中国农业大学学报 2024,29(2):47-57
Journal of China Agricultural University http://zgnydxxb.ijournals.cn

黄亚捷,崔艳智,周岩,李君超,卞华锋,刘海东. 土壤重金属混合样采样数目和空间变异耦合规律研究进展[J]. 中国农业大学学报,2024,29(02):47-57.
HUANG Yajie, CUI Yanzhi, ZHOU Yan, LI Junchao, BIAN Huafeng, LIU Haidong. Research progress on coupling regularity between composite sampling numbers and spatial variations of soil heavy metals[J]. *Journal of China Agricultural University*, 2024, 29(02):47-57.
DOI: 10.11841/j.issn.1007-4333.2024.02.05

土壤重金属混合样采样数目和空间变异耦合规律研究进展

黄亚捷 崔艳智 周 岩 李君超 卞华锋 刘海东*
(生态环境部 环境发展中心,北京 100029)

摘 要 土壤重金属合理采样数目确定和空间变异特征分析是进行土壤重金属相关研究工作的前提和基础,为评估土壤重金属混合样采样数目和空间变异研究进展,通过广泛查阅国内外相关文献,对土壤重金属混合样本数、混合样分样点数目、组间及组内误差与空间变异耦合规律现状及未来研究方向进行了评述。结果表明:目前,已有研究只关注于已知变异单元内正态分布下混合样采样数目的确定,对于已提出的偏态分布下合理采样数目确定方法,均存在着采样数目高估或者低估现象,而且只关注于混合样点合理采样数目确定方法研究;针对不同的误差控制需求、正态或偏态分布、已知或未知变异单元,确定土壤重金属混合样本数及混合样分样点数目方法研究尚未开展;对于采样数据符合偏态或正态分布下,增加土壤混合样、混合样分样点数目与组间误差、组内误差降低趋势关系拐点尚不清楚;土壤重金属混合样本及混合样分样点数目与空间变异耦合规律也尚不明确。因此,识别增加土壤混合样、混合样分样点数目与组间误差、组内误差降低趋势关系的拐点,优化土壤重金属混合样本数、混合样分样点数与土壤重金属总体采样数目的关系,结合空间变异预测模型,构建样本量计算和空间变异识别的耦合模型,揭示土壤重金属混合样本数及混合样分点数与空间变异耦合规律是未来土壤重金属采样数据质量提高及田间采样决策的关键。

关键词 土壤重金属; 空间变异; 采样数目; 耦合规律; 模型
中图分类号 X53 **文章编号** 1007-4333(2024)02-0047-11 **文献标志码** A

Research progress on coupling regularity between composite sampling numbers and spatial variations of soil heavy metals

HUANG Yajie, CUI Yanzhi, ZHOU Yan, LI Junchao, BIAN Huafeng, LIU Haidong*
(Environmental Development Center of the Ministry of Ecology and Environment, Beijing 100029, China)

Abstract Determining the optimum sampling numbers and analyzing spatial variation characteristics of heavy metals in soil are the premise and foundation for the survey of heavy metals in soil. This study aims to assess the research of sampling numbers and spatial variation of heavy metals in soil. Based on extensive search of relevant literature published in recent years, the current situations of the coupling regularity among the sampling number (i. e. increments and composite samples), errors (i. e. within-errors and between-errors), and spatial variation for the survey of soil heavy metals are reviewed and future research issues are discussed in the this study. The results showed that: Previous researches were more focused on determining the numbers of composite samples by statistics under a normal distribution in the units with known variations. The methods under the log-normal distribution always overestimated or underestimated

收稿日期: 2023-07-03
基金项目: 生态环境部环境发展中心科技发展基金项目(RZXJJ-20227)
第一作者: 黄亚捷(0000-0002-8313-7066),博士,高级工程师,主要从事环境污染监测与治理研究,E-mail:1060410517@qq.com
通讯作者: 刘海东(0009-0006-0951-0041),正高级工程师,主要从事从事环境管理与规划、农业农村环境政策、环境影响评价等研究,E-mail:liuhaidong@edcmep.org.cn

the optimum sampling numbers, and only estimated the number of composite samples. Based on different scenarios, such as different errors, normal or skewed distributions, known or unknown variations, it was not clear how to determine the optimum numbers of increments and composite samples. The trend inflection points of the relationship between increasing the number of increments and composite samples, and the decreasing of within-errors and between-errors were not clear. The coupling regularity among the number of increments, composite samples, and spatial variation of heavy metals in soil were not clear. It was concluded that exploring the aforementioned trend inflection point, and thus optimizing the relationship among increments, composite samples and overall sampling numbers of soil heavy metals were crucially important. Combined with the prediction models of spatial variation, establishing the coupled model of sampling numbers and spatial variation to reveal the coupling regularity of increments, composite samples and spatial variation could provide theoretical support to improving the data quality and making field sampling decisions of soil heavy metal.

Keywords soil heavy metals; spatial variation; sampling numbers; coupling regularity; model

调查农田土壤重金属污染程度是土壤污染风险评估和保障农产品安全的前提和基础[1]。农田土壤重金属调查离不开合理采样点数目确定及空间变异规律监测[2]。已有研究表明,相比于土壤有机质、氮等土壤养分的田间采样设计,土壤重金属在污染区域样点浓度往往显著高于周围样点,导致了具有高的空间变异性和潜在污染风险[3],且采样数据多数情况下符合偏态分布,对于采样点离群值进行剔除会导致一些污染样点被人为删除,从而影响农田土壤重金属污染评估结果。受制于采样强度、分析成本和研究结果精度等因素限制,进行大规模的土壤重金属密集田间采样需要考虑现实性和必要性。如何有效控制误差、合理确定农田土壤重金属采样数目及空间变异规律监测始终是研究者和环境管理者关注的一个重点和难点问题。因此,为了更加清楚地认识表层土壤重金属采样数目、采样误差及空间变异的关系,推动土壤重金属采样研究的发展,本研究从土壤重金属采样数目与空间变异研究现状、确定方法以及未来方向进行评述。

