

基于 PMF 模型的湖北随县三里岗地区土壤重金属源解析

董健彪¹, 谢淑云¹, 田 欢², 杨文兵³, 李 华⁴, 周徐维¹,
Diego Armando Pinzon Nunez¹

(1. 中国地质大学(武汉)地球科学学院, 湖北 武汉 430074;

2. 中国地质大学(武汉)材料与化学学院, 湖北 武汉 430074;

3. 湖北省地质局第八地质大队, 湖北 襄阳 441002;

4. 青海省地质调查局, 青海 西宁 810000)

[摘 要]随着工矿业、农业的发展,许多国家和地区都已发现重金属污染问题,掌握土壤重金属的来源情况对于维护生态安全十分必要。本文对三里岗镇八种重金属元素进行了含量分析和半变异函数分析,并通过正定矩阵因子分解法结合源贡献率空间分布特征探究了土壤中 8 种重金属元素的来源。结果表明:As、Cd、Cr、Cu、Ni 和 Zn 的土壤含量均超出全国背景值,内梅罗综合污染指数均值为 0.73,说明研究区整体处于尚清洁水平。半变异函数分析显示 8 种重金属元素更多受到结构性因素的影响。PMF 源解析所得到的 4 个来源分别解释为震旦系和白垩系地层母岩的影响、元古界地层与乡村道路交通排放的混合源、震旦系和寒武系地层母岩的影响以及奥陶系到志留系地层母岩的影响,说明自然源是研究区重金属的主要来源。此外,本文研究结果表明 PMF 模型在重金属源解析工作中可以发挥十分重要的作用。

[关键词]湖北随县;土壤重金属;半变异函数;正定矩阵因子分解法;源解析

[中图分类号]X53 [文献标识码]A [文章编号]1000-5943(2022)04-404-10

1 引言

近年来,大量重金属元素通过采矿、工业废料排放、农药、化肥等途径进入土壤系统,同时由于其在环境中的持久性、生物累积性、难降解性及其与有益元素结合造成新的风险等特点,受到人们的广泛关注(杨希等,2021;Zhang et al.,2021)。2014 年《全国土壤污染状况调查公报》显示,我国土壤重金属污染情况研究也受到广泛关注,点位超标率达到了 16.1%,其中 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb、Zn 八种重金属是最主要的无机污染物。

土壤重金属源解析工作是污染评价及治理工

作的前提,具有重要的现实意义(Hu et al.,2018)。学界流行的源解析方法很多,如主成分分析法(PCA)、正定矩阵因子分解法(Positive Matrix Factorization)等(董騄睿等,2015)。PMF 模型是美国环保署推荐的源解析方法,起初多用于研究大气以及水污染,该方法在识别污染源贡献比例上表现良好,且在与 GIS 技术结合时可以更有效地识别污染源(Dong et al.,2019;Guan et al.,2018;Liang et al.,2017),因此近年来越来越多的学者利用 PMF 模型识别土壤重金属污染来源(Hu et al.,2018)。

三里岗镇地处湖北省随州市,是湖北省香菇主产区之一,香菇产品远销海外,近年出口香菇中出现重金属超标产品,对于研究区农产品销量造

[收稿日期]2022-07-01 [修回日期]2022-09-13

[作者简介]董健彪(1998—),男,在读硕士,主要从事农业地球化学研究工作。E-mail:15849571958@163.com。

[通讯作者]谢淑云(1976—),女,教授,博士,主要从事应用地球化学与数学地球科学相关研究工作。E-mail:tinaxie@cug.edu.cn。

成一定影响(杨定国等,2014),因此有必要对研究区展开土壤地球化学调查,探讨土壤中重金属元素的含量。本文运用 PMF 模型结合 GIS 方法,以三里岗镇为研究区,对土壤样品中的 As、Cd、Cr、Cu、Ni、Pb、Zn 和 Hg 元素的含量和来源进行评价和解析,并结合 GIS 方法分析不同污染源的源贡献率分布情况,以为土壤重金属污染的治理和管控提供理论依据和技术支持。

2 材料与方法

2.1 区域地质概况

研究区三里岗镇地处随州南部,属于扬子北缘大洪山地区,构造位置位于扬子准地台京山台

褶束,区内分布襄樊-广济大断裂构造带,区内出露地层主要有元古界、震旦系、寒武系、奥陶系、志留系以及白垩系地层。元古界(Pt)地层在北部与南部均有分布,北部岩性为一套黄绿色变基性火山岩、火山熔岩与泥砂质岩建造,南部地层主要由基性斜长石、方解石、玻璃质、磁铁矿等矿物等组成。震旦系(Z)地层主要出露于研究区北部,由一套泥质岩及硅质碳酸盐岩、碳酸盐岩、磷酸盐岩等组成。寒武系(C)地层由浅海相碳酸盐及泥质岩沉积构成。区域东部出露的奥陶系-志留系(O-S)地层为兰家畈组、雷公尖组并层,主要岩性为浅海相细碎屑岩和泥质岩组合。区域白垩系(K)地层岩性为一套由不等粒砾岩、砂砾岩、含砾砂岩、粉砂岩、泥岩构成的韵律层。图 1 为研究区区域地质图(陈婕等,2018)。

