

太湖流域土壤重金属元素污染历史的重建: 以 Pb、Cd 为例

成杭新^{1,2}, 赵传冬², 庄广民², 夏威岚³, 刘英汉², 杨柯², 聂海峰²

1. 北京大学 化学与分子工程学院, 北京 100871
2. 中国地质科学院 地球物理地球化学勘查研究所, 河北 廊坊 065000
3. 中国科学院 南京地理与湖泊研究所, 江苏 南京 210008

Cheng Hangxin^{1,2}, Zhao Chuandong², Zhuang Guangmin², Xia Weilan³, Liu Yinghan², Yang Ke², Nie Haifeng²

1. College of Chemistry and Molecular Engineering, Peking University, Beijing 100871, China
2. Institute of Geophysical and Geochemical Exploration, Chinese Academy of Geological Science, Langfang 065000, China
3. Key Laboratory of Lake Sedimentation and Environment, Nanjing Institute of Geography & Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China

Cheng Hangxin, Zhao Chuandong, Zhuang Guangmin, et al. Reconstruction of the regional soil pollution history by heavy metals in Taihu lake drainage area: taking Pb and Cd as examples. *Earth Science Frontiers*, 2008, 15(5): 167-178

Abstract: The Taihu Lake located at the lower reaches of Yangtze River is a shallow large lake. The Cd and Pb pollution history of sediments of the Taihu Lake and the soils of its intake areas has been reconstructed based on ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb depositional dating at 4 sections representing different depositional environments. The results show that the Cd and Pb concentrations in the lake sediments were roughly equal to that of background level in the intake areas before 1980; while since then the concentrations have become considerably higher, which is just basically corresponding to the industrialization progress there. It is thus inferred that the industrialization has been the main reason for the increase in Cd and Pb concentrations in the lake sediments. The accumulated amounts of Cd and Pb in the lake sediments have been 146 t and 25980 t respectively since 1900, among them 40 t and 6777 t were due to the intake from Tiaoxi river, 36 t and 6023 t from Yili river, and 71 t and 13179 t from other rivers (say Tiao river, Ge river and the Grand Canal), respectively. It is seen that the above mentioned other rivers have been the main sources for the accumulated Cd and Pb in the Taihu Lake. The peak period of the accumulation was 80-90s of the last century. The outputs of Cd and Pb from the Grand Canal have been 28.26 t and 3419 t since 1980, respectively; while the total outputs of Cd and Pb from the basin of Tiao river have been 13.70 t and 1585 t, among them 8.90 t of Cd and 610 t of Pb have been due to human activities, corresponding to 64.96 % and 38.47 % of the total outputs of Cd and Pb respectively. The total outputs of Cd and Pb from the basin of Yili river have been 10.09 t and 1063 t since 1980, respectively, among them 6.96 t of Cd and 500 t of Pb have been due to human activities, corresponding to 68.68 % and

收稿日期: 2007-10-18; 修回日期: 2008-06-17

基金项目: 国家自然科学基金项目(40673066); 国家重点基础研究发展计划“973”项目(G1999045707); 国土资源大调查项目(200420130002, 200414200011)

作者简介: 成杭新(1964—), 男, 博士, 教授级高级工程师, 地球科学与信息技术专业, 从事生态地球化学与地球化学勘查研究。E-mail: hanguxin@vip.sina.com

47.08 % of the total outputs of Cd and Pb respectively. It shows that the accumulation of Cd due to human activity has been over that of natural denudation in the Taihu Lake drainage area. The key measures for improving the environmental quality of the lake sediments should be to decrease the total discharge of Cd and Pb from industrialization progress and to control the outputs of Cd and Pb from the Grand Canal.

Key words: heavy metal pollution; reconstruction of history; regional soil; Taihu lake

摘要:太湖是位于长江下游的一个大型浅水湖泊,通过对4个代表太湖不同沉积环境的湖底沉积剖面的¹³⁷Cs和²¹⁰Pb沉积定年,重建太湖湖底沉积物和太湖来水流域土壤Cd、Pb的污染历史。结果显示:1980年以前,太湖底积物中Cd、Pb含量与流域内的自然背景含量相当,1980年以后,湖底沉积物中的Cd、Pb含量显著增高,这与我国大规模工业化进程的起始时间基本一致,推测工业化进程是湖底沉积物中Cd、Pb含量增加的主要原因。1900年以来太湖湖底沉积物中累积含有Cd和Pb分别为146 t和25 980 t,其中苕溪来水提供的Cd和Pb分别为40 t、6 777 t,宜溧河来水提供的Cd、Pb分别为36 t、6 023 t,其他来水(洮、滬、运河)提供的Cd、Pb分别为71 t、13 179 t,其他来水是太湖Cd、Pd累积的主要输入途径。Cd、Pb累积的高峰期为20世纪80—90年代,1980年以来,运河来水Cd、Pb的输出通量为28.26 t、3 419 t;苕溪流域Cd、Pb的输出总量分别为13.70 t、1 585 t,其中人为源的Cd、Pb为8.90 t、610 t,人为源输出的Cd、Pb通量占总输出量的64.96%和38.47%;宜溧河流域Cd、Pb的输出总量分别为10.09 t、1 063 t,人为源的Cd、Pb分别为6.96 t和500 t,人为源输出的Cd、Pb通量占总输出量的68.68%和47.08%,表明太湖流域人类活动所导致的Cd已超过自然剥蚀过程,因此削减工业化进程中的Cd、Pb排放总量,控制太湖运河来水的输出通量是改善太湖底积物Cd、Pb环境质量的关键措施。

关键词:重金属污染;历史重建;区域土壤;太湖

中图分类号:P595 **文献标识码:**A **文章编号:**1005-2321(2008)05-0167-12

我国正在大规模开展1:25万多目标区域地球化学调查,其实质是对地球表层生态系统进行多元素地球化学填图^[1-3]。区域生态地球化学评价是针对区域地球化学调查发现的、可能影响生态环境安全的重大问题而开展的一项以河流、农田、城市、湖泊湿地及草原等生态系统为主要评价单元,以元素成因来源、迁移途径、生态效应和预测预警为主要内容的研究工作^[3-4]。

湖泊沉积物因能记录流域内元素的自然地质背景及人类活动对环境影响的信息,使它成为重建湖泊汇水流域内土壤环境变化历史的重要途径^[5-8]。因此查明湖泊沉积物中的物质组成、成因来源、输入途径,自然源与人为源分辨的表征方法,重建湖泊及汇水流域内土壤污染的演变历史,预测未来发展趋势已成为湖泊生态系统区域地球化学评价的主要任务之一。

本文以太湖底积物中的Cd、Pb为例,围绕湖泊生态系统区域生态地球化学评价的任务,对如何利用湖底沉积物重建湖泊及汇水流域内土壤污染的历史、自然源与人为源分辨的表征方法进行讨论,目的是为我国其他湖泊生态地球化学评价提供思路和研究案例。

1 太湖及太湖流域自然地理特征

太湖与鄱阳湖、洞庭湖、洪泽湖、巢湖并称为中国5大淡水湖,湖泊面积2 338 km²,平均深度1.89 m,最大深度2.6 m,湖泊总蓄水量44.3×10⁸ m³,为典型浅水湖泊。

