合污染问题(Bereswill et al., 2012)。随着现代科学技术的进步,国内外已有较多报道研究了农田土壤中重金属和农药复合污染问题,并且对于二者在环境介质中的分布(Harris et al., 2011)、来源(Qu et al., 2015)、长距离运输(Bereswill et al., 2012)和生物毒性(Wang et al., 2015d),方面取得了良好研究成果,这些研究成果为帮助人们认识重金属和农药的复合污染问题提供了很好的科学基础。但是,已报道的重金属-农药复合效应的研究多数是在实验室内完成的(Laskowski et al., 2010)。实际农田环境十分复杂,实际环境中不断波动的环境因子往往使化学物质之间的复合效应更为复杂多变,且表现出明显的随机性(Holmstrup et al., 2010),不仅使研究者更难以正确认识土壤污染的机制和污染物迁移转化规律,也为污染控制技术的研发和农业可持续管理带来了极大困难。鉴于此,在研究农药对面源重金属流失问题的时候,同时考虑主要环境因子的影响具有重要的科学意义。与农业生态系统中最为常见的其他重金属元素相比,镉是一种植物非必需元素且具有毒性高、移动性强等突出特点(Zhao et al., 2014)。镉因而更易通过食物链严重影响人类健康(Galunin et al., 2014)。在东亚地区,人们以水稻为主的消费习惯,镉在人类健康方面的不利影响更使其臭名昭著(Zhao et al., 2014)。随着人

类活动使农田环境中镉含量日益增多,环境安全问题面临着巨大压力(Luo et al., 2011)。

三江平原是我国独特的集约化种植区域,不但有 50 余年的集中开垦历史,是我国核心粮食生产基地,而且常年处于经历季节性冻融循环过程(Hao et al., 2013)。因此,基于土壤、沉积物化学分析和 Pb 同位素技术,开展三江平原典型流域面源重金属流失特征研究,研究农业面源镉流失机理及其控制措施,保护冻融农区的水环境有重要意义;研究冻融过程和农药对镉流失行为变化的贡献,能够补充冻融农区环境和人为复合因子对污染物迁移的潜在性作用,对于揭示冻融农区面源镉流失的影响具有重要的科学意义。同时,对建立冻融集约化农区环境污染控制具有实际参考价值。

1.2 研究现状

1.2.1 农田土壤重金属污染评价研究

农业面源污染(agricultural diffuse pollution),又叫农业非点源污染(agricultural non-point pollution),是指溶解性或固体污染物在降水、灌溉和径流冲刷作用下,大面积汇入受纳水体而引起的水体污染,其主要来源包括水土流失、农业化学品、城市污水、畜禽养殖和农业与农村废弃物等(郝芳华和程红光, 2006)。从土壤学领域来讲,土壤中的农业化学品(主要包括农药、化肥、重金属等)是农业面源污染物的主要来源。因此,农业面源污染物的产生和迁移转化过程实质上是土壤中的污染物流失扩散到其他环境介质特别是水体环境的过程。农业面源污染机理主要包括其在土壤中的行为和其在环境因子作用下从土壤向水体环境扩散的过程两个方面。在农业生产活动中,长期施用化肥和农药等农业措施均可能导致重金属元素(如 Hg、As、Cu、Zn、Cd 等)在土壤中的积累(Lebrun et al., 2012)。积累在土壤中的重金属可以通过土壤侵蚀、地表径流等方式对水域造成严重污染(He et al., 2004; McDowell, 2010),进而危害生态环境和生物体健康(Fu et al., 2008; Yap et al., 2015)。农业面源重金属流失则是指农田土壤中的重金属在降雨、灌溉和径流冲刷作用下,扩散到其他环境中的过程。早在 2008 年,就有报道指出由集约化农业活动引起的面源重金属流失加重了人类活动对流域环境的影响(Zhang and Shan, 2008)。集约化农业活动被认为是引起环境中面源重金属流失的主要因素之一(Tang et al., 2010)。因此,在集约化农区开展面源重金属流失问题对研究农业面源污染具有十分重要的现实意义。

目前,国内有关农业面源污染的研究主要集中在太湖、巢湖、滇池等重点水