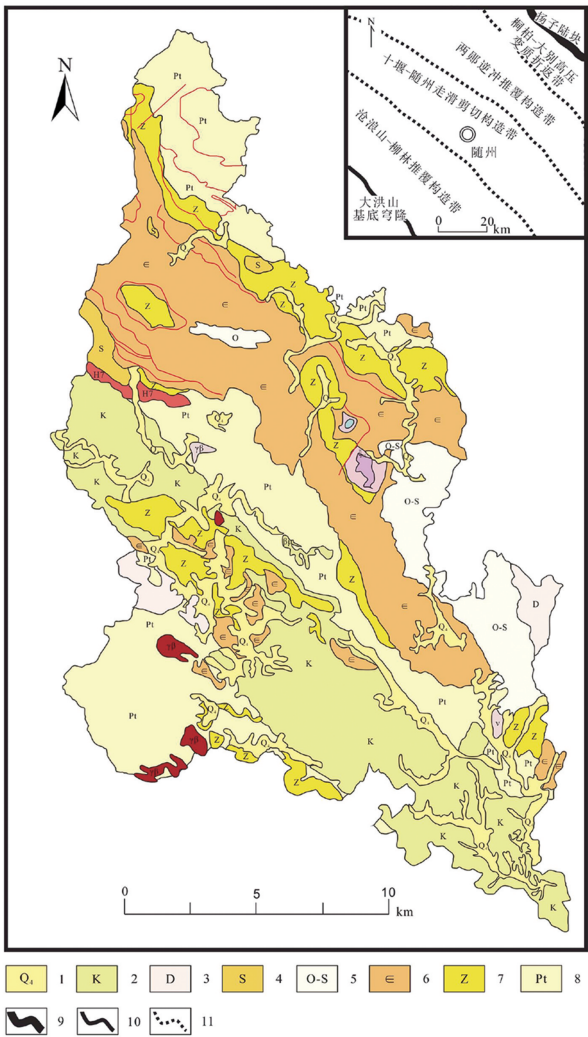


图 1 三里岗镇地质图(改编自陈婕等(2018))

Fig. 1 Geological map of Sanligang town(modified after Chen Jie et al. 2018)

1—第四纪;2—白垩纪;3—泥盆纪;4—志留纪;5—奥陶纪-志留纪;6—寒武纪;7—震旦纪;8—元古代;9——一级构造单元界限;10—二级构造单元界限;11—三级构造单元界限

2.2 数据来源与处理

本文数据来源于湖北省“金土地”工程-高标准基本农田地球化学调查(项目编号 HBJTD20140108),该项目由湖北省地质局第八地质大队主持完成,完成了对随县三里岗镇的 1:50000 表层土壤样测量,平均采样密度为 5.19 个点/km²。共采集表层土壤 1696 件,其中重复样 34 件。

本文使用 Excel 2019 和 SPSS 21 进行数据整理、计算和分析,利用 GS+(Version7) 进行半变异函数分析,通过 EPA PMF 5.0 进行重金属源解析,利用 ArcGIS 10.2 进行空间分析和图件制作。

2.3 污染评价方法

本文利用单因子指数法和内梅罗指数法对研究区重金属污染情况进行评价(杨涛毅等,2011; Meng et al., 2011)。单因子指数法是将土壤中某污染元素的含量值 C_i 除以评价标准值 S_i , 根据结果 P_i 对土壤中单一污染元素进行污染评价。公式如下:

$$P_i = C_i / S_i \quad (1)$$

内梅罗综合污染指数法利用多种元素的单因子污染指数的平均值(P_{avg})以及最大值(P_{imax})进行计算,兼顾了多元素的综合特征以及单一因素的极端影响。公式如下:

$$P_{综} = \sqrt{\frac{(P_{imax}^2 + P_{avg}^2)}{2}} \quad (2)$$

2.4 半变异函数

半变异函数是地质统计学中用来描述区域化变量性质的一种常用方法,通过半变异函数,可以对区域化变量的随机性特征以及结构性特征进行分析,得到研究变量的空间分布规律(耿治鹏等, 2022)。半变异函数公式为

$$\gamma(h) = \frac{1}{2N(h)} \sum_{i=1}^{N(h)} [Z(x_i) - Z(x_i+h)]^2 \quad (3)$$

式中, $\gamma(h)$ 为半变异函数值, $N(h)$ 表示距离向量为 h 时的采样点数目, h 表示空间距离, $Z(x)$ 为区域化变量,一般表示为

$$Z(x) = (x_w, x_v, x_w) \quad (4)$$

2.5 PMF 模型

PMF 全称正定因子矩阵分解法(Positive Matrix Factorization),是由 Paatero et al. (1994) 基

于因子分析原理所提出的一种分析模型,利用样品的浓度和不确定度,通过最小二乘法计算因子数(徐源,2021)。

PMF 模型将重金属元素含量视作 $i \times j$ 阶的矩阵,将该矩阵拆分为三个因子矩阵,分别是因子贡献矩阵 $G(i \times k)$,因子成分矩阵 $F(k \times j)$ 以及残差矩阵 $E(i \times j)$,公式表示为

$$X_{ij} = \sum_{k=1}^p G_{ik} F_{jk} + E_{ij} \quad (5)$$

其中 X_{ij} 为原始矩阵第 i 个样品第 j 个化学元素, G_{ik} 为第 k 个因子对于第 i 个样品的因子贡献度, F_{jk} 是第 k 个因子对第 j 个元素的贡献浓度, p 则表示因子数(薛建龙,2014)。