1 土壤重金属混合样采样数目与空间变异耦合规律研究现状

土壤重金属采样的最终目的是能够获得代表一定范围内目标污染物平均浓度的准确估计。在确定土壤重金属采样时,采样单元的定义至关重要,不同的土壤采样单元定义直接影响土壤采样区域面积及采样数目的确定。基于前期研究[2],最终确定本研究的采样单元为具有相同的主要污染元素,相似的土壤污染程度及变异程度(CV≤100%)的农业土壤污染单元定义为本研究的决策单元。土壤重金属采样环节包括现场土壤样品的采集、室内样品的制备以及实验室样品分析各个环节都会产生误差(表1),然而不同环节产生的误差对总误差的贡献各不相同。已有研究表明,田间采样误差远大于实验室制样误差及实验室分析误差[4]。在田间采样时,土壤采样变异按照混合样品及混合样分样点的采集可以分为多个混合样品之间的变异(外部变异)、小面积范围内采集各个分样点形成一个混合样时的变异(内部变异)[5-6]。以此为基础,混合样品及混合样分样点的采集误差可以划分为组间误差与组内误差(图1)。目前,对于采样单元内农田土壤混合样、混合样分样点数目与采样组间误差、组内误差以及空间变异的定量关系尚不明确。当土壤混合样、混合样分样点数目继续增加,采样误差降低趋势不明显,出现样本量冗余现象,此时的采样数目即为合理采样数目出现的拐点。然而,对于采样数据符合偏态或正态分布下,增加土壤混合样、混合样分样点数目与组间误差、组内误差的关系拐点尚不清楚,这直接影响了土壤重金属采样数据质量提升和采样成本的降低。

已有研究证实,土壤重金属的表层采样多集中为0~20 cm[7-10],如黄亚捷等通过文献搜索方法总结归纳表层土壤重金属的采样数目等相关研究案例222个[2]。因此,本研究主要关注表层土壤重金属采样。我国现行土壤采样相关技术规范对于表层土壤重金属采样主要采用离散采样方法或分样点数较少的多点混合采样。欧洲国家针对土壤污染物采样也多是基于田间的混合采样(表2)[11]。已有研究证实在田间采样时混合采样方法相比较于离散采样方法能获得更佳的预测精度[12]。混合采

表 1　土壤重金属采样误差分类

Table 1　Classification of sampling error of soil heavy metals

采样误差 Sampling error	原因 Reason	描述 Description	控制手段 Control measure
基础误差 Fundamental error	组成异质性	由颗粒大小和成分分布引起的误差	增加样品的质量，减少最大颗粒
分组和分割误差 Grouping and segmentation error	分布异质性	不均匀颗粒的分布引起的误差	增加样品的数量或提升采样质量
远距离不均匀波动误差 Long distance uneven fluctuation error	大范围的异质性	浓度在空间和实践上的变化产生的误差	减少样本之间的空间间隔
期间不均匀波动误差 Period uneven fluctuation error	周期性的异质性	由于浓度随时间的周期性变化而产生的误差	改变样本之间的空间和时间间隔
增加分界误差 Increased demarcation boundary error	样本增量几何	由增量样本的形状引起的误差	选择一个采样计划设计和设备，对感兴趣的土壤单元的代表性部分进行采样
增加抽样误差 Incremental sampling error	采样装置形状	样本增量形状导致的误差	根据尺寸或形状选择采样设备，并采用适当的采样方案
制样误差 Preparation error	抽样处理	样品处理和分析准备过程中成分的损失或增加	使用适当的样品处理，保存，运输和制备方案
分析误差 Analytical error	前处理和分析	由样品的前处理和实验室测定引起的误差	规范前处理和测定等操作

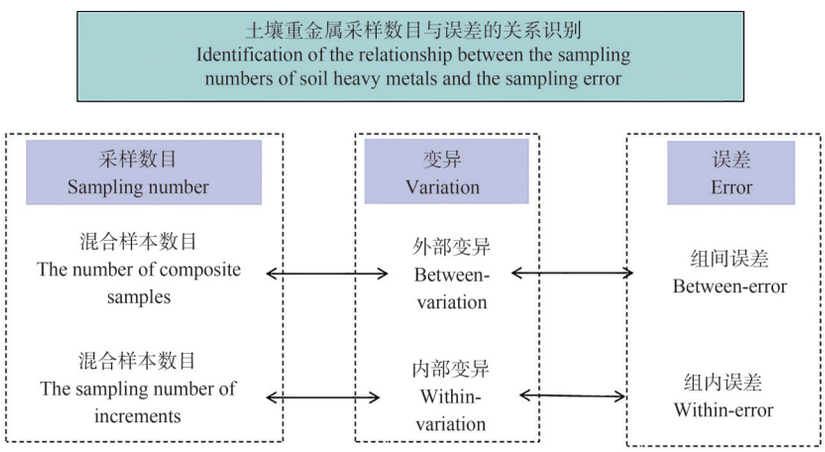

图 1　土壤重金属采样数目、误差及空间变异关系

Fig. 1　Relationship of sampling number, error and spatial variation of heavy metals in soil

样中，综合采样数目（总体采样数目）不仅需要确定混合样本数目，还需确定究竟多少个分样点形成一个混合样，如混合样本数目为50个，5个分样点形成一个混合样，那么综合采样数目（总体采样数目）为250个。按照农田采样阶段来划分，一般分为初步调查采样及加密采样调查2个阶段[13-14]。初步调查采样主要用于初步评估农田土壤污染程度。加密采样调查是在初步调查基础上，通过地统计学等方法对潜在的污染区域增加采样点，用于优化采样数目，以便获得满足风险评估及土壤污染修复所需的

表2 欧洲国家采样单元内土壤污染物的采样策略

Table 2 Sampling strategy of soil pollution in the sampling unit in European countries

