

DOI: 10.13718/j.cnki.xdzk.2025.04.015

詹明晔, 孙言秋, 周涛, 等. 填埋场周边土壤重金属时空分布及污染评价 [J]. 西南大学学报(自然科学版), 2025, 47(4): 167-179.

填埋场周边土壤重金属时空分布及污染评价

詹明晔¹, 孙言秋¹, 周涛², 刘小婷³, 廖瑜亮³, 曹军⁴,
黎鹏¹, 蓝焕杰¹, 杨林¹, 杨黎¹, 赵由才²

1. 成都环投城市管理服务有限公司, 成都 610041; 2. 同济大学环境科学与工程学院, 上海 200092;
3. 成都兴蓉再生能源有限公司, 成都 610011; 4. 成都崇环城市环境治理有限公司, 成都 611230

摘要: 为评估生活垃圾填埋库区周边土壤重金属积累的潜在生态健康风险, 以成都市某大型垃圾填埋场为例, 采集填埋库区周边不同深度的土壤样本, 测定重金属元素质量分数并与堆体填埋龄期等因素关联分析, 评价其污染状况和环境健康风险。结果表明: Hg、As、Pb、Cr(VI)在填埋库区周边明显富集, 并与垃圾堆体的填埋时间呈正相关关系, 受到土壤 pH 值、有机质质量分数等因素影响表现出不均匀的空间分布格局; Cr 和 Pb 在土壤中的迁移能力较弱。Cr(VI)和 Hg 是主要生态风险贡献因子。Pb 的总暴露量最大, 经口是主要的暴露途径。As 对人群的致癌风险和非致癌风险最大。由此说明, 在填埋库区周边土壤中积累浓度的 Cr(VI)、Hg、As、Pb 和 Cd 虽尚未形成严重污染问题, 但均具有潜在的环境健康风险, 应引起重视。

关键词: 生活垃圾填埋场; 土壤; 重金属迁移; 污染程度评估;
健康风险评价

中图分类号: X53; X825

文献标志码: A

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



文章编号: 1673-9868(2025)04-0167-13

Spatial-Temporal Distribution and Contamination Assessment of Heavy Metals in the Soil Around Landfills

ZHAN Mingye¹, SUN Yanqiu¹, ZHOU Tao², LIU Xiaoting³,
LIAO Yuliang³, CAO Jun⁴, LI Peng¹, LAN Huanjie¹,
YANG Lin¹, YANG Li¹, ZHAO Youcai²

1. Chengdu Huantou City Management Services Co. Ltd., Chengdu 610041, China;
2. College of Environmental Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China;
3. Chengdu Xingrong Renewable Energy Co. Ltd., Chengdu 610011, China;
4. Chengdu Chonghuan Urban Environmental Management Co. Ltd., Chengdu 611230, China

收稿日期: 2024-05-09

基金项目: 国家自然科学基金项目(22376163); 成都环境投资集团有限公司科研攻关专项(0426KY020011)。

作者简介: 詹明晔, 博士, 中级工程师, 主要从事固体废物的生物处置研究。

通信作者: 杨黎, 博士, 高级工程师。

Abstract: To assess the potential ecological health risks of heavy metal accumulation in the soil around the domestic waste landfill area, a large landfill in Chengdu City, Sichuan Province, China was investigated. Soil samples at different depths around the landfill area were used to determine the mass fraction of heavy metal elements, and correlation analysis was conducted with the factors such as landfill age of the garbage dump. The heavy metal pollution status and environmental health risks in soil were evaluated. The results have shown that Hg, As, Pb, and Cr(VI) were significantly enriched around the landfill area and were positively correlated with the landfill time, also affected by complex factors such as soil pH, mass fraction of organic matter and showed uneven spatial distribution patterns. The migration ability of Cr and Pb in soil was weak. Cr(VI) and Hg were the main ecological risk contributors. The total exposure of Pb was the largest, and oral exposure was the main exposure route. As has the greatest carcinogenic and non-carcinogenic risks to the population. In summary, although the accumulated concentrations of Cr(VI), Hg, As, Pb and Cd in the soil around the landfill area have not yet caused serious pollution problems, but they all have potential environmental health risks and should be paid attention to.

Key words: domestic waste landfill; soil; heavy metal migration; contamination risk assessment; health risk assessment

近年来,随着经济高速发展和城市人口持续增加,城市垃圾产量与日俱增。卫生填埋是一种重要的固体废物处理方法^[1]。然而,生活垃圾的卫生填埋仍存在潜在的环境风险,垃圾堆体产生的渗滤液泄漏容易造成土壤、水体、空气污染,是城市生活垃圾填埋场最常见的环境危害之一^[2]。重金属随着渗滤液在土壤中扩散,具有极大的生态和健康风险^[3]。不同元素在土壤中的浓度分布和迁移转化情况复杂,主要受土壤 pH 值影响,使其发生沉淀或溶解^[4-5]。此外还与土壤特性、土壤有机质质量分数等有关,通过吸附或螯合作用,从而改变重金属离子的迁移流动能力^[6]。梁丽琛等^[7]研究发现,土壤中的 Hg、As、Pb、Cd 在垂直方向表现出明显的浓度变化趋势。大型垃圾填埋场中垃圾成分复杂^[8],但对流动性较强的 Cr(VI)等在填埋场周边土壤中的浓度分布和迁移转化规律的研究鲜见报道。

不同填埋龄期的垃圾堆体性质存在差异,包括 pH 值和有机质质量分数等,使一些重金属元素浓度变化与垃圾堆体龄期的呈现相关关系^[9]。填埋场老化后, pH 值逐渐升高、腐殖酸积累,容易使重金属通过沉淀、络合作用等固存于土壤,但随着垃圾不断降解并随着渗滤液排出,重金属总量呈减少趋势。总的来说,关于典型重金属污染物在填埋库区周边土壤的空间分布和受地理因素、垃圾堆体的填埋龄期、土壤理化性质等因素影响的变化规律尚缺乏较全面、系统的研究。

本研究以某山谷型填埋场为研究对象,填埋场一期和二期是已封场的高龄堆体,三期仍处于运行状态,填埋龄期较低,填埋场的堆填量大、成分复杂,因此适合用于研究多种重金属元素在不同填埋龄期的填埋库区周围土壤中的浓度分布特征和迁移转化规律及其主要影响因素,具有代表性;通过测定其 pH 值、有机质质量分数及 Cr(VI)、Hg、As、Pb、Cd、Ba、Zn、Cr、Ni 9 种重金属及 Be 的质量分数,采用相关性分析对引起重金属元素浓度积累的原因进行探讨。通过内梅罗综合污染指数评价法、地累积指数评价、潜在生态风险指数法和健康风险评价法对该填埋库区周边土壤进行重金属污染程度评估和健康风险评价,旨在为填埋场的重金属污染防治、生态安全和人体健康保护提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