PMF 模型定义了一个目标函数 Q :

$$Q = \sum_{c=1}^a \sum_{d=1}^b \left(\frac{z_{cd} - \sum_{k=1}^p g_{ck} f_{dk}}{u_{cd}} \right)^2 \sum_{c=1}^a \sum_{d=1}^b \left(\frac{e_{cd}}{u_{cd}} \right)^2 \quad (6)$$

式中, c 表示样品序数, d 表示元素序数, k 表示因子的序数,因此 z_{cd} 表示第 c 个样品第 d 个元素的含量值, g_{ck} 表示第 k 个因子对第 c 个样品的贡献度, f_{dk} 表示第 k 个因子对第 d 个元素的贡献浓度, u_{cd} 表示第 c 个样品第 d 个元素的不确定度, e_{cd} 为残差。

不确定度计算公式为

$$u = 0.1 \times \text{concentration} + \frac{MDL}{3} \quad (7)$$

当元素浓度小于或等于检出限(MDL)时,的不确定度计算公式为

$$u = \frac{5}{6} MDL \quad (8)$$

3 结果与讨论

3.1 土壤重金属元素参数特征

根据平均值加减 3 倍标准偏差对数据进行预处理,共剔除 118 组异常值,保留 1544 组数据,随县土壤重金属元素及 pH 值描述性统计结果见表 1。结果显示 8 种重金属元素除 Hg、Pb 外全部高于全国背景值,表明研究区重金属元素比较富集。变异系数大于 100% 的属强变异性,变异系数小于 10% 的属弱变异性,变异系数处于 10%~100% 的属中等变异性(鲍大忠等,2020),表 1 中 8 种元素的变异系数普遍比较高,8 种重金属元素变异系数均大于 10%~100%,表现出中等程度变异性(孙海等,2020)。

表 1 随县土壤重金属元素描述性统计表^①

Table 1 Descriptive statistical table of heavy metal elements in soil of Sui county

统计量	均值	标准差	变异系数	极小值	极大值	全国背景值
As	11. 52	8. 82	76. 56	1. 30	54. 50	11. 20
Cd	0. 322	0. 208	64. 52	0. 047	1. 962	0. 097
Cr	93. 79	42. 95	45. 79	0. 50	354. 50	61. 00
Cu	36. 03	14. 37	39. 88	4. 10	98. 00	22. 60
Ni	42. 64	18. 26	42. 81	0. 40	151. 20	26. 90
Pb	24. 42	5. 95	24. 35	6. 40	54. 90	26. 00
Zn	103. 20	33. 26	32. 23	20. 90	290. 40	74. 20
Hg	0. 065	0. 027	41. 96	0. 017	0. 223	0. 065
pH	6. 58	0. 91	13. 83	4. 38	8. 41	6. 7

注:①元素背景值来自魏复盛等(1991)及吴云霞等(2019);8种重金属单位为mg/kg,pH值无量纲;变异系数单位为%。

依据 GB15618-2018《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》(以下简称《标准》)中的风险筛选值为评价标准值对研究区水田和其他用地样品分别统计分析,结果见表 2。表 2 显示,两类用地中,Cd 元素污染样品最多,水田中超标样品数为 32,占比为 5. 6%,其他用地中超标样品数为 379,占比为 38. 9%,其次是 As 元素,在两类用地中超标样品数均超过了 5%,而 Cr、Ni、Zn 元素超标样品数均在 2%左右,Cu、Pb、Hg 元素无超标样品。整体来看,研究区 Cd 元素超标率远远超过《全国污染调查公报》中的全国点位平均超标率 7%,存在一定的风险(吕悦风等,2019)。

基于单因子指数法与内梅罗指数法对研究区水田与其他用地土壤中重金属进行评价,评价标准值表 2 已给出,评价结果见表 3,污染评价标准见表 4(邓通德等,2022)。从表 3 中可以看出研究区 8 种重金属元素的单因子指数均值皆小于 1,研究区 8 种重金属在全区的平均污染程度不高,除 Cu、Pb、Hg 外其余元素均有污染样品,但只有 Cd 元素污染样品数超过了 20%,形成一定规模。综合污染指数 $P_{综}$ 均值为 0. 73,根据表 4 中评价标准,研究区整体污染程度处于尚清洁等级,有 253 件 $P_{综}>1$ 的污染样品,占比达到 16. 39%,说明研究区污染情况值得重视。

表 2 重金属超标样品数目统计^②

Table 2 Statistics of the number of heavy metal samples exceeding the standard

统计量	水田(pH=6. 61)			其他用地(pH=6. 56)		
	评价标准值	均值	超标样品数 n=569	评价标准值	均值	超标样品数 n=975
As	25	10. 31	31(5. 4%)	30	12. 22	64(6. 6%)
Cd	0. 6	0. 318	32(5. 6%)	0. 3	0. 324	379(38. 9%)
Cr	300	98. 87	6(1. 1%)	200	90. 83	25(2. 6%)
Cu	200	37. 20	0	200	35. 35	0
Ni	100	43. 41	13(2. 3%)	100	42. 20	18(1. 8%)
Pb	140	24. 35	0	120	24. 46	0
Zn	250	102. 74	2(0. 4%)	250	103. 48	6(0. 6%)
Hg	0. 6	0. 072	0	2. 4	0. 060	0