国家 Country	采样方法 Sampling method	田间混合 Mixing in the field	实验室混合 Mixing in the lab	采样密度/hm^2 Sampling density	采样单元面积/m^2 Sampling area
奥地利 Austria	混合采样方法	是		25	10 000
比利时 Belgium	离散采样方法		是		
丹麦 Denmark	混合采样方法	是			
法国 France	混合采样方法	是	是		
芬兰 Finland	混合采样方法			89及500	400～900
德国 Germany	混合采样方法	是	是	114	2 500
希腊 Greece	混合采样方法	是		6～15	变化的
意大利 Italy	混合采样方法	是		2～5	10 000
卢森堡 Luxembourg	离散采样方法		是	2～3	变化的
荷兰 Netherlands	混合采样方法	否	是	3～4	10 000
葡萄牙 Portugal	混合采样方法	是		144	625
西班牙 Spain	混合采样方法		是	1 600	100
瑞士 Switzerland	混合采样方法	否	是	20	变化的
英国 UK	混合采样方法			114	2 500

参数。在初步采样调查、摸清污染物总体浓度时，基于不同的误差控制要求、空间变异特征，综合确定土壤重金属混合样及混合分样点数目的研究目前尚未开展。

农田土壤重金属调查及修复等工作不仅需要掌握区域内总体浓度情况，还需摸清土壤重金属空间变异特征。土壤重金属田间采样点是离散和有限的，需要结合模型模拟预测与制图反映空间变异信息。不同混合样点数目及混合样分样点数目对土壤重金属空间变异及总体空间预测具有交互的影响，样本数和空间变异存在一定的耦合规律。已有研究多是在已知变异的单一情景下，先基于经典统计学公式计算出样本采样数目，再采用空间变异预测模型优化样本量[15]。而且更多关注的是混合样点数目的优化，缺少混合样点数目、混合样分样点数目对整体样点数目及空间变异特征的影响分析。对于土壤混合样、混合样分样点数目增加与组间误差、组内误差降低关系拐点尚不清楚。对于多种情景下，包括已知或未知变异单元、高低误差控制要求、正态或偏态分布，探讨土壤重金属采样数目（混合样点数及混合样分样点数）和空间变异耦合规律研究目前尚未开展。

1.1 土壤重金属混合样采样数目与组间误差研究

土壤田间采集样本的变异可以分为样本内部变异和样本间外部变异[5-6]，土壤田间采样误差可以分为样本组内误差及组间误差[16]。在确定土壤混合样合理采样数目时，主要是考虑土壤重金属样本组间误差；在确定土壤混合样分样点合理采样数目时，主要是评估样本组内误差。基于不同情景，包括已知或未知变异单元、正态及偏态分布，以往研究提出了土壤重金属混合样采样数目确定方法（图2）。

1.1.1 已知变异单元内正态分布下混合样采样数目确定方法研究

考虑不同的误差控制要求及变异情况，经典统计学是最为常用的土壤采样单元内的重金属采样数目确定方法[17-18]。该方法是将研究对象作为一个均质体进行分析，通过给定的置信水平和相对误差便可根据变异系数得到相应的合理采样数目，如《土壤环境监测技术规范》[19]就采用该方法计算样

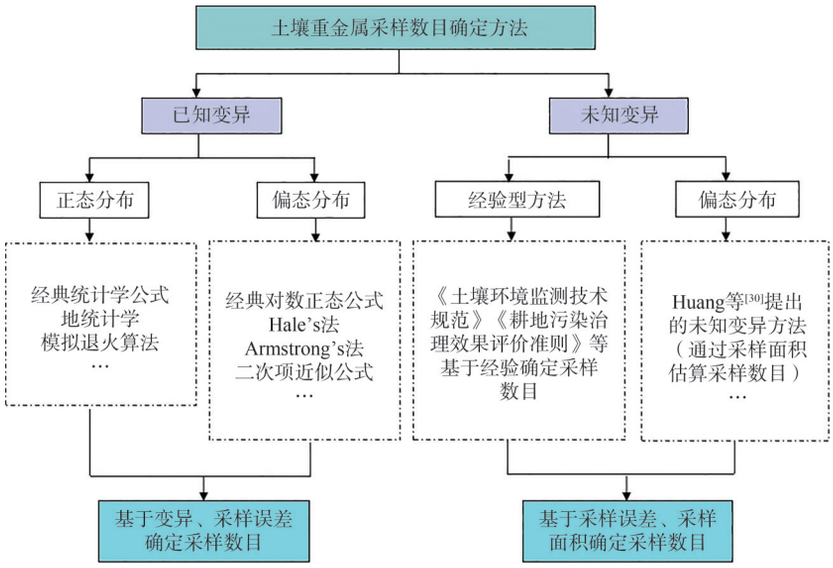

图 2　土壤重金属采样数目确定方法

Fig. 2　Determination methods of soil heavy metal sampling numbers

品数目。已有研究多采用地统计学、模拟退火算法等模型优化合理采样数目[20-21]。但是，上述方法需要土壤重金属采样数目符合正态分布且已知区域内的土壤变异情况。由于土壤重金属的空间变异性较高[3]，空间分布不规则，为了满足在正态分布下的合理采样数目计算，常常通过对采样点离群值进行剔除或者平滑化。而在实际情况中，土壤污染样点的重金属浓度往往显著高于周围样点，简单的剔除会导致一些污染样点被人为删除，从而影响土壤重金属污染评估结果。国内外学者认为土壤污染采样数据并不符合正态分布，而是属于偏态分布，且在土壤地球化学背景下多数为对数正态分布[1, 22]。同时，这些方法的采样设计是基于已知样点的土壤属性统计参数和空间变异特征等信息来设计出合理的采样数目，更偏重为多次采样和后期监测点的布置提供参考，并不适合于土壤属性空间特征未知的区域进行首次采样设计。