本研究对象填埋场位于四川省成都市某丘陵山谷内,属亚热带潮湿气候,西、南、东面临山,北侧为沟谷出口。四周有自然山体阻隔,较为封闭,隐蔽性好。该填埋场共建设有三期工程,包括一、二、三期生活垃圾填埋区及飞灰填埋区。一期占地面积 55.73 hm²,设计库容 1 135 万 m³,于 1993 年建成投用;二期占地面积 48.2 hm²,设计库容 2 340 万 m³,于 2003 年建成投用。一期、二期已于 2019 年临时封场,目前仅

需进行日常维护;三期生活垃圾填埋区于 2020 年 6 月建成,目前仍在运营。本研究采样时间为 2022 年 9 月,截至 2022 年,填埋场一期堆体龄期 29 年,二期堆体龄期近 19 年。堆场填埋物堆存及渗滤液暂存过程产生的气体和粉尘等,在风力和雨水冲刷的作用下可能造成污染物扩散。

1.2 样品采集

填埋场建设范围内的未硬化土壤,在填埋场运行过程中可能由于固体废物运输遗漏、渗滤液泄漏、大气沉降等方式被污染。为探究对堆场内外土壤重金属污染情况,采集了填埋库区周边及外围建设用地(主要用地类型)的土壤样品,采样深度为 0~0.5 m(表层),0.5~2 m(中层),2~4 m(深层),其中较浅层(0~2 m)主要为人工填土(弱透土层)、黏质土壤(微透土层),较深层(1~4 m)主要为粉质黏土(微透土层)、砂质土壤(弱透土层)。在填埋库区周边潜在污染区域布设共计 15 个土壤采样点位(S1-S15)。在主导风向上风向及地下水流向上游的外部区域共布设 3 个土壤清洁对照点(D1-D3)。5~20 个子样等量混合组成 1 个混合样。本研究区域的 3D 实景地图来源于四川地图开发平台(<https://www.scgis.net.cn>),通过基于 CORS 网络的 RTK 技术测量各点位地理坐标高程,坐标采用 CGS 2000 国家大地坐标系,高程采用 1985 国家高程系。填埋场海拔总体呈南高北低,高程范围为 526~683 m。



审图号: 川 S(2024) 00085 号,底图无修改。
(S1-S15): 填埋库区周边点位; (D1-D3): 对照点位。

图 1 土壤采样点分布

1.3 测定方法和质控手段

本次土壤采样使用一次性塑料白管采样器,采样器配有助推器,可将土壤推入样品瓶中。用于土壤 pH 值、有机质、重金属检测样品,取样量不少于 500 g,采集样品装入 1 个自封口塑料袋并封口。参照《土壤环境监测技术规范》(HJ/T 166—2004),土壤样品带回实验室后,暂存于 4℃ 冰箱。检测前需对土壤样品进行预处理,样品经适当压碎、翻动,风干后,过 2 mm 筛(10 目),去除砂砾和植物根系等异物,减少试验误差;筛下物再次压碎,拣出杂质,混匀后过 0.25 mm 筛(60 目)后可用于土壤 pH 值、有机质分析,用于土壤金属元素检测的样品需细研磨,过 0.15 mm 筛(100 目)后使用。

取适量土壤样品,加入 2.5 倍体积的水,充分混匀后,采用《土壤 pH 值的测定 电位法》(HJ 962—2018)测定 pH 值。土壤样品经油浴加热(170~180℃)重铬酸钾氧化,通过《土壤检测第 6 部分:土壤有机质的测定》(NY/T 1121.6—2006)测定有机质质量分数。参考《土壤环境质量建设地土壤污染风险管控标准(试行)》(GB 36600—2018)中的重金属项目以及渗滤液和生活垃圾的关注污染物,使用原子吸收分光光度计(TAS-990F 型,北京普析通用仪器有限公司)测定 Cr(VI)、Zn、Cr、Ni,使用原子荧光光度计(AFS-10B 型,北京吉天仪器有限公司)测定 Hg、As,使用石墨分光光度计(TAS-990G 型,北京普析通用仪器有限公司)测定 Pb、Cd、Be(HJ 737—2015),使用电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-OES Duo 型,美国 ThermoFisher 公司)测定 Ba 元素的质量分数。

测定样品时采用空白试验、定量校准、平行双样法和加标回收法对测试结果的质量进行控制。取 10% 样品进行平行双样分析,测试合格率达到 95%;对空白和测试样品分别加入质控标样,加标回收率均在合格范围内。

1.4 污染评价方法

1.4.1 单因子评价法

单因子指数反映土壤中单元素污染程度和超标倍数,计算公式如下:

$$P_i = C_i / S_i \tag{1}$$

式中: P_i 为土壤中污染物 i 的单因子污染指数; C_i 为重金属元素质量分数(mg/kg); S_i 为重金属元素对应

的背景值(mg/kg)。

1.4.2 内梅罗综合污染指数

采用内梅罗综合污染指数法对采集的点位土壤进行综合评价,内梅罗综合污染指数的计算公式如下:

$$NP_i = \sqrt{\frac{P_{iave}^2 + P_{imax}^2}{2}}$$

(2)

式中: NP_i 为内梅罗综合污染指数; P_{iave} 为单元素超标倍数的平均值; P_{imax} 为单元素超标倍数的最大值。

1.4.3 地累积指数评价

地累积指数评价考虑了人类活动、造岩活动对背景值的影响^[10-11],得到单元素污染级别,结果能够反映各元素质量分数高低水平,评价人类活动对重金属污染的影响,计算公式如下:

$$I_{geo} = \log_2 \frac{C_n}{1.5 \times B_n}$$

(3)

式中: I_{geo} 为地累积指数; C_n 为单元素质量分数(mg/kg); B_n 为对应元素的土壤背景值(mg/kg),地累积指数分级如表 1 所示^[12]。

表 1 地累积指数级数表

地累积指数 I_{geo}	级数	污染程度	地累积指数 I_{geo}	级数	污染程度
$I_{geo} < 0$	0	无污染	$3 \leq I_{geo} < 4$	4	偏重污染
$0 \leq I_{geo} < 1$	1	轻微污染	$4 \leq I_{geo} < 5$	5	重度污染
$1 \leq I_{geo} < 2$	2	轻度污染	$I_{geo} \geq 5$	6	极重污染
$2 \leq I_{geo} < 3$	3	中度污染			

1.5 环境健康风险评价方法

1.5.1 潜在生态风险指数

采用 Hakanson 于 1980 年建立的应用于沉积学原理评价重金属污染及生态危害的方法,计算公式如下:

$$E_i = T_i \times \frac{C_i}{C_0}$$

(4)

$$RI = \sum_{i=1}^n E_i$$

(5)