注:②元素含量单位为 mg/kg,样品数单位为件。

表 3 重金属污染指数描述统计量^③

Table 3 Descriptive statistics of heavy metal pollution index

统计量	极小值	极大值	均值	标准差	变异系数(%)	污染样品
$P_{(As)}$	0. 04	2. 13	0. 41	0. 31	75. 97	95
$P_{(Cd)}$	0. 12	6. 54	0. 88	0. 68	77. 50	411
$P_{(Cr)}$	0	1. 76	0. 41	0. 19	47. 23	31
$P_{(Cu)}$	0. 02	0. 49	0. 18	0. 07	39. 87	0

续表						
统计量	极小值	极大值	均值	标准差	变异系数(%)	污染样品
$P_{(Ni)}$	0	1.51	0.43	0.18	42.82	31
$P_{(Pb)}$	0.05	0.46	0.19	0.05	25.72	0
$P_{(Zn)}$	0.08	1.16	0.41	0.13	32.23	8
$P_{(Hg)}$	0.01	0.37	0.06	0.05	89.02	0
$P_{综}$	0.19	4.71	0.73	0.48	65.06	253

注:③污染指数无量纲,样品数单位为件。

表 4 污染评价标准

Table 4 Standards for pollution assessment

单项污染指数	污染等级	综合污染指数	污染水平
$P_i \leq 1$	清洁	$P_{综} \leq 0.7$	安全(清洁)
$1 < P_i \leq 2$	轻微污染	$0.7 < P_{综} \leq 1.0$	尚清洁
$2 < P_i \leq 3$	轻度污染	$1.0 < P_{综} \leq 2.0$	轻度污染
$3 < P_i \leq 5$	中度污染	$2.0 < P_{综} \leq 3.0$	中度污染
$P_i > 3$	重度污染	$P_{综} > 3.0$	重度污染

3.2 土壤半变异函数分析

利用 GS+软件对数据进行半变异函数分析,并根据决定系数 R^2 越趋于 1、残差平方和 RSS 越趋于 0 则模型拟合度越好的原则选取合适的模型,半变异函数分析要求数据符合正态分布或近

正态分布(吴敏等,2016;蔡大为等,2020),而 8 种元素原数据都不符合正态分布特征,进行半变异函数分析前对数据进行转换,转换前后的偏峰系数对比见表 5。半变异函数分析结果见表 6,8 种元素的决定系数 R^2 均大于 0.7,残差平方和都比较小,说明模型拟合较好。

表 5 偏峰系数检验

Table 5 Test of skewness coefficient and kurtosis coefficient

元素	原数据		数据变换	变换后数据	
	偏度	峰度		偏度	峰度
As	2.29	6.00	对数	0.46	0.03
Cd	3.25	15.61	对数	0.53	1.37
Cr	2.80	10.90	平方根	1.43	5.49
Cu	1.41	2.85	对数	-0.23	1.61
Ni	1.74	5.36	平方根	0.59	2.41
Pb	1.11	3.74	平方根	0.35	2.46
Zn	1.46	3.99	对数	0.08	1.20
Hg	1.79	5.50	对数	0.18	0.51

表 6 半变异函数分析

Table 6 Semi-variogram analysis

元素	拟合模型	数据变换	块金值 (C0)	基台值 (C+C0)	块金效应 [C0/(C0+C)]	变程(m)	R^2	RSS
As	球状模型	对数	0.13	0.41	0.31	5 680	0.90	6.95E-03
Cd	指数模型	对数	0.02	0.24	0.10	1 740	0.71	1.11E-03
Cr	指数模型	平方根	1.08	3.98	0.27	8 730	0.99	7.95E-02
Cu	球状模型	对数	0.05	0.15	0.33	5 410	0.95	3.54E-04
Ni	球状模型	平方根	0.68	1.78	0.38	5 640	0.96	4.15E-02
Pb	指数模型	平方根	0.17	0.36	0.47	6 480	0.86	3.24E-03
Zn	指数模型	对数	0.01	0.09	0.13	5 310	0.92	2.43E-04
Hg	指数模型	对数	0.02	0.15	0.12	1 290	0.81	8.10E-05

从表 6 可以看出,8 种重金属元素半变异函数的最佳拟合模型均为球状模型或指数模型。研究表明,当块金效应 $\leq 25\%$ 时,元素主要受结构性因素影响(土壤、气候等),块金效应 $\geq 75\%$ 时,元素主要受测量误差或人为活动等随机性因素影响,块金效应介于两者之间时,表明受两种因素共同影响(Yang et al., 2009)。研究区 8 种重金属元素中,Cd、Zn、Hg 元素的块金效应不到 25%,仅为 0.10、0.13 和 0.12,表明 Cd、Zn 和 Hg 更多受到土壤、气候等自然因素影响;As、Cr、Cu 的块金效应稍高,均大于 25%,但都在 30%左右浮动,依次为 0.31、0.27、0.33,Ni、Pb 两种元素的块金效应最高,但也为位于 25%~75%之间,分别为 0.38 和 0.47,这表明这 5 种元素受到自然因素和人为因

素的共同影响,而 As、Cr、Cu 受到的自然影响相对更多,Ni、Pb 受到人为活动的影响相对更多。整体来讲,8 种重金属元素的块金效应都不高,受到自然因素的影响更多。