1.1.2　已知变异单元内偏态分布下混合样采样数目确定方法研究

土壤重金属采样数据多数情况下是符合偏态分布[22-24]。针对偏态分布，本研究提出了采样数目确定方法（表3），具体方法如下：最早提出的是经典对数正态分布公式（式（1））[25]。然而，这个公式对合理样本数的计算多存在低估的现象。基于此，一些学者提出了经典对数正态公式修正的方法，如Hale's方法（式（2））[26]、Armstrong's方法（式（3））[21]、二次项近似公式（式（4））[25]、线性回归估计（式（5））[25]、切比雪夫不等式（式（6））[28]等。但是上述不同修正方法的应用范围有所限制，不足以涵盖土壤重金属在不同变异系数下的采样布点，存在对合理采样数目高估及低估的现象。为了精确计算土壤重金属合理采样数目，黄亚捷等采用最小二乘法提优化了经典对数正态分布公式，提出了对数正态分布下的土壤重金属采样数目确定公式（式（7））[29]。然而，上述不同采样数目确定方法都过多的依赖于变异，对于没有历史调查数据初次调查采样的未知变异决策单元，不同方法在确定土壤重金属采样数目时均有所限制[29-30]。

1.1.3　未知变异单元内基于经验型的混合样采样数目确定方法研究

在未知变异采样单元内，基于不同的组间误差控制要求，不同行业标准提出了土壤重金属采样数目确定方法。《土壤环境监测技术规范》[21]基于不同的采样方法，提出了不同数量的混合样品数。《建设用地土壤环境调查评估技术指南》[31]中要求超标和重点区布点密度不低于400 m^2。《耕地污染治理效果评价准则》[32]中规定当污染治理区域面积<10 hm^2时，采样点数量为10个，对于面积>10 hm^2的污染治理区域，每1 hm^2设置1个采样点。在污染地块调查和修复效果评估等领域，《建设用地土壤污染风险管控和修复监测技术导则》[33]规定在地块环境初步调查时要求不超过1 600 m^2布设一个采样点位，而详查

也仅仅是不超过400 m^2布设一个采样点位。

客观上来说，我国现行的土壤采样相关技术规范对于土壤混合样、混合样分样点数目的确定主要是基于专家经验或经典统计学方法计算采样数目[34-35]。虽然对农田土壤和农产品污染调查监测单元布点数量做出了规定，但是采样点位密度有限，且执行时大多把最低要求作为工作标准，采样数目的不足就可能导致调查不充分，从而导致污染范围不准确。同时，上述规范缺乏统计学模型对合理采样数目确定过程的论证，也无法精准估算在田间采样过程中不同采样数目所带来的误差及掌握空间变异特征。现场采集的混合样本能否代表决策单元的平均浓度和识别空间变异特征还有待商榷。因此，为了准确估算土壤重金属的采样数量，相关人员通过统计学方法，结合不同的采样误差要求，提出了在未知变异单元内符合偏态分布下的混合样采样数目确定方法。

1.1.4 未知变异单元内偏态分布下混合样采样数目确定方法研究

对于没有先验知识的未知变异采样单元内，基于不同的误差控制要求，Huang等[30]提出了土壤重金属合理采样数目确定方法，认为在不同误差控制下，采样数目为采样面积的函数（表3）。Interstate Technology Regulatory Council[28]认为在未知变异的决策单元，可以优先确定50个样本数。但是，如果对于决策单元较小的区域，50个样本数可能会带来较大的采样成本；对于面积较大或变异较大的决策单元，50个样本数难以发现采样区域土壤重金属的空间变异特征，此时监测数据并不能有效控制误差以及反映采样区域污染物的浓度情况。欧洲的芬兰、德国、希腊等国家也基于经验明确了在一定采样单元范围内的采样数目（表2），但是也尚未明确在不同采样数目下所带来的土壤采样误差及变异情况。

表3 对数正态分布下采样数目确定方法（95%的置信区间）

Table 3 Determining methods of sampling numbers at the 95% confidence level under the log-normal distribution

方法 Method	公式 Equation	参考文献 Reference
经典对数正态公式 Classical log-normal equation	$N_{\text{classic}}=\frac{z_{(\alpha,f)}{}^2\times(\text{GSD}^{\ln(\text{GSD})}-1)}{P^2}$	[25]
Hale's方法 Hale's method	$N=\frac{z_{(\alpha,f)}{}^2 S_y{}^2}{\ln^2(P+1)}$	[26]
Armstrong's方法 Armstrong's method	$P=\exp\left(z_{(\alpha,f)}\sqrt{\frac{S_y{}^2}{N}+\frac{S_y{}^4}{2(N-1)}}\right)-1$	[27]
二次项近似公式 Quadratic term approximate equation	$N=\frac{\exp(-0.173)\text{GSD}^{4.3}\text{GSD}^{-0.99\ln(\text{GSD})}}{P^{1.2}}$	[25]
线性回归估计 Linear regression method	$N=\beta_0+\beta_1\times N_{\text{classic}}$	[25]
切比雪夫不等式 Linear regression method	$N=\frac{(\frac{1}{\gamma}-1)S_y^2}{P^2}$	[28]
Huang's已知变异方法 Huang's method of the known variation	$N=1.20\times\left[\frac{Z_{(\alpha,f)}{}^2\times(\text{GSD}^{\text{Ln}(\text{GSD})}-1)}{P^2}\right]+8.69$	[29]
Huang's未知变异方法 Huang's method of the unknown variation	$\text{QSN}=18.44\times A^{0.54}+8.69$	[30]

1.2 土壤重金属混合样分样点数目及组内误差研究

1.2.1 基于统计学方法确定土壤重金属混合样分样点数目

表层土壤混合样本为表层（0～20 cm）土壤分样点经混合均匀后形成的土壤样品。混合样分样点数目一方面影响土壤重金属混合样点数及总体样点数目的确定，另一方面也影响土壤重金属空间变异特征的识别及总体空间预测的精度[36]。土壤混合样本分样点的采集一般集中在较小的尺度范围之内，土壤重金属在很小的尺度下有可能也存在着较大的空间变异[5-6]。对于究竟采取几个分样点混合为一个土壤样品，基于对于不同的误差控制要求，不同国家提出了相应的混合样分样点合理采样数目确定标准，如表4所示。可知：美国州际技术监管委员会（ITRC）发布了提出了决策单元多点增量采样方法（Decision Unit Multi Increment Sampling，DUMIS），并在夏威夷州、阿拉斯加、华盛顿等多个地区推广应用[22]。ITRC认为混合样本数（重复样本）与混合分样点数目（多点增量，Multi Increment Sampling）是与控制误差、变异的关系函数。在满足正态分布时，一般推荐3个重复样本，非正态分布一般推荐最少8个重复样本；对于混合分样点数目（多点增量），一般推荐多点增量数30～100个时，对决策单元平均污染物水平具有较好的估计；而针对污染物空间变异未知的情况，通常采集50个增量数即可[22]。英国提出了土壤样品混合样及混合样分样点数目确定公式，揭示了样本组内误差及组间误差的关系，认为土壤样品采样本数是关于采样误差及精度的函数，但是该计算方法过于复杂，在实际应用时有所限制[37]。