式中: E_i 为重金属元素 i 的潜在生态风险单项系数; T_i 为重金属元素 i 的毒性响应系数; C_i 为研究区域内的某个深度下所有采集点位的重金属 i 浓度实测均值(mg/kg); C_0 为研究区域土壤背景值(mg/kg); RI 为潜在生态风险指数(单项的和)。

Hakanson 未对 Cr(VI)的毒性响应系数进行分析,参考林丽钦^[13]的基于毒理学安全评价方法的推导结果,设定 Cr(VI)、Hg、As、Pb 和 Cd 的毒性响应系数。重金属污染的生态风险分级如表 2 所示。

表 2 潜在生态风险指数分级

E_i 参数范围	单因子污染的生态风险	RI 参数范围	潜在生态危害程度
$E_i < 40$	轻度	$RI < 150$	轻度
$40 \leq E_i < 80$	中等	$150 \leq RI < 300$	中等
$80 \leq E_i < 160$	强	$300 \leq RI < 600$	强
$160 \leq E_i < 320$	很强	$RI \geq 600$	很强
$E_i \geq 320$	极强	—	—

1.5.2 暴露评估分析

土壤重金属主要通过 3 种途径对人体产生危害:① 经口摄入污染土壤种植的食物;② 皮肤直接接触污染土壤摄入重金属;③ 通过呼吸的方式直接吸入空气中的土壤飞尘。

3 种方式摄入暴露量的计算见公式(6)–(8), CS_i 为污染物 i 的质量分数(mg/kg),各参数缩写及取值

如表 3 所示。

经口摄入土壤暴露量：

$$EDI_{\text{经口}} = \frac{CS_i \times ED \times EF \times IR_{\text{土壤}}}{BW \times AT} \times 10^{-6}$$

(6)

经皮肤摄入土壤暴露量：

$$EDI_{\text{经皮肤}} = \frac{CS_i \times ED \times EF \times SA \times AF \times ABS}{BW \times AT} \times 10^{-6}$$

(7)

经呼吸摄入土壤暴露量：

$$EDI_{\text{经呼吸}} = \frac{CS_i \times IR_{\text{空气}} \times EF \times ED}{PEF \times BW \times AT}$$

(8)

总暴露量：

$$EDI_{\text{总}} = EDI_{\text{经口}} + EDI_{\text{经皮肤}} + EDI_{\text{经呼吸}}$$

(9)

表 3 暴露评估参数值

参数	参数	单位	取值
$IR_{\text{空气}}$	每日呼吸速率	mg/d	15
$IR_{\text{土壤}}$	土壤每日摄入速率	mg/d	100
EF	暴露频率	d/a	350
ED	暴露时长	a	30
SA	皮肤暴露接触面积	cm ²	5 000
AF	皮肤附着系数	mg/cm ²	0.2
ABS	皮肤吸收因子	无纲量	0.001
PEF	颗粒物排放因子	m ³ /kg	1.36×10 ⁹
BW	体质量	kg	55.9
AT	暴露期总时长	d	致癌 70×365，非致癌 30×365

1.5.3 毒性评估与风险表征

毒性评估是计算人群对污染物暴露程度与产生负面效应可能性之间的关系。本文重点研究了 Cr(VI)、Hg、As、Pb 和 Cd 的非致癌效应和致癌效应，具体参数如表 4 所示，其中 RfD_i 为非致癌效应参数， SF 为致癌效应参数。

表 4 重金属参考计量和致癌斜率因子取值

重金属	Cr(VI)	Hg	Cd	As	Pb
$RfD_{\text{经口}}$	3.00×10 ⁻³	3.00×10 ⁻⁴	1.00×10 ⁻³	3.00×10 ⁻⁴	3.50×10 ⁻³
$RfD_{\text{经皮肤}}$	6.00×10 ⁻⁵	2.10×10 ⁻⁵	1.00×10 ⁻⁵	1.23×10 ⁻⁴	5.25×10 ⁻⁴
$RfD_{\text{经呼吸}}$	2.86×10 ⁻⁵	8.57×10 ⁻⁵	1.00×10 ⁻⁵	3.00×10 ⁻⁴	3.52×10 ⁻³
$SF_{\text{经口}}$	5.00×10 ⁻¹	—	—	1.50	8.50×10 ⁻³
$SF_{\text{经皮肤}}$	—	—	—	3.66	—
$SF_{\text{经呼吸}}$	4.20×10 ⁻¹	—	6.30	15.10	—

不同暴露途径都存在致癌和非致癌风险，不同方式摄入土壤非致癌危害商公式如下：

$$HQ_i = \frac{EDI_i}{RfD_i}$$

(10)

$$HI = \sum HQ_i$$

(11)

不同暴露途径的致癌风险水平公式如下：

$$CR_i = EDI_i \times SF_i$$

(12)

综合致癌风险指数公式如下：

$$CR_{\text{总}} = \sum CR_i$$

(13)

1.6 数据分析与处理

本试验土壤重金属数据使用 Excel 2017 整理和统计，并采用 Origin Lab 2024 和 SPSS 20.0 软件进行数据分析与图表绘制，数据组间差异采用样本 t 检验分析。

2 结果与讨论

2.1 土壤重金属分布与影响因素

2.1.1 土壤 pH 值、有机质质量分数和金属元素质量分数特征

对填埋库区周边土壤的 pH 值、有机质和金属元素质量分数进行测定，测定结果如表 5 所示。结果表明，填埋库区周边点位土壤 pH 值平均值为 8.63，属于碱性土壤；土壤有机质质量分数平均值为 11.89 g/kg，属于缺乏水平^[14-16]；与背景点土壤重金属元素质量分数相比较，研究区土壤中 Cr(VI)、Hg、As、Pb 和 Cr 的平均质量分数是背景值的 1.2~1.8 倍，部分土壤样品点 Hg 和 As 的平均质量分数高达对照点的 3.5~3.9 倍，表明 Hg、As、Pb、Cr(VI)、Cr 在填埋库区周边明显富集。

表 5 土壤 pH 值、有机质质量分数和金属元素质量分数测定结果

指标	采样深度/m	均值	最大值	最小值	标准差	变异系数/%
pH 值(无量纲)	0~0.5	8.67	8.88	8.37	0.13	1.53
	0.5~2	8.66	8.88	8.42	0.14	1.57
	2~4	8.63	8.79	8.38	0.13	1.48
有机质/(g·kg ⁻¹)	0~0.5	12.33	20.34	6.38	4.61	37.39
	0.5~2	13.85	27.07	6.21	6.56	47.36
	2~4	9.50	19.31	1.38	4.80	50.53
Cr(VI)/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	2.11	2.60	1.10	0.53	25.28
	0.5~2	2.23	2.70	1.20	0.50	22.36
	2~4	1.89	2.80	1.10	0.58	30.90
Hg/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	0.35	1.92	0.03	0.46	131.78
	0.5~2	0.24	0.47	0.03	0.13	54.01
	2~4	0.21	0.69	0.04	0.17	81.22
As/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	9.22	17.60	4.72	3.63	39.42
	0.5~2	9.45	19.70	4.59	4.32	45.65
	2~4	9.17	17.40	4.92	3.97	43.32
Pb/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	17.88	30.50	9.60	5.78	32.35
	0.5~2	16.58	27.40	11.60	3.68	22.21
	2~4	16.64	26.50	12.20	3.64	21.85