3.3 土壤重金属 PMF 源解析

利用 EPA PMF 5.0 对 8 种重金属元素进行 PMF 源解析,根据 Q_{rob}/Q_{exp} 比值快速下降处因子数最佳(李娇等,2019)将因子数确定为 4。表 7 列出了 4 个因子对 8 种元素的源成分谱和源贡献率。图 2 是各因子对各元素的源贡献率,利用 ArcGIS 对 PMF 源贡献率进行克里格插值,绘制出 4 个因子的源贡献率分布图(图 3)。

表 7 PMF 源解析出的各源成分谱及其贡献率

元素	源成分谱 (mg/kg)				源贡献率 (%)			
	因子 1	因子 2	因子 3	因子 4	因子 1	因子 2	因子 3	因子 4
As	8.16	2.16	1.05	0	71.78	19.00	9.22	0
Cd	0.032	0.052	0.235	0	9.99	16.24	73.77	0
Cr	1.80	8.64	0	79.59	2.00	9.60	0	88.40
Cu	0	2.71	3.47	28.42	0	7.82	10.04	82.14
Ni	1.36	0	3.29	36.79	3.28	0	7.94	88.77
Pb	5.32	14.99	2.76	0.62	22.45	63.28	11.67	2.60
Zn	4.37	25.20	26.82	41.27	4.48	25.80	27.46	42.26
Hg	0.006	0.046	0.008	0	9.66	76.96	13.37	0