太湖流域包括太湖、太湖平原及西部丘陵地区,它地处我国东部长江河口段南侧与钱塘江、杭州湾之间,北靠长江,南接杭州湾,东临东海,西为天目山地与宜溧山地。流域面积约36 500 km²。流域内有上海、杭州、苏州、无锡、常州、嘉兴、湖州等大小城市38座,人口3 337.52万,平均人口密度达917人/km²,工农业产值占全国1/7。

太湖水系大致以太湖为界划分上、下游。北部、南部以无锡的直湖港和吴江县的吴淞港为界,以西河流以入湖为主;以东河流以出湖为主。太湖上游来水包括苕溪、宜溧河水系和洮、滬、运河来水(图1)。太湖入湖水系的多年平均流量为6.33~26.8 m³/s^[9]。

苕溪水系,受水面积6 000 km²,分合溪、东苕溪、西苕溪三条河流,其中东苕溪、西苕溪长分别为165 km和145 km,总流量的70%入太湖。宜溧河

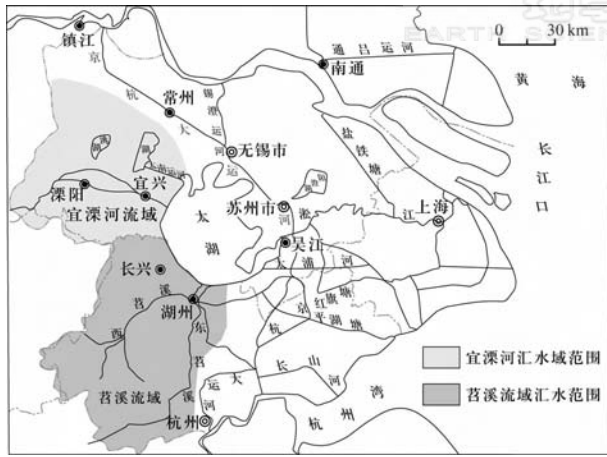


图1 太湖来水和出水水系分布图

Fig.1 Distribution of tributaries input and output of stream around Taihu lake



图2 太湖湖底沉积柱采样位置图

Fig.2 Sampling sites of sediment cores in Taihu lake

水系,受水面积约 6 000 km²,在大浦口附近入太湖。洮、漏、运河来水在总入湖水量中所占比例较小。

太湖出水水系包括运河水系、黄浦江水系,主要分布在太湖的东半部湖岸。京杭大运河的江南段与长江及纵横交错的江河、湖港组成大运河水系,它是长江水系的组成部分。黄浦江水系位于太湖流域的最下游,它承纳吴淞江、澄湖、淀山湖、太浦河及杭嘉湖区东西苕溪的部分来水。历年平均资料显示东太湖的出水量占太湖总出水量的 65%,因此黄浦水系为太湖的主要出水通道。

2 样品采集与分析测试

2.1 样品采集

根据太湖主要来水、出水水系的分布状况,分别在大浦、小梅口、西山、胥口湾附近布置了编号为 TL9、TL11、TL10 和 TL8 等 4 个湖底沉积柱样品。其中 TL9、TL11 分别代表宜溧河流域和苕溪流域太湖来水的沉积环境,TL10 位于太湖湖心区,代表整个太湖的沉积环境,而 TL8 则代表太湖出水口的沉积环境(图 2)。

用沉积物泥心采样器采集湖底沉积柱剖面样,采样管为有机玻璃管,直径 54 mm,长 100 cm。选取沉积物表面平整的柱状样,采用 0.5 cm 或 1 cm 间隔现场进行样品分割。对每个分割样品,称取沉积物的湿重,经自然风干再称取每层沉积物的干重,获得每层沉积物的含水率和干重,并送实验室进行 ²¹⁰Pb、¹³⁷Cs 测定和元素含量分析。

2.2 样品分析

中国科学院南京地理与湖泊研究所沉积与环境开放实验室采用 ORTEC 高纯锗低本底 γ 能谱仪进行沉积物样品的 ¹³⁷Cs 和 ²¹⁰Pb 同位素测年,测试过程中采用中国原子能研究院提供的 ¹³⁷Cs 定年标准样对测试结果进行校正。

采用 1:25 万多目标区域地球化学调查中的配套分析方案,在中国地质科学院地球物理地球化学勘查研究所中心实验室测试 Ag、As、Cd、Hg、Pb、Zn、Cu、Ni、Sn 和 V 等元素^[10]。用国家一级标准物质 GBW07301a、GBW07423、GBW 07309、GBW07310 进行分析质量全程监控。以预先集中抽取密码重复样的分析结果评定分析精密度(RD),以密码插入的同类国家一级标准物质的测试结果检验分析的准确度(RE)。结果显示,分析准确度(RE)为 -1.93%~3.07%,分析精密度(RD)为 3.19%~18.60%(表 1)。

表 1 各元素分析检出限与测试精密度(RD)、准确度(RE)
Table 1 Detection limits, monitoring limits of accuracy and precision

元素	分析方法	检出限	RE/%	RD/%
Ag	ES	20	1.33	18.60
As	AFS	1	-1.93	4.26
Cd	ICP-MS	20	1.65	13.09
Hg	AFS	2	0.74	7.08
Pb	XRF	2	-0.13	6.62
Zn	XRF	2	-0.43	3.19
Cu	XRF	1	0.81	3.47
Ni	XRF	2	3.07	3.50
Sn	ES	1	1.09	9.76
V	XRF	5	0.96	3.18

注:Ag, Cd, Hg 检出限单位为 ng/g;其他为 μ g/g。

3 沉积物沉积速率与地球化学特征

3.1 沉积速率

表 2 示出的是采用 ^{210}Pb 和 ^{137}Cs 同位素定年法测得的太湖不同湖区湖底沉积物的平均沉积速率和沉积年龄。表中表明太湖不同湖区湖底沉积物的平均沉积速率为 0.28~0.41 cm/a, 沉积时间区间为 1864—2002 年, 即为 138 a, 与文献中太湖沉积速率较低的报告基本一致^[11-13]。从沉积柱所在的湖区位置分析, 沉积速率呈现入水口>湖心区>出水口的变化规律, 表明所采集的沉积柱基本未受明显扰动。

表 2 太湖不同湖区底积物平均沉积速率

Table 2 Average rate of sedimentation in different segments of Taihu lake

编号	地理位置	湖区位置	沉积速率 ($\text{cm} \cdot \text{a}^{-1}$)	沉积年限
TL8	胥口湾	太湖南区, 出水口	0.28	1887—2000
TL9	大浦	太湖北区, 入水口	0.41	1855—2002
TL10	西山	太湖南区, 湖心	0.31	1907—2001
TL11	小梅口	太湖南区, 入水口	0.41	1864—2002

3.2 累积通量

图 3 示出的是太湖湖底沉积物时代—累积通量变化图。从图中可以看出, 在 1855 年至 1955 年的 100 a 间, 宜溧河流域(TL9)来水中含砂量较高, 其累积通量介于 277.2~359.2 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 平均累积通量高达 332.5 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$; 1955 年至今 50 a 来累积通量介于 55.6~313.2 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 平均累积通量为 186.1 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 明显小于早期的累积通量。苕溪流域太湖来水(TL11)在 1865—1950 年间的平均累积通量为 252.3 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 小于宜溧河流域; 从 1950 年至 1977