1.2.2 基于经验性方法确定土壤重金属混合样分样点数目

在农田调查或修复效果评估采样的实践中，我国调查单位多直接按照最理想的假设采用5点混合样。而澳大利亚及新西兰土壤污染物采样标准规定4个土壤分样点可以形成一个混合样[38-39]。针对不同污染途径，我国不同部门对于混合样分样点数目确定方法并不相同。依据《农、畜、水产品污染监测技术规范》[40]要求每个土壤单元至少有3个采样点组成，每个采样点的样品为农田土壤混合样，分样点数量在5～20个。《土壤环境监测技术规范》[19]根据农田土壤接纳污染物途径划分不同的监测单元，每个单元设3～7个采样区，每个采样区采集5～20个分样点，组成土壤混合样。依据《农田土壤环境质量监测技术规范》[41]确定污水灌溉农产品生产区的土壤污染物采样标准，要求在每个单元布设10～12个采样点。《建设用地土壤污染风险管控和修复监测技术导则》[33]中规定土壤混合样的采样点数应为5～20个，除测定挥发性有机物项目的样本外，可在每个工作单元中均匀分布地采集9点混合样。然而，我国现行的规范或导则无法估算出不同数目的分样点形成一个混合样所带来的组内误差以及判断分样点内部变异情况。

综合考虑国内外研究，不同土壤采样数目确定方法均过分依赖于土壤专家的主观判断和以往的实践经验的指导，并没有形成统一的理论知识结构和相关经验框架，普遍缺乏有关监测样点估值精度的深入分析，无法精准估算在田间采样过程中不同混合样分点数目所带来的误差。结合不同的控制采样误差需求、正态或偏态分布下，对于已知变异或者未知变异的决策单元内，综合确定土壤重金属混合样本及混合样分样点数目确定方法的研究目前仍没有开展。在多种情景下，识别出不同混合样分样点数目对土壤重金属总体采样数目及空间变异的影响，实现采样数目既能有效控制误差又能最大程度地降低采样数量和分析成本，具有重要的科学和现实意义。

2 土壤重金属采样数目与空间变异耦合规律研究

土壤采样点是离散和有限的，往往需要结合模型模拟预测与制图来反映空间信息。土壤重金属变异往往具有空间的相关性。利用土壤属性空间变异预测模型可以更加合理地布置采样点，从而更加精确地描述土壤重金属整体特征和局部的变化。土壤属性空间变异预测模型由最初的经典统计学方法发展到了时序分析方法、地统计学方法、分形理论、地理加权以及应用GIS的研究方法。基于模型的地统计学方法，考虑了与时间和空间有关的随机过程对土壤性质的影响，是研究土壤属性时空变异的有效方法。国内外学者采用地统计方法就土壤属性空间分布特征及其变异规律进行了大量研究，也探究并提出了诸多空间预测和变异研究方

表4 土壤重金属混合样本数采样方法

Table 4 Sampling method of composite samples for soil heavy metals

国家 Country	采样规则 Sampling rule	参考文献 Reference
中国 China	每个土壤单元至少有3个采样点组成，每个采样点的样品为农田土壤混合样，分样点数量在5～20个	[40]
	根据农田土壤接纳污染物途径划分不同的监测单元，每个单元设3～7个采样区，每个采样区采集5～20个分样点	[19]
	污水灌溉农产品生产区的土壤污染物，在每个单元布设10～12个采样点	[41]
	土壤混合样的采样点数应为5～20个，除测定挥发性有机物项目的样本外，可在每个工作单元中均匀分布地采集9点混合样	[33]
	清挖后的基坑面积＜100 m^2最少布设2个点位，100 m^2≤基坑面积＜1 000 m^2最少布设3个点位；对于污染土壤修复过后的土堆；每500 m^3土壤至少采集一个土壤样品	[42]
美国 America	美国夏威夷州相关技术导则推荐增量数30～100个时，对决策单元平均污染物水平具有较好的估计，而针对污染物空间变异未知的情况，通常采集50个增量数即可	[28]
英国 UK	$n=\left(\frac{u_t}{d_{prec}}\right)^2\times\left(\frac{\delta_w{}^2}{m}+\delta_a{}^2+\delta_b{}^2\right)$	[37]
澳大利亚 Australia	4个土壤污染物分样点可以形成一个混合	[38]
新西兰 New Zealand	4个土壤污染物分样点可以形成一个混合	[39]

注：m为混合样分样点数目，n为总采样数目，δ_w为混合样分样点组内误差，δ_b为混合样组间误差，δ_a为分析误差，u_t为某一置信水平下相对应的标准正态偏差，d_{prec}为采样精度。

Note: m is the number of increments per composite samples. n is the number of composite samples. δ_w is the standard deviation of with-composite spatial variation. δ_b is the the standard deviation of between-composite spatial variation. δ_a is the the standard deviation of analytical error. u_t is the standard normal deviation corresponding to a certain confidence level. d_{prec} is the sampling accuracy.