续表 5

指标	采样深度/m	均值	最大值	最小值	标准差	变异系数/%
Cd/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	0.24	0.73	0.08	0.20	85.43
	0.5~2	0.26	0.56	0.08	0.17	66.20
	2~4	0.27	0.57	0.06	0.19	70.54
Be/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	4.10	6.38	2.61	1.00	24.26
	0.5~2	4.58	6.10	2.68	1.07	23.47
	2~4	4.12	5.54	2.56	0.67	16.15
Ba/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	329.07	477.00	211.00	69.11	21.00
	0.5~2	318.40	488.00	171.00	89.17	28.01
	2~4	341.00	514.00	236.00	88.38	25.92
Zn/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	79.07	95.00	56.00	10.12	12.80
	0.5~2	79.93	91.00	71.00	5.05	6.32
	2~4	77.67	90.00	62.00	8.12	10.46
Cr/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	74.20	99.00	51.00	14.06	18.95
	0.5~2	68.60	83.00	45.00	10.40	15.16
	2~4	66.33	92.00	49.00	10.97	16.53
Ni/(mg·kg ⁻¹)	0~0.5	47.20	60.00	29.00	8.75	18.54
	0.5~2	44.27	62.00	31.00	8.89	20.09
	2~4	44.33	61.00	33.00	8.70	19.62

变异系数反映人类活动对重金属质量分数的影响,变异系数越大,影响越大,填埋库区周围浅层土壤中的 Pb、较深层土壤中的 Cr(VI)、以及不同土层中的有机质、Hg、As 和 Cd 的质量分数变异系数大于 30%,为强变异^[17],表明在填埋库区周围土壤中上述土壤有机质、重金属元素的空间分布不均匀,浓度变化受人类活动影响较大。对所有样品测试结果分析对比发现,高龄垃圾堆体周边、深层土壤有机质质量分数低且普遍小于背景值 13.56 g/kg,沈亚婷等^[18]和高闻哲等^[19]研究表明在深层的、存留较久的土壤中有有机质矿化程度高、溶解性有机质易流失导致总有机质质量分数降低且主要为较稳定的颗粒态有机质形式;新鲜垃圾堆体周边土壤有机质质量分数较高且部分点位高于背景值,估计主要由于新鲜垃圾产生的大量渗滤液在运输过程中滴漏到周围土壤所致^[20]。在靠近表层的土壤中 Hg、Pb 和 Cd 的变异系数较大,其中废弃洗车场和加油站附近点位的 Pb 质量分数较高,可能是人类活动导致机油泄漏而产生污染。Hg 和 Cd 均在填埋龄期较高的垃圾堆体周边土壤点位质量分数较高,由此可见垃圾堆体对周边土壤的重金属质量分数产生明显影响。Cr(VI)和 As 在较深层的土壤中表现出较高的变异系数,说明重金属元素在不同点位的垂直迁移可能存在较大差异。

2.1.2 土壤重金属分布规律与影响因素分析

填埋库区地势南高北低,土壤重金属还可能受雨水冲刷的作用,向低地势迁移。为进一步分析垃圾堆体周边土壤中富集的重金属元素质量分数分布规律并探讨其主要影响因素,在 Origin 中运用相关系数的方法对各点位的地面高程、紧邻垃圾堆体的填埋龄期、土壤 pH 值、土壤有机质质量分数及土壤深度与 Cr(VI)、Hg、As、Pb、Cd 和 Cr 质量分数进行 Pearson 相关性分析,如图 2 所示。

As 和 Cd 均与垃圾堆体填埋龄期和地面高程呈显著正相关关系,说明 As 和 Cd 在填埋库区周边土壤中的移动能力较差,梁欣冉等^[21]和蒋起保等^[22]研究报道结合态的 As 和 Cd 质量分数随着土壤 pH 值碱化增加,随着填埋时间增加,并逐渐在高龄的垃圾堆体周边积累明显^[23-24]。As 和 Cd 在该土

壤环境下可能主要以残渣态存在，当前受 pH 值影响较小^[25]，在本研究中未见 As 和 Cd 浓度与土壤 pH 值的显著相关性。As 和 Cd 在土壤中还受土壤有机质质量分数、土壤特性等更多因素影响^[26-27]。

土壤有机质质量分数容易发生变化且组分复杂，包括溶解性有机质和颗粒性有机质，两者对土壤重金属形态的影响恰好相反，溶解性有机质可增加重金属的流动性而颗粒性有机质更有利于重金属在土壤中富集^[28]，从而使土壤有机质与重金属之间关系密切而复杂^[29]。本研究发现，仅高龄垃圾堆体周边、深层土壤中的 Cd 与土壤有机质质量分数呈显著正相关关系($p<0.05$)，结合前文所述，该土壤环境中 Cd 的富集归结于有机质以颗粒态为主。

大多数元素质量分数变化尽管与土壤深度表现出相关性，但不显著。通过统计分析各金属元素在不同土壤采集点位、不同深度的质量分数，结果如图 3 所示。如上所述，As 和 Cd 受到土壤中多重因素的影响，多价态的 As 在土壤中还具有更加复杂的赋存形态^[30]，使 As 和 Cd 在不同采集点位质量分数表现为较分散，很难表现出明显的空间分布规律。Pb 和总 Cr 随土壤深度增加逐渐降低并且不同采集点位质量分数收敛，变化规律较明显。