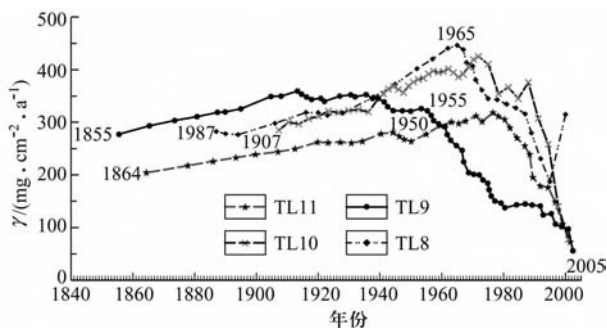


图 3 太湖不同湖区不同时段累积通量变化图

Fig. 3 Change history of accumulation fluxes rate in Taihu lake

年, 累积通量逐年增加, 1977 年达到最高峰, 累积通量为 318.4 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。1977 年以来, 累积通量迅速下降, 到 2002 年已下降到 72.7 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。因此尽管苕溪是太湖的主要来水流域, 但在早期宜溧河流域地表土地的利用程度应高于苕溪流域, 而在 20 世纪 50—70 年代, 也即文化大革命时期, 苕溪流域地表土壤的开垦程度显著提高, 苕溪水系中的含砂量应显著高于宜溧河流域。

湖心沉积柱(TL10)的累积通量显示, 在 1907—1937 年间的 30 a 间, 累积通量变化不大, 累积通量变化区间为 285.3~324.4 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 平均累积通量为 310.6 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。从 1937 年到 1972 年, 累积通量显著增加, 平均速率高达 383.8 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。从 1972 年至今, 累积通量从 424.6 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 下降到 77.5 $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 呈显著下降趋势。TL10 代表的湖心累积通量显示, 在 20 世纪 40—90 年代, 湖心累积通量明显大于宜溧河和苕溪水系来水的累积通量表明, 尽管宜溧河流域和苕溪流域是太湖的主要供水源, 但太湖的其他来水, 尤其是运河来水所携带的泥砂量应远大于宜溧河和苕溪流域的泥砂量。

太湖出水口 TL8 的沉积速率变化模式与湖心区 TL10 的沉积速率变化模式基本一致, 仅在 2000 年以来, 出水口的沉积速率有所回升, 而湖心沉积速率则呈下降趋势。

3.3 地球化学特征

TL11、TL9 湖积物沉积剖面位于太湖西部小梅口和大浦, 它分别记录了苕溪和宜溧河来水水动力条件和物质组成的变化历史, 两者沉积速率均为 0.41 cm/a, 同属太湖沉积速率最快的地区之一。

图 4、5 示出的是 TL11 和 TL9 沉积剖面中 Cd、Pb 元素含量和累积通量分布图。图中显示以 1980 年为界, 可以划分为两个明显不同的时段, 即 1980 年前沉积物中 Cd、Pb 元素含量以背景范围内的正常波动为特征, 1980—2002 年的沉积物中元素含量以显著增高为特征, 1980 年以来沉积物中 Cd、Pb 含量分别比 1980 年前沉积物中增加 2.5~2.6 倍、1.7~1.8 倍(表 3); 无论是 1980 年前还是 1980 年以来, TL9 沉积剖面中的 Cd、Pb 均显著高于 TL11, 表明宜溧河流域的 Cd、Pb 地球化学背景较苕溪流域高。两条沉积剖面中各元素含量-时间变化的协调性证实 TL9、TL11 沉积剖面基本未受扰动。

元素含量的时间变化趋势与我国改革开放、开

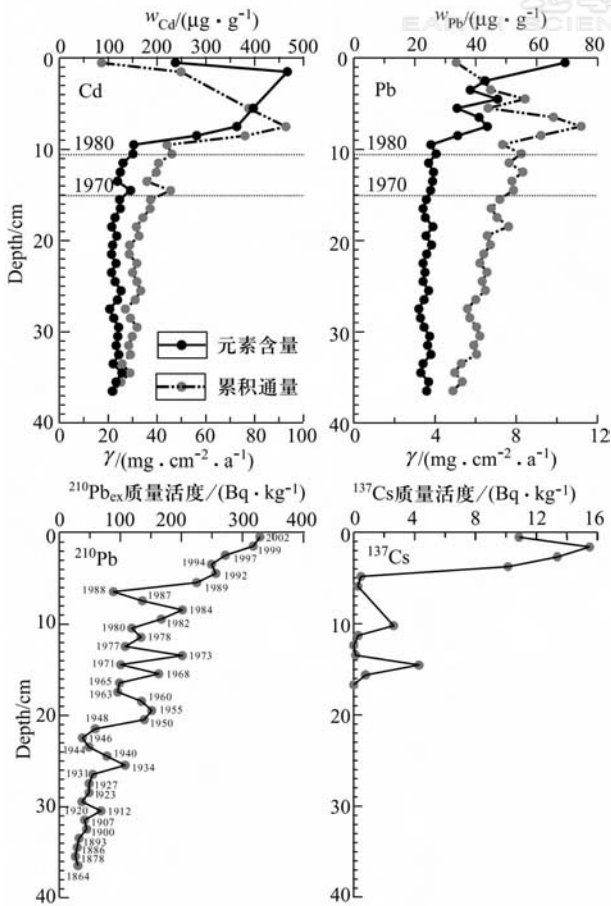


图4 太湖 TL11 沉积剖面沉积物中元素含量与累积通量图

Fig. 4 Contents and accumulations of Cd and Pb in profile of TL11

始大规模工业化进程的时间尺度完全吻合。聚类分析谱系图显示(图6),无论是1980年前($\gamma > 0.487, n = 27, \alpha = 0.01$)还是1980年后($\gamma > 0.735, n = 11, \alpha = 0.01$),TL11沉积剖面沉积物中Cd各自独立成类,而TL9沉积剖面沉积物中Cd、Pb均与常量元素不相关(表4),表明宜溧河和苕溪流域内的Cd、Pb主要为人为源,人类活动应是1980年以来沉积物中Cd、Pb显著增加的主要原因。

TL10沉积剖面位于中心湖区,水动力学条件相对稳定,湖积物沉积速率为0.31 cm/a,明显小于反应太湖来水的TL9、TL11沉积剖面。该沉积剖面一方面受到苕溪、宜溧河流域来水中物质成分的影响,同时也叠加有其他来水(运河)中的物质组成。

湖心沉积剖面(TL10)中Cd、Pb含量-时间曲线显示(图7),1970年前主要为背景范围内的正常起

伏,沉积物中的Cd、Pb峰值浓度始于1970年,前后持续20 a,1990年后开始下降,1970年后沉积物中Cd、Pb平均含量分别337 ng/g和42.6 µg/g,是1970年前沉积物中Cd、Pb含量的2.8倍和1.5倍。与TL9、TL11剖面相对比,TL10较TL9、TL11剖面中Cd、Pb峰值浓度早10 a。表明在20世纪70年代,运河来水是太湖沉积物中Cd、Pb的重要输入源。

TL8沉积剖面代表的是太湖出水处的沉积环境,该剖面沉积物中Cd、Pb含量-时间分布模式与TL9、TL11类似,1980年前主要为背景范围内的波动,1980年以来沉积物中Cd、Pb含量显著增加,但持续时间仅为10 a,1990年后开始迅速下降(图8)。