法，如序贯高斯模拟和序贯高斯协模拟[43-45]、回归克里格法[46-47]、泛克里格法[48]、人工神经网络[49-50]、分形理论[51-52]、地理加权[53-54]等，提高了土壤属性的空间预测精度。

土壤重金属采样布点是利用采样点位结合变异函数和土壤属性空间变异预测模型对未采样区域进行预测[52]。混合样及混合样分样点采样数量决定空间变异特征预测精度，也会影响模型预测结果。空间变异预测模型有利于对采样数目优化，最终以较优的采样点信息代表全局特征，获得土壤重金属空间变异分布情况。目前开展的研究是在已知变异的单元内，通过经典统计学方法对混合样品采样数目进行计算可以更加合理地布置采样点，然后通过土壤属性空间变异预测模型识别对已确定的采样数目进行优化。对于多种情景，尤其是在无先验知识的未知变异单元、或采样数据满足偏态分布时，探讨土壤重金属样本数和空间变异耦合规律研究尚未开展。在多种情景下，构建样本量计算和空间变异识别的耦合模型有助于在确保预测精度的基础上建立合理的采样布点方案，从而更加精确地描述土壤重金属特征整体和局部的变化。

3 结论与展望

综上所述，以往研究中关于农田表层土壤重金属采样设计存在以下几方面不足：

1）目前关于表层土壤重金属采样数目确定方法研究，多集中于专家经验型方法，普遍缺乏有关监测样点估值精度的深入分析，无法精准估算在田间采样过程中不同混合样本数及混合样分点数目所带来的误差。不同于土壤有机质、氮等土壤养分的田间采样设计，基于数据满足正态分布下的地统计学等方法并不适用于农田土壤重金属满足偏态

分布下的采样布点，也不适用于没有先验知识情况下的首次采样布点设计。

2）当土壤混合样、混合样分样点数目继续增加，采样误差降低趋势不明显，出现样本量冗余现象，此时决策单元内的采样数目即为合理采样数目出现的拐点。然而，目前对于数据符合偏态分布下的土壤重金属采样数目确定方法研究较少，已提出的采样数目确定方法均要求已知决策单元内的变异情况，对于初步采样调查的未知变异单元内农田土壤重金属采样数目确定方法关注较少。对于采样数据符合偏态或正态分布下，增加土壤混合样、混合样分样点数目与组间误差、组内误差降低趋势关系拐点尚不清楚。

3）目前提出的偏态分布下合理采样数目确定方法，均存在着合理采样数目高估或者低估的现象，而且只关注于混合样点合理采样数目确定方法研究，对于究竟采取多少个混合样分样点数目形成混合样，以及混合样点数目、混合样分样点数目与整体采样数目的定量关系尚不清楚。结合不同的误差控制需求、正态或偏态分布、已知或未知变异单元，综合确定多种情景下的土壤重金属混合样本数及混合样分样点数目确定方法的研究目前没有开展。

4）为了进一步提高采样效率和降低采样成本，已有研究提出了采样数目优化方法[20-21]，多是通过土壤属性空间变异预测模型对混合样本数目进行优化。目前还没有研究系统的对混合样分样点数采集过程中的内部空间变异特征进行分析。对于农田土壤重金属混合样点数目、混合样分样点数和空间变异耦合规律也尚不明确。

因此，综合分析目前国内外土壤重金属采样及空间变异方法研究的现状与不足，通过开展农田土壤重金属混合样点数目、混合样分样点数目与整体采样数目的定量关系研究，揭示土壤重金属样本数目（混合样本数、分样点数）、采样误差（组内误差、组间误差）和空间变异（内部变异、外部变异）耦合规律，建立土壤重金属样本量计算和空间变异识别的耦合模型，将是未来土壤重金属田间采样研究的关键，这也对优化土壤重金属采样设计，实现降低采样成本及提高采样精度具有重要的理论和现实意义。

参考文献　References

[1] Liao Y L, Li D Y, Zhang N X. Comparison of interpolation models for estimating heavy metals in soils under various spatial characteristics and sampling methods[J]. *Transactions in GIS*, 2018, 22(2): 409-434

[2] 黄亚捷，李菊梅，马义兵. 土壤重金属调查采样数目的确定方法研究进展[J]. 农业工程学报，2019，35(24)：235-245
Huang Y J, Li J M, Ma Y B. Research progress of methods for determining sampling numbers of soil heavy metals survey [J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2019, 35(24): 235-245 (in Chinese)

[3] Song W, Chen B M, Liu L. Soil heavy metal pollution of cultivated land in China[J]. *Research of Soil and Water Conservation*, 2013, 20(2): 293-29

[4] Marchant B P, Mcbratney A B, Lark R M, Minasny B. Optimized multi-phase sampling for soil remediation surveys[J]. *Spatial Statistics*, 2013, 4:1-13

[5] Brewer R, Peard J, Heskett M. A critical review of discrete soil sample data reliability: Part 1—Field study results [J]. *Soil and Sediment Contamination: An International Journal*, 2017, 26(1): 1-22

[6] Brewer R, Peard J, Heskett M. A critical review of discrete soil sample data reliability: Part 2-Implications[J]. *Soil and Sediment Contamination: an International Journal*, 2017, 26(1): 23-44

[7] 孟晓飞，郭俊姆，杨俊兴，杨军，郑国砥，乔鹏炜，卞建林，陈同斌. 河南省典型工业区周边农田土壤重金属分布特征及风险评价[J]. 环境科学，2021，42(2)：900-908
Meng X F, Guo J M, Yang J X, Yang J, Zheng G D, Qiao P W, Bian J L, Chen T B. Spatial distribution and risk assessment of heavy metal pollution in farmland soils surrounding a typical industrial area of Henan Province[J]. *Environmental Science*, 2021, 42(2):900-908 (in Chinese)

[8] 汤金来，赵宽，胡睿鑫，徐涛，王宜萱，杨扬，周葆华. 滁州市表层土壤重金属含量特征、源解析及污染评价[J]. 环境科学，2023，44(6)：3562-3572
Tang J L, Zhao K, Hu R X, Xu T, Wang Y X, Yang Y, Zhou B H. Heavy metal concentration, source, and pollution assessment in topsoil of Chuzhou City[J]. *Environmental Science*, 2023, 44(6): 3562-3572 (in Chinese)