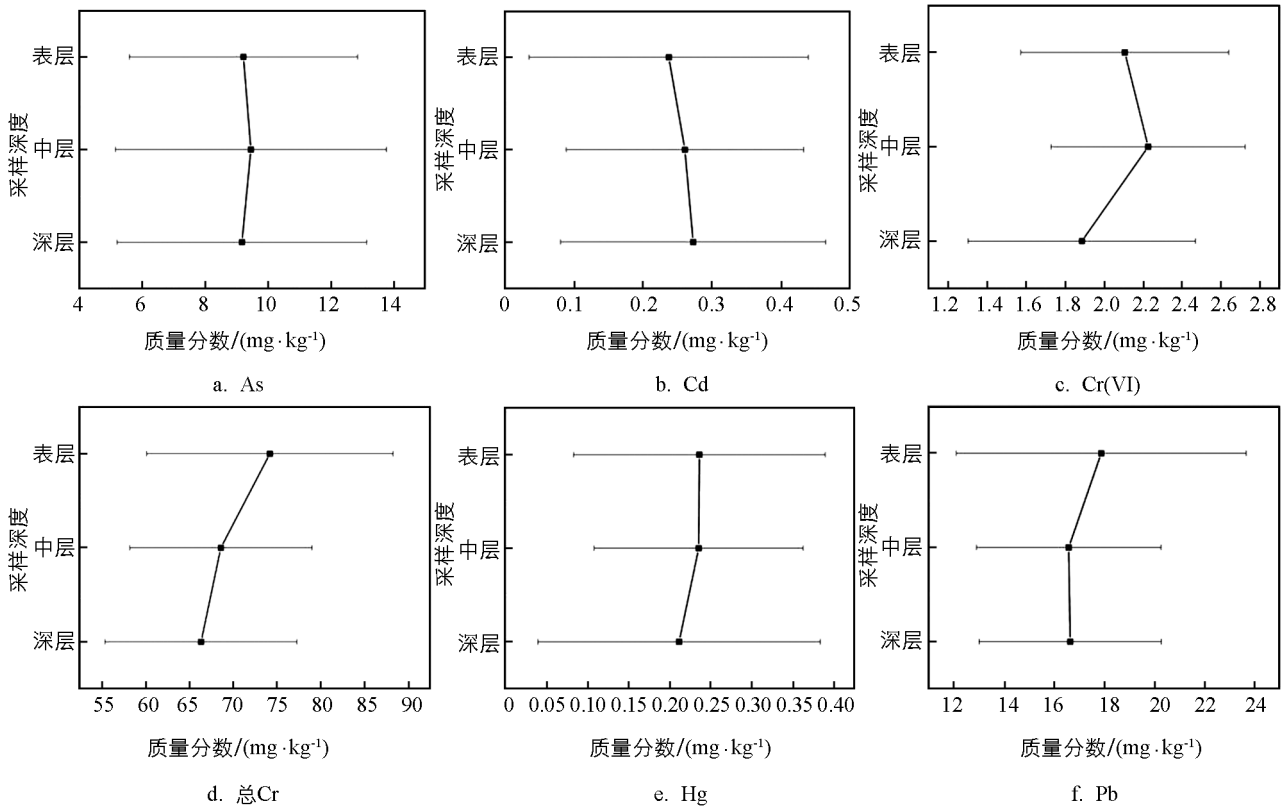


图 3 不同土壤深度各重金属元素质量分数分析

Cr(VI)在土壤中的迁移流动能力较强^[31]，但也容易受土壤氧化还原环境、有机质质量分数及微生物等

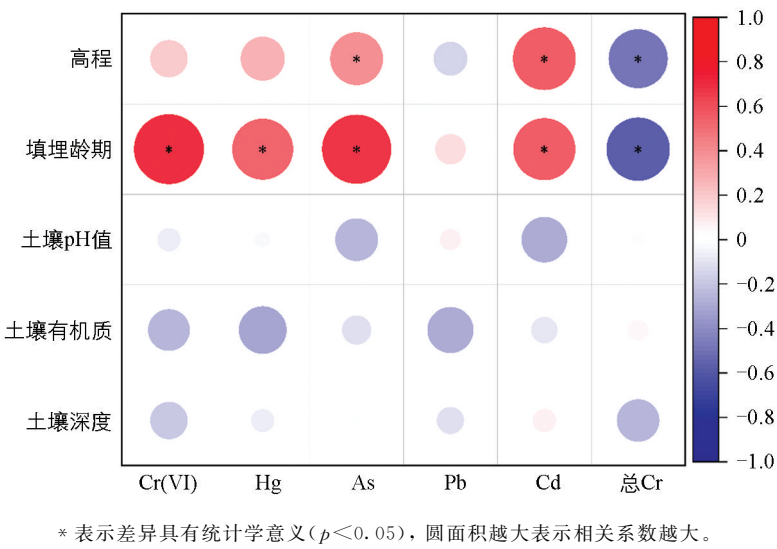


图 2 土壤重金属与环境变量的相关性分析

复杂因素的影响,因此在深层土壤中分布仍然不均匀。Cr(VI)容易被还原成 Cr(III),转化成结合态的形式^[32],在垂直方向上的迁移能力较弱,且随着土壤质地变化,Cr(VI)质量分数随土壤深度增加先升高后降低(图 3)。垃圾堆体中的 Cr(VI)逐渐浸出并在高龄垃圾堆体周边土壤显著富集(图 2)^[33]。土壤中的 Cr 更易以 Cr(III)存在,垂直迁移能力弱。总 Cr 表现为在低地势显著富集而且在新鲜垃圾堆体周边质量分数较高。新鲜垃圾堆体周边土壤有机质质量分数较高,可为游离态 Cr(VI)提供大量的电子供体,增加形成稳定的结合态 Cr(III)。Hg 在高龄堆体周边土壤中显著富集(图 2),其主要来源包括垃圾中 Hg(II)的溶出和蒸汽 Hg 的沉降^[34],在弱碱性土壤中,Hg(II)的流动性减弱,可以与无机物或有机物形成沉淀^[35],总体表现出了不均匀的空间分布格局。与 Hg 不同,Pb 在 pH 值为 8 左右的弱碱性土壤中,容易与 OH⁻ 结合生成沉淀,或通过吸附、螯合等作用形成性质较稳定的结合态不易淋出,且在垂直方向迁移能力较弱^[36],因此 Pb 在深层土壤中质量分数整体降低并表现出收缩趋势。

2.2 土壤重金属污染程度评估

根据研究选取的填埋库区周边土壤采集点位的各重金属元素质量分数,采用内梅罗综合污染指数法的评价结果,根据内梅罗综合污染指数法标准^[37],15 个土壤点位中, NP_i 最大值为 0.36,最小值为 0.14,平均值为 0.35,所有的点位 NP_i 均小于 0.7,属于 I 级安全无污染,表明填埋库区周边土壤富集的重金属质量分数均未超标,总体环境相对安全。

填埋库区周边土壤采样点中,各重金属元素的地累积指数评价如图 4 所示。由图可知,填埋库区周边土壤中,高龄堆体周边点位的 Cr(VI)、Hg 和 As 的 I_{geo} 均大于 0 且小于 2,属于轻微或轻度污染;在 S12 点位处,Hg 的 I_{geo} 大于 2,属于中度污染。部分点位的 Pb 和 Cd 的 I_{geo} 表现为大于 0 且小于 1,属于轻微污染。总 Cr 的 I_{geo} 小于 1,表明无污染,与内梅罗综合污染指数法的评价结果一致。由此可见,不同的评价方法所得结果存在差异。内梅罗综合污染指数法评价的方法较为保守,主要原因是其评价是建立在环境质量标准的基础之上,未依据研究区域的实际情况进行校准,可能忽略了重金属元素之间的协同作用等;而地累积指数的评价结果略有夸大,由于过分强调土壤背景值的影响,容易造成上述元素的评价结果偏大^[38-39]。因此,不能绝对排除 Cr(VI)、Hg、As、Pb 和 Cd 对周围生态环境的污染风险和环境健康风险。