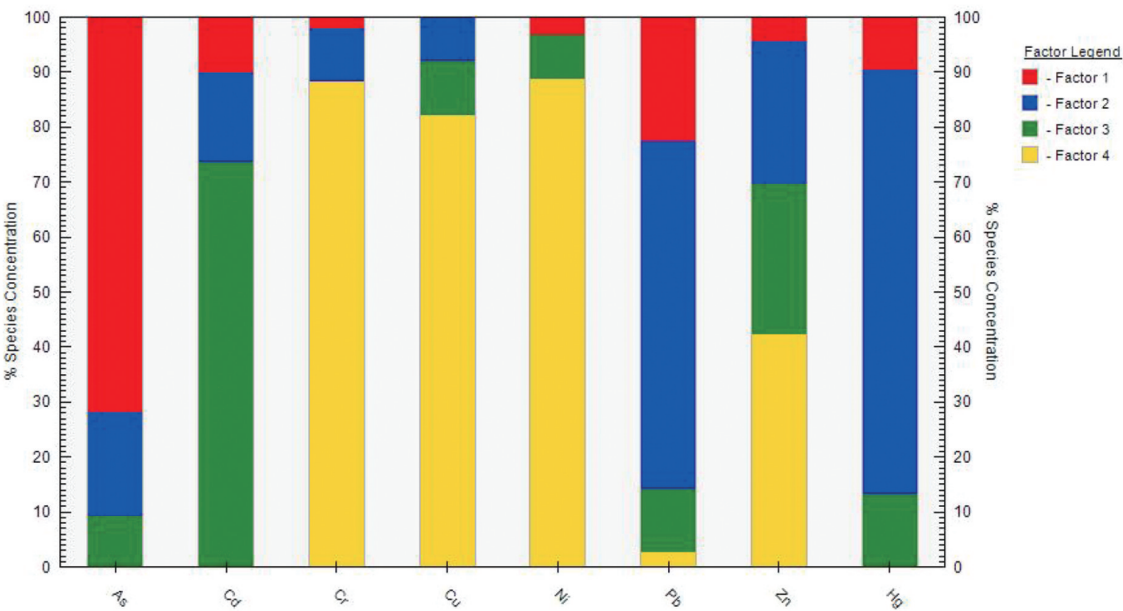


图 2 各元素因子源贡献率

Fig. 2 Factor source contribution rate of each element

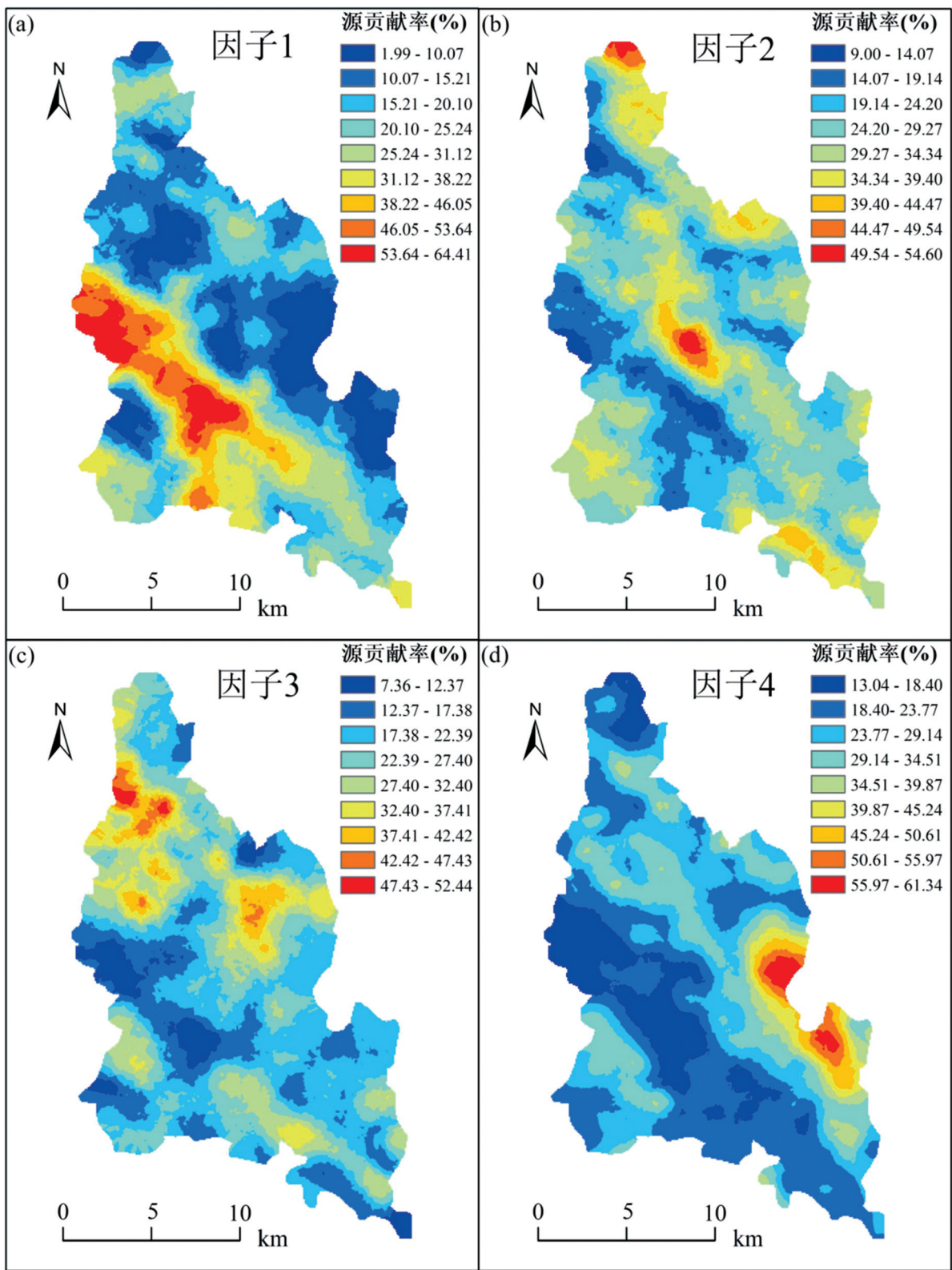


图 3 因子源贡献率分布图

Fig. 3 Distribution of factor source contribution rates

根据表 7 及图 2, 因子 1 主要代表 As 元素的来源, 对 As 元素的源贡献率高达 71.78%, 对 Pb 元素也有一定的源贡献率(22.45%)。由于我国

煤资源中 As 元素含量很高(白向飞, 2003), 高砷煤燃烧过程中 As 便会进入环境中(Finkelman et al., 2018), 但煤燃烧同样会导致 Hg 污染, 而因子

1 对于 Hg 的源贡献率却很低,因此因子 1 应代表其他来源。通过观察图 1 和图 3 中因子 1 源贡献率分布图可以看出,因子 1 高源贡献率与震旦系(Z)以及白垩系(K)地层重合度很高,因此推测因子 1 可能与地层有较大关联。表 8 统计了 1544 组样品、不同年代地层中 8 种重金属元素的含量,有 35 组样品属于岩浆岩,由于占比少,未参与统计。从表 6 中可以看出,震旦系以及白垩系地层中的 As 含量(15.13 mg/kg 和 14.79 mg/kg)和 Pb(25.70 mg/kg 和 26.66 mg/kg)含量相比其他地层更高,同时也高于研究区含量均值(As:11.52 mg/kg;Pb:24.42 mg/kg)。因此因子 1 代表的来源主要是震旦系和白垩系地层母岩。

从表 7 及图 2 中看出,因子 2 对 Hg、Pb 两种元素的源贡献率高达 76.96%、63.28%,对 As、Cd、Zn 等元素也表现出了一定的影响,源贡献率分别为

19.00%、16.24%、25.80%。有研究表明,交通排放是一个重要的重金属(包括 Hg、Pb、Cd 等元素)来源(Liu et al.,2012;Yang et al.,2017),而三里岗乡村道路分布全区,从图 3 也可以看出,因子 2 源贡献率超过 24.20%的区域在全区分布广泛,因此因子 2 应该受到了交通排放所带来的影响,但因为研究区为乡镇,车辆流通量小,所以交通排放到土壤中的重金属含量并不高,所以并未有样品的 Hg、Pb 含量超过风险筛选值。其次,图 3 中因子 2 高源贡献率区域(>34.34%)分布在北部、中部以及南部,与图 1 元古界(Pt)地层重合程度较高,说明因子 2 可能也受到了来自元古界地层母岩的影响。半变异函数分析表明 Pb 受到自然因素和人为因素共同影响,因此因子 2 解释为元古界地层母岩与道路交通排放的共同影响较为合理。

表 8 不同年代地层 8 种重金属元素含量^④

Table 8 Contents of eight heavy metals in strata of different ages

元素	元古界	震旦系	寒武系	奥陶系-志留系	泥盆系	白垩系	全新统
样品数	391	177	378	68	12	262	221
As	8.86	15.13	9.71	5.02	6.32	17.49	12.37
Cd	0.249	0.389	0.382	0.276	0.264	0.325	0.308
Cr	81.43	94.24	96.47	177.34	102.77	81.57	98.55
Cu	32.28	40.33	38.32	59.17	34.57	28.01	35.56
Ni	34.50	47.55	48.49	70.49	42.92	35.69	42.65
Pb	23.35	25.70	23.83	19.37	28.96	26.66	25.80
Zn	92.47	127.83	117.61	111.33	87.23	83.67	98.48
Hg	0.062	0.069	0.063	0.062	0.066	0.063	0.071