同一时段TL9、TL11、TL10、TL8沉积物中Cd、Pb含量对比发现,TL8沉积物中Cd、Pb含量明显小于TL9、TL11、TL10。沉积剖面中Cd、Pb元素在含量-时间-空间变化的协调一致性表明TL9、TL11、TL10、TL8沉积剖面受扰动作用不明显。

4 区域土壤重金属污染历史的重建

元素的累积通量是指单位面积内,每年沉积物中元素的重量,通常用 $\text{mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$ 、 $\mu\text{g}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ 或 $\text{ng}/(\text{cm}^2 \cdot \text{a})$ 来表示。由于它与元素浓度、沉积速率成正比,因此在元素含量一定的前提下,它可用作度量沉积物物源区环境条件的变迁,如剥蚀速率、洪水大小、植被发育、气候变迁等条件的变化。当沉积速率一定的前提下,它可用来度量自然地质作用和人类活动强度,区分物源区物质来源的类型(人为源和自然源)。因此元素累积通量,是污染历史重建的基本参数之一。

4.1 Cd、Pb 累积通量特征

各沉积剖面沉积物中Cd、Pb累积通量的变化曲线示于图4、5、7、8,按10 a间隔统计的累积通量变化示于图9。从图中可以看出,从有记录的1900年以来,各沉积剖面中湖积物中Cd、Pb累积通量逐步增高,到20世纪80年代达到高峰,其中湖心沉积剖面 and 出水口沉积剖面中的Cd、Pb累积通量均高于宜溧河和苕溪流域的累积通量,说明尽管宜溧河流域和苕溪流域是太湖的主要来水,但来水中所携带的Cd、Pb总量应小于运河来水,运河来水应是太湖Cd、Pb污染的途径。

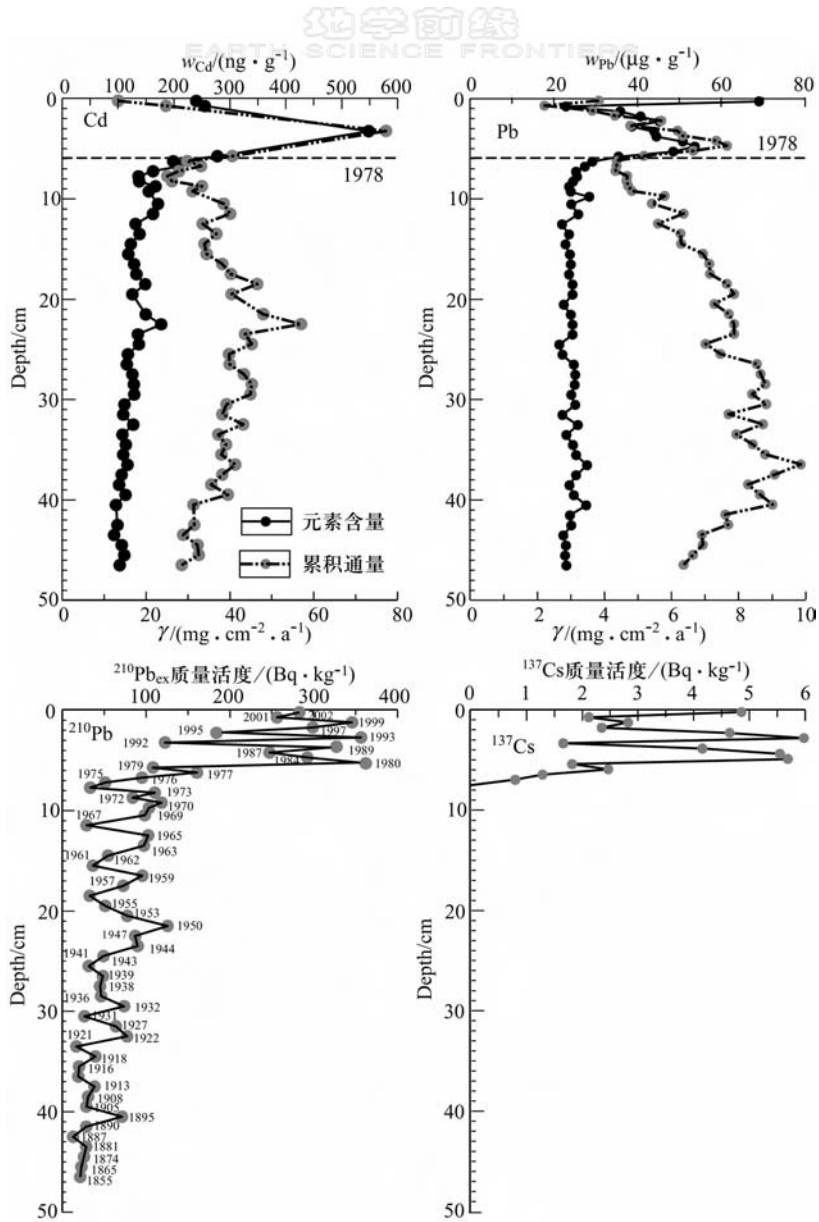


图5 太湖 TL9 沉积剖面沉积物中元素含量与累积通量图
Fig. 5 Contents and accumulations of Cd and Pb in profile of TL9

表3 TL11、TL9、TL8 沉积剖面 1980 年前、后沉积物中 Cd、Pb 含量

Table 3 Cd and Pb contents of sediments in profiles of the TL11, TL9 and TL8

时段	特征值	TL11		TL9		TL8	
		Cd	Pb	Cd	Pb	Cd	Pb
1980 年后	最小值	151	25.3	240	22.9	181	22.3
	最大值	467	69.3	548	69.0	333	40.6
	平均值	293	40.3	348	44.9	281	33.0
	标准离差	122	12.5	174	11.5	55	7.0
1980 年前	最小值	103	21.3	93	21.3	70	19.6
	最大值	146	26.1	278	35.5	145	24.4
	平均值	118	23.9	134	24.7	91	22.0
	标准离差	9	1.3	34	2.3	18	1.4

注: Cd 含量单位为 ng/g; Pb 含量单位为 $\mu\text{g/g}$ 。

表 4 TL9 沉积剖面沉积物中 Cd、Pb 与常量元素相关系数表

Table 4 Correlation coefficients of Cd, Pb and major elements in profile of TL9

元素及氧化物	相关系数 R									
	Cd	Pb	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	FeO
Cd	1									
Pb	0.57	1								
SiO ₂	0.06	-0.26	1							
Al ₂ O ₃	-0.06	0.33	-0.69	1						
Fe ₂ O ₃	-0.18	0.16	-0.80	0.31	1					
MgO	0.02	0.26	-0.95	0.61	0.69	1				
CaO	0.11	0.05	-0.70	0.25	0.37	0.81	1			
Na ₂ O	0.23	0.19	-0.01	-0.48	0.20	0.20	0.24	1		
K ₂ O	-0.16	0.11	-0.87	0.91	0.51	0.81	0.53	-0.35	1	
FeO	-0.28	-0.02	-0.94	0.68	0.76	0.86	0.61	-0.14	0.91	1