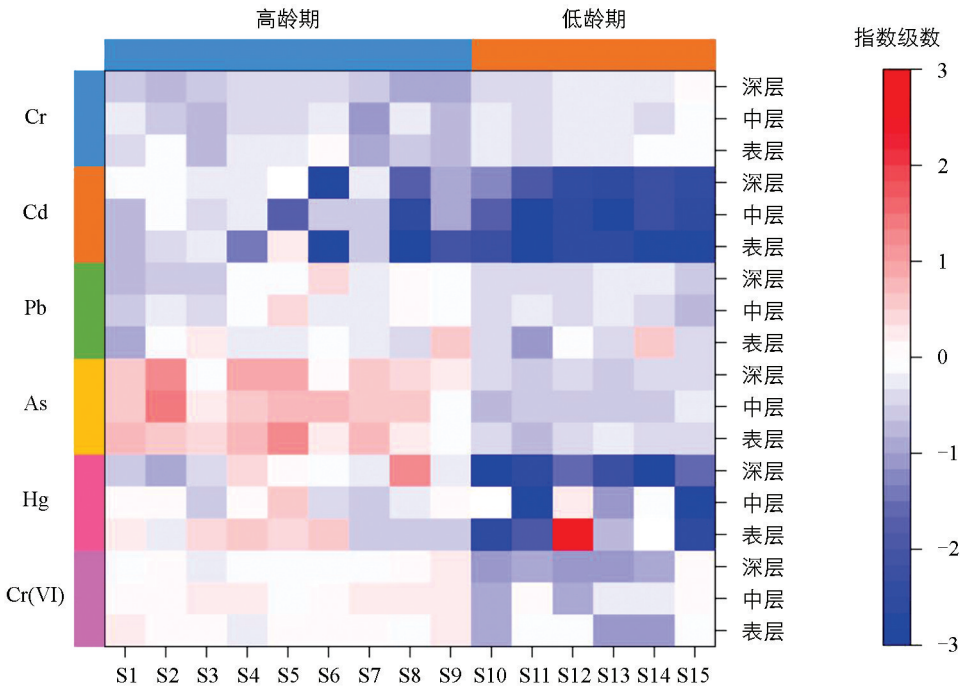


图 4 填埋库区周边土壤重金属地累积指数

2.3 土壤重金属环境安全风险评价

2.3.1 潜在生态风险指数

综合上述研究结果可知, 填埋库区周边土壤重金属中 Cr(VI)、Hg、As、Pb 和 Cd 的污染扩散情况仍需进一步关注, 5 种重金属元素在研究区内不同土壤深度的潜在生态风险指数如表 6 所示。Hg 的生态风险指数最强, 达到中等风险水平, 其余重金属均为轻度风险。表层土壤中重金属的潜在生态风险指数最高, 初步判断 Hg 和 Cr(VI)是主要生态风险贡献因子。随土壤深度增加, Cd 的潜在生态风险指数升高, 对较深层土壤具有潜在的污染风险。梁丽琛等^[7]和李鹏辉等^[40]对其他垃圾填埋场土壤重金属污染调查中也指出 Hg、As 和 Cd 具有较高的潜在生态风险。因此, Hg、Cr(VI)、As 和 Cd 的污染积累和潜在风险是在垃圾填埋场中普遍的, 应引起重视。

表 6 研究区不同深度重金属潜在生态风险指数

采样深度	评价指数	Cr(VI)	Hg	As	Pb	Cd
表层	E_i	28.10	69.68	18.07	6.82	17.80
	RI	140.46				
中层	E_i	29.69	47.07	18.54	6.33	19.55
	RI	121.17				
深层	E_i	25.16	42.28	17.97	6.35	20.45
	RI	112.21				

2.3.2 环境健康风险评价

本研究就 Cr(VI)、Hg、As、Pb 和 Cd 这 5 种重金属对成人的健康风险进行评估, 非致癌日暴露量计算结果如表 7 所示。由表可知, 所有元素中总暴露量最大的是 Pb, 表层摄入量为 3.10×10^{-5} mg/(kg·d), 表层暴露量最小的是 Cd, 成人总摄入量分别为 4.11×10^{-7} mg/(kg·d), 但随着土壤深度增加暴露量逐渐升高。总体上看, 3 种途径中摄入重金属质量分数由高到低的顺序为: 经口摄入、经皮肤摄入、经呼吸摄入, 这与前人研究结果一致^[41], 因此在填埋场周围的人群应主要注意降低口摄入风险。

表 7 土壤重金属非致癌日暴露量 mg·kg⁻¹·d⁻¹

重金属	分类	经呼吸	经口	经皮肤	总暴露量
Cr(VI)	表层	3.99×10^{-10}	3.61×10^{-6}	3.61×10^{-8}	3.65×10^{-6}
	中层	4.21×10^{-10}	3.82×10^{-6}	3.82×10^{-8}	3.86×10^{-6}
	深层	3.57×10^{-10}	3.24×10^{-6}	3.23×10^{-8}	3.27×10^{-6}
Hg	表层	6.59×10^{-11}	5.98×10^{-7}	5.98×10^{-9}	6.04×10^{-7}
	中层	4.45×10^{-11}	4.04×10^{-7}	4.04×10^{-9}	4.08×10^{-7}
	深层	4.00×10^{-11}	3.63×10^{-7}	3.63×10^{-9}	3.66×10^{-7}
As	表层	1.74×10^{-9}	1.58×10^{-5}	1.58×10^{-7}	1.60×10^{-5}
	中层	1.79×10^{-9}	1.62×10^{-5}	1.62×10^{-7}	1.64×10^{-5}
	深层	1.73×10^{-9}	1.57×10^{-5}	1.57×10^{-7}	1.59×10^{-5}
Pb	表层	3.38×10^{-9}	3.07×10^{-5}	3.07×10^{-7}	3.10×10^{-5}
	中层	3.14×10^{-9}	2.84×10^{-5}	2.84×10^{-7}	2.87×10^{-5}
	深层	3.15×10^{-9}	2.85×10^{-5}	2.85×10^{-7}	2.88×10^{-5}
Cd	表层	4.49×10^{-11}	4.07×10^{-7}	4.07×10^{-9}	4.11×10^{-7}
	中层	4.93×10^{-11}	4.47×10^{-7}	4.47×10^{-9}	4.52×10^{-7}
	深层	5.16×10^{-11}	4.67×10^{-7}	4.68×10^{-9}	4.72×10^{-7}

Cr(VI)、Hg、As、Pb 和 Cd 对人体健康风险的致癌/非致癌风险评价指数如表 8 所示。所有元素不同途径的致癌风险指数均远小于 1, 表明场区附近不存在致癌风险。经口摄入的致癌风险远高于经呼吸和经皮肤两种途径, 此结果与暴露评估结果一致。所有重金属元素中, 成人对 As 的致癌风险和非致癌风险最大。