注:④元素含量单位为 mg/kg,样品数单位为件。

从表 7 以及图 2 可以看出,因子 3 对 Cd 的源贡献率最高,达到了 73.77%,对 Zn 元素的源贡献率也达到了 27.46%。观察图 1 和图 3 因子 3 源贡献率分布可以发现,因子 3 高源贡献率(>32.40%)区域与震旦系(Z)和寒武系(Є)地层重合程度较高,从表 8 中可以看出两个地层中 Cd、Zn 含量相比其他地层更高,其中 Cd 含量分别为 0.389 mg/kg 和 0.382 mg/kg, Zn 含量分别为 127.83 mg/kg 和 117.61 mg/kg,因此因子 3 可以解释为来自震旦系、寒武系 2 个地层的影响。对比分析图 3 与图 1,因子 1 和因子 3 解释均与震旦系有关,可能与震旦系地层岩性有关。

从表 7 以及图 2 中看出,因子 4 对于 Cr、Cu、Ni 的影响最高,分别达到了 88.40%、82.14% 和 88.77%,同时对 Zn 元素的贡献率也达到了

42.46%。从图 1 及图 3 中因子 4 源贡献率分布可以看出,因子 4 高源贡献率(>39.87%)区域与奥陶系到志留系(O-S)地层高度重合,从表 8 中也可以看出,Cr、Cu、Ni 在寒武系到志留系地层中的含量远高于其余地层中的含量,Zn 元素含量也高于研究区背景值,所以因子 4 可以解释为奥陶系到志留系地层母岩的影响。

4 结论

本文利用半变异函数及 PMF 模型对三里岗镇 8 种重金属元素的含量及来源进行了分析,结果表明:

(1)8 种重金属元素除 Hg、Pb 外的均值都高于全国背景值,依据《标准》中所给出的风险筛选

值进行评价,Cd 元素超标率超过 20%,内梅罗综合污染指数法显示三里岗镇污染样品占比为 16.39%,平均污染指数为 0.73,处于尚清洁水平。

(2)半变异函数分析结果表明,8 种重金属元素的块金效应均<50%,表明研究区重金属元素含量主要受自然因素影响。

(3)PMF 源解析得到了 4 个来源,依据不同地层中重金属元素的含量以及因子源贡献率分布情况将因子 1 解释为震旦系和白垩系地层母岩的影响、因子 2 解释为元古界地层母岩与乡村道路交通排放的混合源、因子 3 解释为震旦系和寒武系地层母岩的影响、因子 4 解释为奥陶系到志留系地层母岩的影响。

致谢:本研究数据主要来自湖北省地质局第八地质大队和“金土地”工程-高标准基本农田地球化学调查课题(项目编号 HBJTD20140108),受中国地质大学(武汉)中央高校基金生态地球化学团队项目(CUG170104)联合资助。

[参考文献]

白向飞. 2003. 中国煤中微量元素分布赋存特征及其迁移规律试验研究[D]. 北京:煤炭科学研究总院:1-175.

鲍大忠,游桂芝,袁盛博. 2020. 贵州兴仁市耕地土壤有效态与对应全量、pH、有机质的相关分析[J]. 贵州地质,37(03):404-408.

蔡大为,李龙波,蒋国才,等. 2020. 贵州耕地主要元素地球化学背景值统计与分析[J]. 贵州地质,37(03):233-239.

陈婕,吴康生,杨文兵,等. 2018. 湖北省随县三里岗地区富硒土壤分布规律探讨[J]. 资源环境与工程,32(01):55-60.

邓通德,陈冬冬,李繁春,等. 2022. 自然环境下脐橙果园土壤重金属污染评价[J]. 中国科技信息,(10):75-77.

董驷睿,胡文友,黄标,等. 2015. 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[J]. 中国环境科学,35(07):2103-2111.

耿治鹏,宋颀,王春林,等. 2022. 污染场地土壤重金属污染空间特征分析——以某搬迁电镀厂为例[J]. 环境工程技术学报:1-11.

李娇,滕彦国,吴劲,等. 2019. 基于 PMF 模型及地统计法的乐安河中上游地区土壤重金属来源解析[J]. 环境科学研究,32(06):984-992.

吕悦风,谢丽,孙华,等. 2019. 县域尺度耕地土壤重金属污染评价中的标准选择研究[J]. 中国环境科学,39(11):4743-4751.

孙海,严珺,刘惠军,等. 2020. 桓仁地区林下参土壤中重金属空间变异分析[J]. 特产研究,42(04):1-9.

魏复盛,杨国治,蒋德珍,等. 1991. 中国土壤元素背景值基本统计量及其特征[J]. 中国环境监测,(01):1-6.

吴敏,刘淑娟,叶莹莹,等. 2016. 喀斯特地区坡耕地与退耕地土壤有机碳空间异质性及其影响因素[J]. 生态学报,36(06):1619-1627.

吴云霞,蔡奎,吕凤军,等. 2019. 冀西北农牧交错带表层土壤营养元素特征研究——以河北省康保县为例[J]. 干旱区资源与环境,33(01):84-89.