[9] 张沁瑞，李欢，邓宇飞，黄勇，张博，许一波. 北京东南郊土壤重金属元素分布及其在表层土壤中的富集特征[J]. 物探与化探，2022，46(2)：490-501
Zhang Q R, Li H, Deng Y F, Huang Y, Zhang B, Xu Y B. Distribution of heavy metal elements in soil of the Southeastern suburbs of Beijing and their enrichment characteristics in surface soil [J]. *Geophysical and Geochemical Exploration*, 2022, 46(2):490-501 (in Chinese)

[10] 谭菊，吕丹阳，陈丹丹，杨海君. 湖南省国控背景点表层土壤重金属源解析及评价[J]. 环境科学与技术，2022，45(2)：156-164
Tan J, Lyu D Y, Chen D D, Yang H J. Source analysis and pollution assessment of heavy metals in surface soil of some state-controlled spots in Hunan Province[J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, 45(2): 156-164 (in Chinese)

[11] Theocharopoulos S P, Wagner G, Sprengart J, Mohr M E, Desaules A, Muntau H, Christou M, Quevauviller P. European soil sampling guidelines for soil pollution studies[J]. *Science of the Total Environment*, 2001, 264(1-2):51-62

[12] Bugdalski L, Lemke L D, McElmurry S P. Spatial variation of soil lead in an urban community garden: Implications for risk-based sampling[J].

Risk Analysis, 2014, 34(1): 17-27

[13] Verstraete S, Van Meirvenne M. A multi-stage sampling strategy for the delineation of soil pollution in a contaminated brownfield[J]. *Environmental Pollution*, 2008, 154(2):184-191

[14] Tenenbein A. A double sampling scheme for estimating from misclassified multinomial data with applications to sampling inspection[J]. *Technometrics*, 1972, 14(1): 187-202

[15] 阎波杰, 潘瑜春, 赵春江. 区域土壤重金属空间变异及合理采样数确定[J]. 农业工程学报, 2008, 24(S2):260-264
Yan B J Pan Y C, Zhao C J. Spatial variability and reasonable sampling number of regional soil heavy metals[J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2008(S2):260-264(in Chinese)

[16] Dołęgowska S, Gałuszka A, Migaszewski Z M. Assessing soil sampling uncertainty in heterogeneous historic metal ore mining sites [J]. *Accreditation and Quality Assurance*, 2015, 20(3): 163-170

[17] Garten C T, Kang S, Brice D J, Schadt C W, Zhou J Z. Variability in soil properties at different spatial scales (1 m-1 km) in a deciduous forest ecosystem[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2007, 39(10):2621-2627

[18] Yan X Y, Cai Z C. Number of soil profiles needed to give a reliable overall estimate of soil organic carbon storage using profile carbon density data[J]. *Soil Science and Plant Nutrition*, 2008, 54(5): 819-825

[19] HJ/T 166—2004. 土壤环境监测技术规范[S]. 北京:中华人民共和国环境保护行业标准,2004.
HJ/T 166—2004. Technical Specification for Soil Environmental Monitoring [S]. Beijing: Environmental Protection Industry Standard of the People's Republic of China, 2004(in Chinese)

[20] Wang J M, Yang R X, Feng Y. Spatial variability of reconstructed soil properties and the optimization of sampling number for reclaimed land monitoring in an opencast coal mine[J]. *Arabian Journal of Geosciences*, 2017, 10(2): 46

[21] Molla A, Zuo S D, Zhang W W, Qiu Y, Ren Y, Han J G. Optimal spatial sampling design for monitoring potentially toxic elements pollution on urban green space soil: A spatial simulated annealing and k-means integrated approach[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 802: 149728

[22] 张学礼, 徐乐昌, 张辉. 某铀尾矿库周围农田土壤重金属污染与评价[J]. 环境科学与技术, 2015, 38(6):221-226
Zhang X L, Xu L C, Zhang H. Contamination and assessment of heavy metals in farmland soils near an uranium tailings pond[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 38(6): 221-226(in Chinese)

[23] 高凤杰, 王鑫, 韩晶, 刘媚媚, 郭欣欣. 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
Gao F J, Wang X, Han J, Liu M M, Guo X X. [J]. Heavy metal pollution characteristics and its health risk assessment in a mollisol watershed of Northeast China: Taking Haigou watershed as study case[J]. *Journal of China Agricultural University*, 2020, 25(8):73-83(in Chinese)

[24] 张慧, 马鑫鹏, 李昕阳, 史晓磊, 苏航, 隋虹均, 杨欢, 郑志志. 泰来县耕地土壤硒含量特征及空间分布[J]. 中国农业大学学报, 2018, 23(9): 100-107
Zhang H, Ma X P, Li X P, Shi X L, Su H, Sui H J, Yang H, Zheng Z Z. Characteristics and spatial distribution of selenium content in cultivated soil of Tailai County [J]. *Journal of China Agricultural University*, 2018, 23(9):100-107(in Chinese)

[25] Perez A, Lefante J. Sample size determination and the effect of censoring when estimating the arithmetic mean of a lognormal distribution [J]. *Communications in Statistics-Theory and Methods*, 1997, 26(11):2779-2801

[26] Hale W E. Sample size determination for the log-normal distribution[J]. *Atmospheric Environment*, 1972, 6(6):419-422

[27] Armstrong B G. Confidence intervals for arithmetic means of lognormally distributed exposures [J]. *American Industrial Hygiene Association Journal*, 1992, 53(8):481-485

[28] Interstate T R C. *Incremental Sampling Methodology*[M]. Washington, DC: Interstate Technology & Regulatory Council, Incremental Sampling Methodology Team, 2012

[29] Huang Y J, Li J M, Ma Y B. Determining optimum sampling numbers for survey of soil heavy metals in decision-making units: Taking cadmium as an example [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2020, 27(19):24466-24479

[30] Huang Y J, Li J M, Ma Y B, Li F B, Chen D L. A simple method to determine the sampling numbers in decision-making units with unknown variations of soil cadmium[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2021, 193(9): 1-17