注:黑体为 $\alpha=0.01$ 时相关系数,指示显著相关。

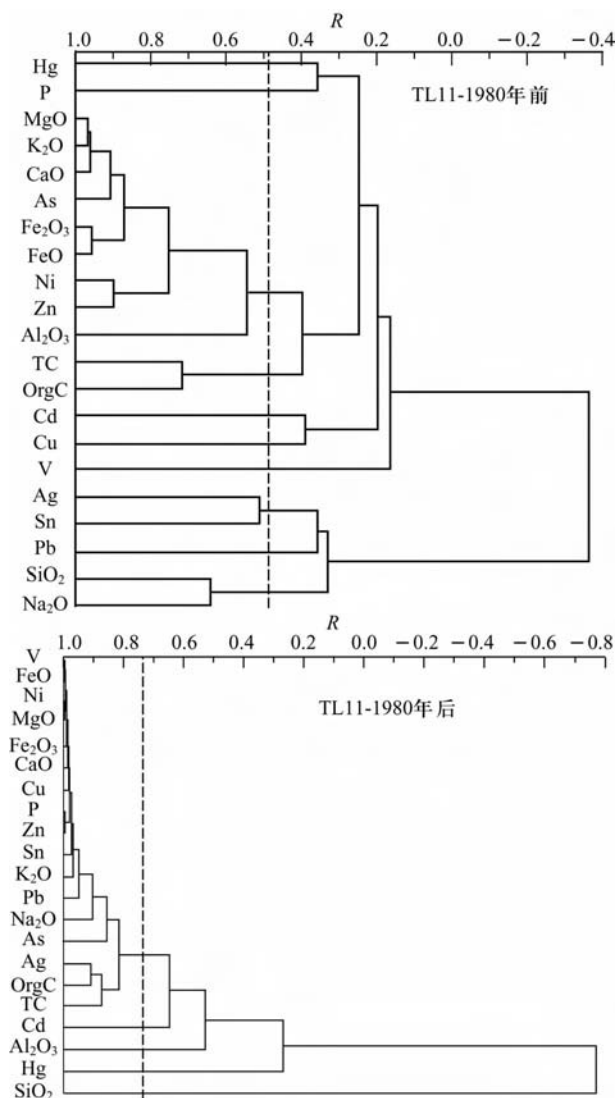


图 6 太湖 TL11 沉积剖面 1980 年前、后元素聚类分析谱系图

Fig. 6 Cluster analysis deposited before and after 1980's in profile of TL11

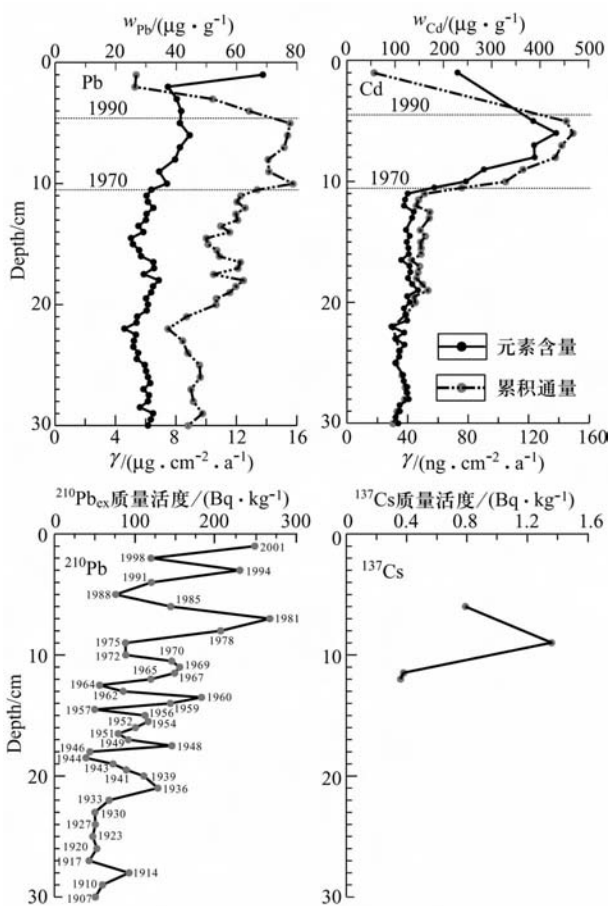


图 7 太湖 TL10 沉积剖面沉积物中元素含量与累积通量图

Fig. 7 Contents and accumulations of Cd and Pb in profile of TL10

4.2 区域土壤 Cd、Pb 污染历史重建

太湖湖水面积 2 338 km²,太湖来水以苕溪和宜溧河水系为主,洮、滬、运河来水为辅。据 1954—1988 年太湖主要入湖水系年平均流量的统计^[9],苕

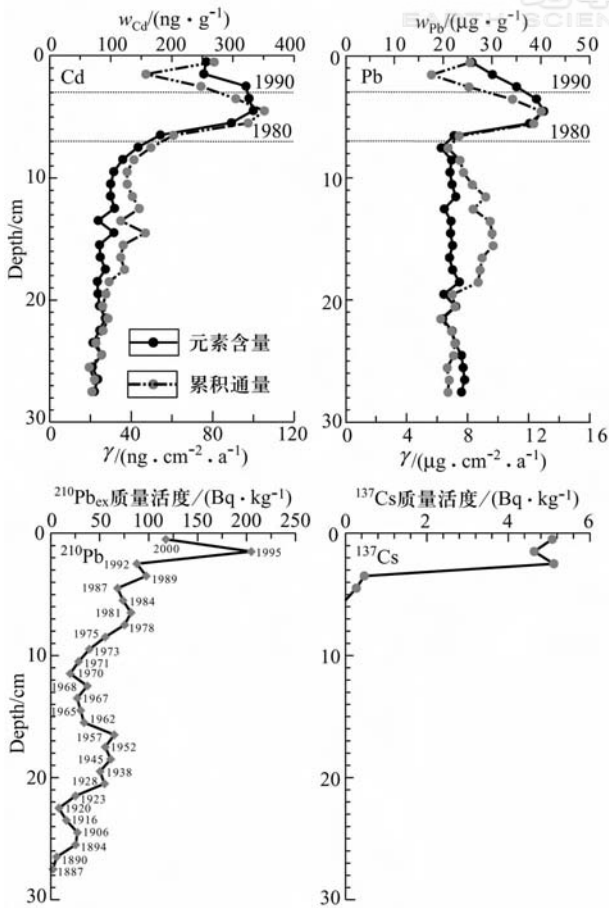


图8 太湖 TL8 沉积剖面沉积物中元素含量与累积通量图

Fig. 8 Contents and accumulations of Cd and Pb in profile of TL8

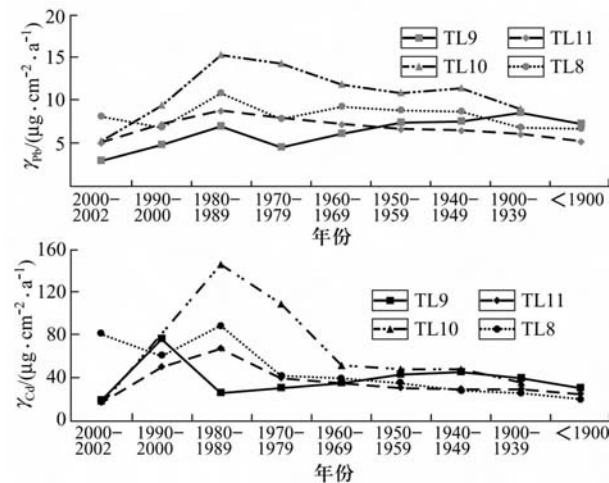


图9 太湖不同时代湖积物中 Cd、Pb 累积通量变化图

Fig. 9 History of accumulation of Cd and Pb in Taihu lake

流域西苕溪、旌几东港的年平均入湖流量分别为 26.8 m³/s、13.8 m³/s;宜溧河流域的长兴港、泆溪河、南仑河、漕桥河的年平均流量分别为 6.33 m³/s、13.5 m³/s、7.02 m³/s、7.10 m³/s,而太滬运河、直湖港的年平均流量分别为 10.2 m³/s、11.9 m³/s,累计入湖年平均流量为 96.65 m³/s,其中苕溪流域来水占 42.01%,宜溧河流域来水占 35.12%,泆、滬、运河来水占 22.87%。据此假设各流域入湖来水的比例即为对太湖底积物贡献的比例,因此苕溪流域、宜溧河流域、运河来水覆盖太湖底积物的面积分别为 982 km²、821 km²、535 km²,则各时段湖底沉积物中的元素累积通量与湖底面积的乘积应等于入湖水系中元素的输出通量。

4.2.1 太湖主要来水的 Cd、Pb 输出通量

TL11、TL9 沉积剖面中的沉积物主要来自苕溪和宜溧河流域,分别记录了各自流域内的物质成分和迁移通量的地球化学信息。因此沉积剖面中不同时段元素的累积通量应分别与流域内的元素输出通量相等。

苕溪和宜溧河流域不同时期 Cd、Pb 的输出通量表明(表 5),1864 年至今,苕溪水系向太湖输出的 Cd、Pb 分别为 48.51 t、8 588 t,宜溧河流域的 Cd、Pb 输出量为 45.46 t、8 828 t。1950 年—2000 年的 50 a 间(即解放以来),苕溪流域 Cd、Pb 的输出通量分别占总输出通量的 51.06%、44.15%,而宜溧河流域 Cd、Pb 的输出通量仅占总输出通量的 42.06%、31.21%,表明 20 世纪 50 年代以来苕溪流域向太湖输入的金属总量相当于解放以前 100 a 的金属输入总量,而解放以来宜溧河流域 Cd、Pb 的输出速率小于解放前。

1980 年以来,苕溪流域 Cd、Pb 的输出通量分别占解放以来输出通量的 57.93%、43.75%,改革开放以来的 22 a(1980—2002 年),苕溪流域 Cd、Pb 的输出通量分别占改革开放前(1950—1980 年)输出通量的 137.72%、77.78%,表明从 20 世纪 80 年代实行改革开放以来,苕溪流域地表土壤中的 Cd、Pb 含量显著增高;而苕溪水系流向太湖的 Cd、Pb 输入总量已明显大于改革开放前 30 a 间的输出总量,表明 20 世纪 80 年代开始的大规模工业化进程所带来的 Cd、Pb 总量已明显超过自然剥蚀过程,应引起高度重视。