徐源. 2021. 区域尺度典型工业聚集区土壤重金属源解析[D]. 北京:中国环境科学研究院:1-88.

薛建龙. 2014. 污染场地周边农田土壤重金属的污染特征及 PMF 源解析研究[D]. 杭州:浙江大学:1-60.

杨定国,吴阳,邱国强,等. 2014. 湖北省香菇主产区子实体重金属含量测定[J]. 食药菌,22(01):45-47.

杨涛毅,杨森林,尹努寻. 2011. 贵州省九城市远景规划区土壤污染的内梅罗指数评价[J]. 贵州地质,28(02):135-140.

杨希,岳晓岚,李靖,等. 2021. pH 值对土壤重金属污染的影响及其准确测定[J]. 贵州地质,38(04):466-471.

Dong Bo, Zhang Renzhi, Gan Yandong, et al. 2019. Multiple methods for the identification of heavy metal sources in cropland soils from a resource-based region[J]. Sci Total Environ,651(Pt 2):3127-3138.

Finkelman R B, Tian LW. 2018. The health impacts of coal use in China[J]. International Geology Review,60(5-6):579-589.

Guan Qingyu, Wang Feifei, Xu Chuanqi, et al. 2018. Source apportionment of heavy metals in agricultural soil based on PMF: A case study in Hexi Corridor, Northwest China[J]. Chemosphere (Oxford),193:189-197.

Hu Wenyou, Wang Huifeng, Dong Lurui, et al. 2018. Source identification of heavy metals in peri-urban agricultural soils of southeast China: An integrated approach[J]. Environmental Pollution,237:650-661.

Liang Jie, Feng Chunting, Zeng Guangming, et al. 2017. Spatial distribution and source identification of heavy metals in surface soils in a typical coal mine city, Lianyuan, China[J]. Environmental Pollution,225:681-690.

Liu Qingyang, Liu Yanju, Zhang Meigen. 2012. Mercury and cadmium contamination in traffic soil of Beijing, China[J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology,88(2):154-157.

Meng Zhaozhong, Zheng Yuanfu, Xiao Haifeng. 2011. Distribution and ecological risk assessment of heavy metal elements in soil[J]. Advanced Materials Research,183-185(Pt 1-3):82-87.

Paatero P, Tapper U. 1994. Positive matrix factorization: A Non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values[J]. Environmetrics,5(2):111-126.

Yang Pingguo, Mao Renzhao, Shao Hongbo, et al. 2009. An investigation on the distribution of eight hazardous heavy metals in the suburban farmland of China[J]. Journal of Hazardous Materials,167(1-3):1246-1251.

Yang Pingguo, Ge Jing, Yang Miao. 2017. Identification of heavy metal pollution derived from traffic in roadside soil using magnetic susceptibility[J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology,98(6):837-844.

Yang Shiyan, Zhao Jian, Chang S X, et al. 2019. Status assessment and probabilistic health risk modeling of metals accumulation in agriculture soils across China: A synthesis [J]. *Environment International*, 128: 165–174.

Zhang Hongyu, Xie Shuyun, Bao Zhengyu, et al. 2021. Synergistic in-

hibitory effect of selenium, iron, and humic acid on cadmium uptake in rice (*Oryza sativa* L.) seedlings in hydroponic culture [J]. *Environmental Science and Pollution Research International*, 28(45): 64652–64665.

Source Analysis of Soil Heavy Metals in Sanligang area of Sui County in Hubei Based on PMF Model

DONG Jian-biao¹, XIE Shu-yun¹, TIAN Huan², YANG Wen-bing³, LI Hua⁴, ZHOU Xu-wei¹,
Diego Armando Pinzon Nunez¹

(1. School of Earth Science, China University of Geoscience, Wuhan 430074, Hubei, China;

2. Faculty of Materials Science and Chemistry, China University of Geoscience, Wuhan 430074, Hubei, China;

3. Eighth Geological Brigade of Hubei, Xiangyang 441002, Hubei, China;

4. Qinghai Geological Survey, Xining 810000, Qinghai, China)

[**Abstract**] With the development of industry, mining and agriculture, heavy metal pollution has been found in many countries and regions of the world. It is necessary to master the sources of soil heavy metals for maintaining ecological security. In this paper, eight heavy metals in Sanligang town were analyzed by content analysis and semi-variogram analysis, and the sources of these eight heavy metals in soil were explored by positive matrix factor (PMF) decomposition combined with spatial distribution characteristics of source contribution rate. The results showed that the soil contents of As, Cd, Cr, Cu, Ni and Zn exceeded the national background value, and the average value of Nemerow comprehensive pollution index is 0.73, indicating that the study area is still at a clean level. Semi-variogram analysis showed that these eight heavy metals were more affected by structural factors. The four sources obtained by PMF source analysis are interpreted as the influence of the rocks in Sinian and Cretaceous, the mixed source of Proterozoic strata and rural road traffic emissions, the influence of the rocks in the Sinian and the Cambrian and the influence of the rocks in the Ordovician to the Silurian, indicating that the natural origins are the most important contributors of heavy metals in this region. Furthermore, the study shows that the PMF model can play a very important role in the source apportionment of heavy metals.

[**Key Words**] Sui county in Hubei province; Soil heavy metal; Semi-variogram function; Positive matrix factorization (PMF); Source apportionment