表 8 健康风险表征指数

风险指数	分类	Cr(VI)	Hg	Cd	As	Pb
$HQ_{\text{经口}}$	表层	1.20×10^{-3}	1.99×10^{-3}	4.07×10^{-4}	5.27×10^{-2}	8.76×10^{-3}
	中层	1.27×10^{-3}	1.35×10^{-3}	4.47×10^{-4}	5.41×10^{-2}	8.12×10^{-3}
	深层	1.08×10^{-3}	1.21×10^{-3}	4.68×10^{-4}	5.24×10^{-2}	8.15×10^{-3}
$HQ_{\text{经呼吸}}$	表层	1.39×10^{-5}	7.69×10^{-7}	4.49×10^{-6}	5.81×10^{-6}	9.61×10^{-7}
	中层	1.47×10^{-5}	5.19×10^{-7}	4.93×10^{-6}	5.96×10^{-6}	8.91×10^{-7}
	深层	1.25×10^{-5}	4.66×10^{-7}	5.15×10^{-6}	5.78×10^{-6}	8.94×10^{-7}
$HQ_{\text{经皮肤}}$	表层	6.02×10^{-4}	2.85×10^{-4}	4.07×10^{-4}	1.29×10^{-3}	5.84×10^{-4}
	中层	6.37×10^{-4}	1.92×10^{-4}	4.47×10^{-4}	1.31×10^{-3}	5.42×10^{-4}
	深层	5.39×10^{-6}	1.73×10^{-4}	4.68×10^{-4}	1.28×10^{-3}	5.44×10^{-4}
HI	表层	1.82×10^{-3}	2.28×10^{-3}	8.19×10^{-4}	5.40×10^{-2}	9.34×10^{-3}
	中层	1.92×10^{-3}	1.54×10^{-3}	9.00×10^{-4}	5.54×10^{-2}	8.67×10^{-3}
	深层	1.63×10^{-3}	1.38×10^{-3}	9.41×10^{-4}	5.34×10^{-2}	8.70×10^{-3}
$CR_{\text{经口}}$	表层	1.81×10^{-6}	无致癌风险	—	2.37×10^{-5}	无致癌风险
	中层	1.91×10^{-6}		—	2.43×10^{-5}	
	深层	1.62×10^{-6}		—	2.36×10^{-5}	
$CR_{\text{经呼吸}}$	表层	1.67×10^{-10}		2.83×10^{-10}	2.63×10^{-8}	
	中层	1.77×10^{-10}		3.10×10^{-10}	2.70×10^{-8}	
	深层	1.50×10^{-10}		3.25×10^{-10}	2.62×10^{-8}	
$CR_{\text{经皮肤}}$	表层	—		—	5.79×10^{-7}	
	中层	—		—	5.93×10^{-7}	
	深层	—		—	5.76×10^{-7}	
$CR_{\text{总}}$	表层	1.81×10^{-6}		2.83×10^{-10}	2.43×10^{-5}	
	中层	1.91×10^{-6}		3.10×10^{-10}	2.49×10^{-5}	
	深层	1.62×10^{-6}		3.25×10^{-10}	2.42×10^{-5}	

3 结论

1) Hg、As、Pb、Cr(VI)、Cr 在填埋库区周边明显富集, 受人类活动影响密切。Cr(VI)、As、Cd 和 Hg 在高龄的垃圾堆体周边积累明显, 受土壤复杂因素影响表现出了不均匀的空间分布格局, Cd 在高龄垃圾堆体周边、深层的土壤中富集主要与土壤有机质质量分数有关。Pb 在 pH 值 8 左右的弱碱性土壤中, 容易形成性质较稳定的结合态不易淋出, 在垂直方向迁移能力较弱, 浓度变化表现出收缩趋势。Cr 在土壤中主要以稳定态的 Cr(III)存在, 在低地势显著富集而且在新鲜垃圾堆体周边质量分数较高, 垂直迁移能力弱。

2) 填埋库区周边土壤富集的重金属质量分数均未超标, 总体环境相对安全。地累积指数评价结果显示填埋库区周边土壤中, 高龄堆体周边点位的 Cr(VI)、Hg 和 As 属于轻微或轻度污染; 在个别处, Hg 属于中度污染; Pb 和 Cd 属于轻微污染。不同的评价方法所得结果存在差异, 主要由各评价方法自身的局限性所致。

3) 潜在生态风险指数和环境健康风险评价结果表明 Hg 和 Cr(VI) 是主要生态风险贡献因子。随土壤深度增加, Cd 的潜在生态风险指数升高。所有元素中, Pb 的总暴露量最大, 经口摄入量最高, 在填埋场周围的人群应注意降低口摄入风险; As 的致癌风险和非致癌风险最大。因此, Hg、Cr(VI)、As 和 Cd 在垃圾填埋场的污染积累和潜在风险均应引起重视。

参考文献:

- [1] MADON I, DREV D, LIKAR J. Long-Term Risk Assessments Comparing Environmental Performance of Different Types of Sanitary Landfills [J]. *Waste Management*, 2019, 96: 96-107.
- [2] QIU J J, FAN L, ZHANG H, et al. UPLC Orbitrap MS/MS-Based Fingerprints of Dissolved Organic Matter in Waste Leachate Driven by Waste Age [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 383: 121205.
- [3] 张大宇, 邓萌杰, 吴婧. 北方地区采暖季和非采暖季 PM_{2.5} 中金属元素污染特征及来源——以晋城市为例 [J]. *东北农业大学学报*, 2024, 55(8): 261-269.
- [4] 付美云. 垃圾渗滤液中水溶性有机物在土壤中的行为及其环境影响 [D]. 南京: 南京农业大学, 2005.
- [5] 王成文, 许模, 张俊杰, 等. 土壤 pH 和 Eh 对重金属铬(VI)纵向迁移及转化的影响 [J]. *环境工程学报*, 2016, 10(10): 6035-6041.
- [6] 张宪奇, 殷勤, 年跃刚, 等. 北方干旱地区非正规垃圾填埋场堆体特征及环境影响分析 [J]. *环境工程技术学报*, 2021, 11(6): 1210-1216.
- [7] 梁丽琛, 严小飞, 王莉莉, 等. 简易生活垃圾填埋场土壤重金属污染特征及健康风险评价研究 [J/OL]. *环境工程*, 2023: 1-11. (2023-12-19) [2024-04-09]. <https://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2097.x.20231218.0908.006.html>.
- [8] 马仕君, 周传斌, 杨光, 等. 城市生活垃圾填埋场的物质存量特征及其环境影响: 以粤港澳大湾区为例 [J]. *环境科学*, 2019, 40(12): 5593-5603.
- [9] HOSSEINI BEINABAJ S M, HEYDARIYAN H, MOHAMMAD ALEI H, et al. Concentration of Heavy Metals in Leachate, Soil, and Plants in Tehran's Landfill: Investigation of the Effect of Landfill Age on the Intensity of Pollution [J]. *Heliyon*, 2023, 9(1): 13017.
- [10] MULLER G. Index of Geoaccumulation in Sediments of the Rhine River [J]. *GeoJournal*, 1969(2): 108-118.
- [11] 薄录吉, 李冰, 张荣全, 等. 金乡县大蒜产区土壤重金属特征及潜在生态风险评价 [J]. *土壤通报*, 2021, 52(2): 434-442.
- [12] FÖRSTNER U, AHLF W, CALMANO W. Sediment Quality Objectives and Criteria Development in Germany [J]. *Water Science and Technology*, 1993, 28(8/9): 307-316.
- [13] 林丽钦. 应用毒理学安全评价数据推算重金属毒性系数的探讨 [C] //2009 重金属污染监测、风险评价及修复技术高级研讨会论文集. 青岛, 2009: 60-63.
- [14] 马群, 刘铭, 周玉玲, 等. 生物炭与有机无机肥配施对土壤质量的影响 [J]. *西南大学学报(自然科学版)*, 2024, 46(7): 115-126.
- [15] 李海燕, 周慧杰, 周永章, 等. 广西南亚热带耕地土壤有机碳分布特征及其影响因素分析 [J]. *南方农业学报*, 2024, 55(11): 3286-3297.
- [16] 吕润泽, 聂华伦, 白勇, 等. 重庆不同林龄花椒地土壤化学肥力及质量评价 [J]. *西南大学学报(自然科学版)*, 2024, 46(11): 153-164.
- [17] 管孝艳, 王少丽, 高占义, 等. 盐渍化灌区土壤盐分的时空变异特征及其与地下水埋深的关系 [J]. *生态学报*, 2012, 32(4): 198-206.
- [18] 沈亚婷, 张巍, 何霄嘉. 土壤有机质垂直分布特征及其对短期植被更替的响应 [J]. *中国环境科学*, 2024, 44(8): 4520-4529.

[19] 高闻哲, 李廷强. 不同钝化剂对土壤有机碳转化的影响及作用机制研究进展 [J]. 应用生态学报, 2024, 35(8): 2291-2300.

[20] 寇兵, 袁英, 惠坤龙, 等. 垃圾渗滤液中溶解性有机质与重金属络合机制研究现状及展望 [J]. 环境工程技术学报, 2022, 12(3): 851-860.

[21] 梁欣冉, 何丹, 郑翌华, 等. 两种铁改性生物炭对微碱性砷镉污染土壤的修复效果 [J]. 环境科学, 2023, 44(7): 4100-4108.

[22] 蒋起保, 欧阳永棚, 章敬若, 等. 江西省贵溪市水系沉积物重金属污染及其潜在生态风险评价 [J]. 西北地质, 2022, 55(3): 326-334.

[23] 王庆鹤, 颜雄, 蔡深文, 等. 贵州某垃圾填埋场及其附近农田土壤中重金属形态分析和评价 [J]. 环境污染与防治, 2021, 43(6): 741-746.

[24] 陈志涛, 覃仁娟, 李子峰, 等. 上海市桃浦垃圾填埋场封场植被的重金属吸收和积累特征 [J]. 环境工程学报, 2013, 7(12): 5025-5031.

[25] 黄帆, 赵兴敏, 李明堂, 等. 吉林省红旗岭镍矿区重金属赋存形态及生物有效性分析 [J]. 吉林农业大学学报, 2024, 46(1): 131-139.

[26] 安雨丽, 李顺晋, 张育文, 等. 有机肥施用年限对菜地重金属累积迁移的影响 [J]. 西南大学学报(自然科学版), 2022, 44(9): 41-51.

[27] 李思妍, 史高玲, 娄来清, 等. P、Fe 及水分对土壤砷有效性和小麦砷吸收的影响 [J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(3): 415-422.

[28] 张维, 侯孟彬, 伍诗宇, 等. 猪粪源溶解性有机质对锰矿区耕地土壤中镉迁移的影响 [J]. 环境科学研究, 2024, 37(9): 1997-2005.

[29] 崔冬霞, 刘应平, 曾宜君, 等. 蔬菜中 Cd 的积累与土壤环境的相关性分析 [J]. 西南大学学报(自然科学版), 2012, 34(6): 133-137.

[30] 谢正苗, 黄昌勇. 不同价态砷在不同母质土壤中的形态转化及其与土壤性质的关系 [J]. 农业环境科学学报, 1988, 7(5): 21-24.

[31] 王亚婷, 刘庆梅, 李静文, 等. 老工业园土壤六价铬分布、迁移及风险研究 [J]. 环境科学与技术, 2023, 46(S1): 196-202.

[32] 潘俊, 张玉祥, 王昭怡. 滞洪型平原水库底泥中铬的迁移转化 [J]. 环境科学与技术, 2019, 42(S2): 93-97.

[33] 李亚静, 黄庭, 谢哲宇, 等. 非正规垃圾填埋场土壤和地下水重金属污染特征与评价 [J]. 地球与环境, 2019, 47(3): 361-369.

[34] 李政, 滕柯延, 吴晗. 城市垃圾填埋场中汞污染的来源与归趋 [J]. 环境科学与技术, 2018, 41(S1): 311-317.

[35] 段永惠. 污水灌区汞、镉在土壤中的纵向迁移及影响因素研究 [J]. 环境保护, 2004, 32(12): 35-37.

[36] 李昌朕. 重金属离子铅在土壤中的纵向迁移规律研究 [D]. 淄博: 山东理工大学, 2014.

[37] 赵琳兴, 雷红平, 王雁鹤, 等. 黄河上游典型工业园区周边土壤重金属污染评价及来源解析 [J/OL]. (2024-08-20) [2025-03-14]. <https://doi.org/10.13227/j.hjkk.202404210>.

[38] 闫欣荣, 樊旭辉. 多种方法评价城市表层土壤重金属污染的比较研究 [J]. 甘肃农业大学学报, 2013, 48(1): 118-124.

[39] 周长松, 邹胜章, 李录娟, 等. 几种土壤重金属污染评价方法的对比 [J]. 地球与环境, 2015, 43(6): 709-713.

[40] 李鹏辉, 邹晓燕, 楼婕, 等. 不同季节垃圾填埋场周围重金属污染特征及评价 [J]. 环境化学, 2018, 37(1): 41-50.

[41] 张浩, 王洋, 王辉, 等. 某废铅蓄电池炼铅遗留场地土壤重金属污染特征及健康风险评价 [J]. 环境工程技术学报, 2023, 13(2): 769-777.

责任编辑 苏荣艳

包颖