尽管宜溧河流域向太湖输出的 Cd、Pb 总量大于苕溪流域,但改革开放以来宜溧河流域向太湖输

表5 不同时期太湖主要来水的 Cd、Pb 输出通量(t)

Table 5 Input flux of Cd and Pb of the major water streams in lake Taihu

时段	苕溪流域		宜溧河流域		太湖		其他来水	
	Cd	Pb	Cd	Pb	Cd	Pb	Cd	Pb
2000—2002	0.51	148	0.47	86	1.25	373	0.27	139
1990—1999	6.99	641	5.38	402	17.37	2 184	5.00	1 141
1980—1989	6.85	870	4.24	575	34.08	3 584	22.99	2 139
1970—1979	3.97	776	2.59	387	25.85	3 354	19.29	2 192
1960—1969	3.44	703	2.91	505	11.82	2 790	5.47	1 583
1950—1959	3.01	654	3.53	614	11.25	2 543	4.71	1 276
1940—1949	2.99	626	3.82	622	11.22	2 684	4.41	1 437
1900—1939	11.76	2 359	13.20	2 833	33.49	8 466	8.53	3 274
1864—1899	8.99	1 811	9.32	2 205				
合计	48.50	8 589	45.46	8 228	146.33	25 980	70.67	13 179
(1950—2002年输出通量/总输出通量)/%	51.06	44.15	42.06	31.21	69.45	57.08		
(1980—2002年输出通量/1950—2002年输出通量)/%	57.93	43.75	52.77	41.39	51.86	41.41		
(1980—2002年输出通量/1950—1980年输出通量)/%	137.72	77.78	111.74	70.61	107.73	70.68		

出的 Cd、Pb 仅占解放以来的 52.77%、41.39%，略小于苕溪流域，说明宜溧河流域较苕溪流域采取了更为有效的环保措施。

4.2.2 人为源 Cd、Pb 的输出通量

大规模工业化前沉积物中的含量可以代表自然含量，因此对沉积物的同位素定年和元素含量的分析即可获得流域内元素的自然地球化学背景^[14]。

TL11、TL9 沉积剖面沉积物中 Cd、Pb 含量-时间分布模式显示 1980 年前沉积物中的元素含量应能代表大规模工业化前苕溪和宜溧河流域内各元素的平均地球化学背景。对 1980 年前沉积物中 Cd、Pb 元素含量的计算(迭代剔除平均值±2 倍标准偏差)，获得苕溪流域内 Cd、Pb 元素的地球化学背景分别为 118 ng/g、24.0 μg/g，宜溧河流域内 Cd、Pb 的地球化学背景分别为 134 ng/g、24.1 μg/g。1980 年后湖底沉积物中元素含量显著增加应是人类源所贡献，两者之差即为人类活动强度的表征。

苕溪和宜溧河流域人为源的 Cd、Pb 输出通量示于表 6。表中表明 20 世纪 80 年代以来，苕溪流域人为源的 Cd 已接近或超出总输出量的 50%；进入 21 世纪以来人为源的 Pb 占总输出通量的 62.59%，表明苕溪流域的大规模工业化进程导致的 Cd、Pb 输出通量已超过自然地质作用，且元素种类已由单一的 Cd 污染发展到 Cd、Pb 复合污染。宜溧河水系在 20 世纪 90 年代，人为源 Cd 占总输出量的 75.65%，推测在 20 世纪 90 年代流域内以 Cd 含量较高的工业结构为主，而 2000 年以来，工业结构开始调整，人为源的 Cd 显著下降。

对比苕溪水系和宜溧河流域 1980 年以来 Cd、Pb 的总输出通量不难看出，宜溧河流域 Cd、Pb 的总输出通量小于苕溪流域，苕溪流域人为源的 Cd、Pb 输出通量也大于宜溧河流域，表明苕溪流域对太湖 Cd、Pb 累积的贡献明显大于宜溧河流域。

表6 太湖苕溪和宜溧河流域人为源的 Cd、Pb 输出通量

Table 6 Output flux of Cd and Pb in Tiaoxi and Yilihe catchments area

时段	特征	苕溪流域		宜溧河流域	
		Cd	Pb	Cd	Pb
2000—2002	总输出量/t	0.51	148	0.47	86
	人为源输出量/t	0.24	93	0.21	41
	人为源贡献/%	47.06	62.59	44.68	47.54
1990—2000	总输出量/t	6.99	641	5.38	402
	人为源输出量/t	4.99	270	4.07	165
	人为源贡献/%	71.39	44.08	75.65	41.09
1980—1990	总输出量/t	6.85	870	4.24	575
	人为源输出量/t	3.67	248	2.68	294
	人为源贡献/%	53.58	28.46	63.21	51.19

4.2.3 太湖沉积物中 Cd、Pb 累积通量

TL10 沉积剖面全面记录了太湖各历史时期 Cd、Pb 累积通量变化的详细信息。从 1900 年至今，太湖湖底沉积物累积的 Cd、Pb 分别为 146.33 t 和 25 980 t(表 5)，其中解放后 Cd、Pb 的累积通量占总累积通量的 50%~70%。

太湖底积物中 Cd、Pb 的累积总量两倍于苕溪和宜溧河流域输入太湖的 Cd、Pb 总量，表明虽然苕溪和宜溧河流域是太湖的主要来水，但太湖的运河来水对太湖 Cd、Pb 的累积具有重要的作用。

4.2.4 太湖其他来水的 Cd、Pb 输出通量

苕溪和宜溧河水系是太湖的主要入湖水系, 洮、滬、运河来水次之, 因此在获得整个太湖不同时段沉积物中金属累积量后, 则其他水系来水输入太湖的重金属通量 = 太湖总累积通量 - (苕溪输入通量 + 宜溧河输入通量), 据此可获得不同时段洮、滬、运河来水输入太湖的 Cd、Pb 通量(表 5)。从表中可以明显看出, 太湖运河来水输入太湖的 Cd、Pb 总量超过苕溪和宜溧河流域输入总量之和, 进一步证明运河来水是太湖 Cd、Pb 累积的主要途径。

4.2.5 湖底沉积物及汇水流域土壤 Cd、Pb 的污染历史

据太湖苕溪、宜溧河水系及其他(洮、滬、运河)来水的重金属输出通量及太湖湖底沉积物 1900 年以来累积的 Cd、Pb 总量, 按 10 年尺度重建太湖湖底沉积物及汇水流域土壤 Cd、Pb 污染的历史(图 10)。图中显示, 从 1900 年至 1970 年, 无论是太湖底积物, 还是各来水的输入通量, Cd 均呈小幅增加趋势, 但从 20 世纪 70 年代, 底积物中 Cd 累积通量迅速增加, 到 20 世纪 80 年代达到高峰, 2000 年后开始迅速下降。

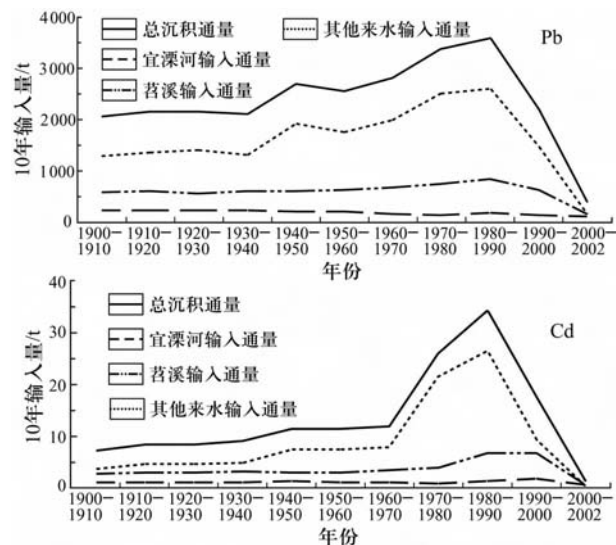


图 10 太湖及汇水流域不同时代 Cd、Pb 污染历史

Fig. 10 History of Cd and Pb accumulation in sediments in Taihu lake and its tributaries

对比苕溪、宜溧河水系及其他(洮、滬、运河)来水中 Cd 的输出通量, 洮、滬、运河水系的输出通量明显高于苕溪、宜溧河水系, 因此洮、滬、运河是太湖 Cd 累积的主要输入水系。

太湖底积物中 Pb 的显著累积起始于 20 世纪 30 年代, 到 20 世纪 80 年代达到高峰, 它的演变趋势与洮、滬、运河中 Pb 的输入通量趋势一致, 与苕溪、宜溧河水系中 Pb 输入通量比较, 洮、滬、运河水系中的 Pb 输入通量显著高于苕溪、宜溧河水系, 说明洮、滬、运河也是导致太湖 Pb 累积的主要输入水系。

5 结论与讨论

20 世纪 80 年代太湖湖底沉积物中的重金属累积的分布曾进行过较全面的调查^[9,14-15]; 2000 年前后的研究发现太湖沉积物存在重金属污染^[13,16-20]; 2003 年江苏地调院采用 1 样/4 km² 的密度, 对整个太湖的湖底沉积物进行了系统调查, 全面查明太湖底积物中重金属元素累积的分布状况^[21]; 且朱广伟等(2005)利用同位素测年技术对太湖近代沉积物中重金属元素的累积状况进行了定性研究^[13], 但迄今为止文献中还未见从定量和流域角度研究太湖及汇水流域内土壤污染历史的报道, 通过本项研究获得下列初步结论。

湖区不同位置沉积剖面中元素含量-时间变化的协调一致性证明, 所采集的沉积剖面基本未受扰动, 平均沉积速率为 0.28~0.41 cm/a, 沉积年龄区间为 1864—2002 年。

1980 年前, 太湖底积物中 Cd、Pb 含量与流域内的自然背景含量相当, 其中苕溪流域内 Cd、Pb 的背景值分别为 118 ng/g、24.0 μg/g, 宜溧河流域内 Cd、Pb 的地球化学背景分别为 134 ng/g、24.1 μg/g。1980 年以来, 湖底沉积物中的 Cd、Pb 含量显著增高, 工业化进程是湖底沉积物中 Cd、Pb 含量增加的主要原因。

1900 年以来太湖湖底沉积物中累积含有 Cd 和 Pb 分别为 146.33 t 和 25 980 t, 其中苕溪来水提供的 Cd 和 Pb 分别为 39.52 t、6 777 t, 宜溧河来水提供的 Cd、Pb 分别为 36.14 t、6 024 t, 其他来水(洮、滬、运河)提供的 Cd、Pb 分别为 70.67 t、13 181 t, 表明其他来水是太湖 Cd、Pd 累积的主要输入途径。

Cd、Pb 累积的高峰期为 20 世纪 80—90 年代, 1980 年以来, 运河来水 Cd、Pb 的输出通量为 28.26 t、3 419 t; 苕溪流域 Cd、Pb 的输出总量分别为 14.35 t、1 659 t, 其中人为源的 Cd、Pb 为 8.90 t、

610 t,人为源输出的 Cd、Pb 通量占总输出量的 62.02%和 36.77%;宜溧河流域 Cd、Pb 的输出总量分别为 10.09 t、1 063 t,人为源的 Cd、Pb 分别 6.96 t 和 500 t,人为源输出的 Cd、Pb 通量占总输出量的 68.99%和 47.08%,表明太湖流域人类活动所导致的 Cd 已超过自然剥蚀过程,因此削减工业化进程中的 Cd、Pb 排放总量,控制太湖运河来水的输出通量是改善太湖底积物 Cd、Pb 环境质量的 key 措施。

野外采样过程中得到廖启林博士的大力支持,在此表示感谢。

References:

- [1] Cheng H X, Yang Z F, Zhao C D, et al. Early warning on regional ecological geochemistry: problems and discussions [J]. *Earth Science Frontiers*, 2004, 11(2): 608-615(in Chinese).
- [2] Xie X J. Multi-purpose geochemical mapping: a new national geological survey project in China (Foreword)[J]. *Geological Bulletin of China*, 2005, 24(8): 688(in Chinese).
- [3] Xi X H. Ecological geochemistry and assessment of ecological geochemistry[J]. *Geophysical and Geochemical Exploration*, 2004, 28(1): 7-15(in Chinese).
- [4] Yang Z F, Xi X H, Cheng H X, et al. The core and countermeasures of regional ecological geochemical assessment[J]. *Quaternary Sciences*, 2005, 25(3): 275-284(in Chinese).
- [5] Balogh S J, Engstrom D R, Almendinger J E, et al. History of mercury loading in the Upper Mississippi river reconstructed from the sediments of lake Pepin[J]. *Environ Sci Technol*, 1999, 33: 3297-3302.
- [6] Shotyk W, Goodsite M E, Roos-Barracough F, et al. Anthropogenic contributions to atmospheric Hg, Pb and As accumulation recorded by peat cores from southern Greenland and Denmark dated using the ^{14}C "bomb pulse curve"[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2003, 67(21): 3991-4011.
- [7] Gunten V H R, Sturm M, Moser R N. 200-years record of metals in lake sediments and nature background concentrations[J]. *Environ Sci Technol*, 1997, 31: 2193-2197.
- [8] Gao N, Armatas G, Shanley J B, et al. Mass balance assessment for mercury in lake Champlain[J]. *Environ Sci Technol*, 2006, 40: 82-89.
- [9] Sun S C, Huang Y P. *Lake Taihu*[M]. Beijing: China Ocean Press, 1993: 23-89(in Chinese).
- [10] Zhang Q. A complete set of analytical schemes and analytical data monitoring systems for determinations of 54 components in multi-purpose geochemical mapping[J]. *Quaternary Sci-*

- ences*, 2005, 25(3): 292-297(in Chinese).
- [11] Wang J, Chen X, Zhu X H, et al. Taihu Lake, lower Yangtze drainage basin: evolution, sedimentation rate and the sea level[J]. *Geomorphology*, 2001, 41: 183-193.
- [12] Liu E F, Shen J, Zhu Y X. Geochemical records and comparative study of sediments in the Western Taihu lake[J]. *Scientia Geographica Sinica*, 2005, 25(1): 102-107(in Chinese).
- [13] Zhu G W, Qin B Q, Gao G, et al. Accumulation characteristic of heavy metals in the sediments of Taihu lake, China[J]. *Journal of Lake Sciences*, 2005, 17(2): 143-150(in Chinese).
- [14] Antonio C G, Ricardo P. Heavy metal sedimentary record in a Galician Ria (NW Spain): background values and recent contamination [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2003, 46: 1253-1262.
- [15] Department of Environmental Protection, Shanghai Normal College; Bureau of Wuxi Environmental Protection. Investigation for environmental quality of Taihu lake[J]. *Journal of Shanghai Normal College: Natural Science Edition*, 1983 (Suppl): 95-115(in Chinese).
- [16] Yuan X Y, Chen J, Ji J F, et al. Characteristics and environmental changes of pollution elements in Taihu sediments and soils near the lake[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 2002, 20(3): 427-434(in Chinese).
- [17] Fan C X, Zhu Y X, Ji Z J, et al. Characteristics of the pollution of heavy metals in the sediments of Yilihe River, Taihu basin[J]. *Journal of Lake Science*, 2002, 14(3): 235-241(in Chinese).
- [18] Dai X L, Sun C. The Characteristics of heavy metals distribution and pollution in sediment from lake Taihu[J]. *Shanghai Environmental Sciences*, 2001, 20(2): 71-74(in Chinese).
- [19] Shi J Z, Liu G Y. The heavy metal pollution and ecological risk assessment of sediment in the Taihu lake[J]. *The Administration and Technique of Environmental Monitoring*, 2001, 13(3): 24-25(in Chinese).
- [20] Wang X C, Yan W D, An Z, et al. Status of trace elements in paddy soil and sediment in Taihu Lake region[J]. *Chemosphere*, 2003, 50: 707-710.
- [21] Liao Q L, Huang S S, Fan D F, et al. Vertical distribution in lake sediments and soils and partition within paddy for relevant trace elements: preliminary testing results from eco-geochemical survey in Jiangsu[J]. *Quaternary Sciences*, 2005, 25(3): 331-339(in Chinese).

参考文献:

- [1] 成杭新,杨忠芳,赵传冬,等. 区域生态地球化学预警: 问题与讨论[J]. *地学前缘*, 2004, 11(2): 608-615.

- [2] 谢学锦. 多目标地球化学填图: 一个可能获得重大原始创新的地质大调查项目(代序言)[J]. 地质通报, 2005, 24(8): 688.
- [3] 奚小环. 生态地球化学与生态地球化学评价[J]. 物探与化探, 2004, 28(1): 7-15.
- [4] 杨忠芳, 奚小环, 成杭新, 等. 区域生态地球化学评价核心与对策[J]. 第四纪研究, 2005, 25(3): 275-284.
- [9] 孙顺才, 黄漪平. 太湖[M]. 北京: 海洋出版社, 1993: 23-89.
- [10] 张勤. 多目标地球化学填图中的 54 种指标配套分析方案和分析质量监控系统[J]. 第四纪研究, 2005, 25(3): 292-297.
- [12] 刘恩峰, 沈吉, 朱育新. 西太湖沉积物污染的地球化学记录及对比研究[J]. 地理科学, 2005, 25(1): 102-107.
- [13] 朱广伟, 秦伯强, 高光, 等. 太湖近代沉积物中重金属元素的累积[J]. 湖泊科学, 2005, 17(2): 143-150.
- [15] 上海师范学院环境保护研究室, 江苏省无锡市环境保护局. 太湖环境质量调查研究[J]. 上海师范学院学报: 自然科学版, 1983(增刊): 95-115.
- [16] 袁旭音, 陈骏, 季峻峰, 等. 太湖沉积物和湖岸土壤的污染元素特征及环境变化效应[J]. 沉积学报, 2002, 20(3): 427-434.
- [17] 范成新, 朱育新, 吉志军, 等. 太湖宜溧河水系沉积物的重金属污染特征[J]. 湖泊科学, 2002, 14(3): 235-241.
- [18] 戴秀丽, 孙成. 太湖沉积物中重金属污染状况及分布特征探讨[J]. 上海环境科技, 2001, 20(2): 71-74.
- [19] 石浚哲, 刘光玉. 太湖沉积物重金属污染及生态风险性评价[J]. 环境监测管理与技术, 2001, 13(3): 24-25.
- [21] 廖启林, 黄顺生, 范迪富, 等. 微量元素在湖积物、土壤的垂直分布与稻谷中的分配[J]. 第四纪研究, 2005, 25(3): 331-339.