[31] 中华人民共和国生态环境部. 建设用地土壤环境调查评估技术指南[M]. 北京:中华人民共和国环境保护行业标准, 2017
Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. *Technical Guide for Investigation and Assessment of Soil Environment in Construction Land* [M]. Beijing: Environmental Protection Industry Standards of the People's Republic of China, 2017(in Chinese)

[32] NY/T 33343—2018. 耕地污染治理效果评价准则[S]. 北京: 中国标准出版社, 2018.
NY/T 33343—2018. Evaluation Criteria for the effect of farmland pollution control[S]. Beijing: Agricultural Industry Standards of PRC, 2019(in Chinese)

[33] HJ 25.2—2019. 建设用地土壤污染风险管控和修复监测技术导则[S]. 北京:中华人民共和国环境保护行业标准, 2019
HJ 25.2—2019. Technical guidelines for soil pollution risk control and remediation monitoring in construction Land[S]. Beijing: Environmental Protection Industry Standards of the People's Republic of China, 2019(in Chinese)

[34] Cochran W G. *Sampling Techniques. 3rd Edition*[M]. New York: John Wiley & Sons, 1997

[35] Vašát R, Heuvelink G B M, Borůvka L. Sampling design optimization for multivariate soil mapping[J]. *Geoderma*, 2010, 155(3-4): 147-15

[36] Hathaway J E, Schaalje G B, Gilbert R O, Pulsipher B A, Matzke B D. Determining the optimum number of increments in composite sampling[J]. *Environmental and Ecological Statistics*, 2008, 15(3): 313-327

[37] ISO 10381-1: 2002. Soil quality-Sampling-Part 1: Guidance on the design of sampling programmes[S]. Genere International Organization for Standardization, 2002

[38] AS 4482. 2-1999. Guide to the investigation and sampling of sites with potentially contaminated soil, part 1: non-volatile and semi-volatile compounds[S]. Canberra: Australia Standard, 2005

[39] New Zealand Government. *Contaminated Land Management Guidelines No. 5: Site Investigation and Analysis of Soils*[M]. Wellington: New Zealand Government-Ministry for the Environment, 2003

[40] NY/T 398—2000. 农、畜、水产品污染监测技术规范[S]. 北京: 中国标准出版社, 2000.
NY/T 398—2000. Procedural regulations regarding monitoring of pollutants in the produces of agriculture, animal husbandry and fishery [S]. Beijing: Standards Press of China, 2000(in Chinese)

[41] NY/T 395—2012. 农田土壤环境质量监测技术规范[S]. 北京: 中国农业出版社, 2012.

NY/T 395—2012. Procedural regulations regarding the environment quality monitoring of soil: [S]. Beijing: China Agriculture Press, 2012 (in Chinese)

[42] HJ 25.5—2018. 污染地块风险管控与土壤修复效率评估技术导则(试行)[S]. 北京：中华人民共和国环境保护行业标准, 2018
HJ 25.5—2018. Technical Guidelines for risk management of contaminated Land and assessment of soil remediation effect (Tria)[S]. Beijing: Environmental Protection Industry Standards of PRC, 2018 (in Chinese)

[43] Kim H R, Kim K H, Yu S, Moniruzzaman M, Hwang S I, Lee G T, Yun S T. Better assessment of the distribution of As and Pb in soils in a former smelting area, using ordinary co-kriging and sequential Gaussian co-simulation of portable X-ray fluorescence (PXRF) and ICP-AES DATA[J]. *Geoderma*, 2019, 341: 26-38

[44] Liu Y, Cheng Q M, Carranza E J M, Zhou K F. Assessment of geochemical anomaly uncertainty through geostatistical simulation and singularity analysis[J]. *Natural Resources Research*, 2019, 28(1): 199-212

[45] Zhang Q J, Yu R Y, Fu S L, Wu Z M, Chen H Y H, Liu H. Spatial heterogeneity of heavy metal contamination in soils and plants in Hefei, China[J]. *Scientific Reports*, 2019, 9: 1049

[46] Tziachris P, Aschonitis V, Chatzistathis T, Papadopoulou M. Assessment of spatial hybrid methods for predicting soil organic matter using DEM derivatives and soil parameters[J]. *Catena*, 2019, 174: 206-216

[47] Song Y Q, Zhu A X, Cui X S, Liu Y L, Hu Y M, Li B. Spatial variability of selected metals using auxiliary variables in agricultural soils[J]. *Catena*, 2019, 174: 499-513

[48] AbdelRahman M A E, Shalaby A, Mohamed E S. Comparison of two soil quality indices using two methods based on geographic information system[J]. *The Egyptian Journal of Remote Sensing and Space Science*, 2019, 22(2): 127-136

[49] Huang Y J, Li Z, Ye H C, Zhang S W, Zhuo Z Q, Xing A, Huang Y F. Mapping soil electrical conductivity using ordinary kriging combined with back-propagation network[J]. *Chinese Geographical Science*, 2019, 29(2): 270-282

[50] Huang Y J, Ye H C, Zhang L P, Zhang S W, Shen C Y, Li Z, Huang Y F. Prediction of soil organic matter using ordinary kriging combined with the clustering of self-organizing map: A case study in Pinggu District, Beijing, China[J]. *Soil Science*, 2017, 182(2): 52-62

[51] Ren L, Huang J, Huang Q, Lei G D, Cui W, Yuan Y B, Liang Y J. A fractal and entropy-based model for selecting the optimum spatial scale of soil erosion[J]. *Arabian Journal of Geosciences*, 2018, 11: 161

[52] Wang J, Yang R X, Feng Y. Integrating multi-fractal theory and geo-statistics method to characterize the spatial variability of particle size distribution of mine soils[J]. *Geoderma*, 2018, 317: 39-46

[53] Song X D, Brus D J, Liu F, Li D C, Zhao Y G, Yang J L, Zhang G L. Mapping soil organic carbon content by geographically weighted regression: A case study in the Heihe River Basin, China[J]. *Geoderma*, 2016, 261: 11-22

[54] Ye H C, Huang W J, Huang S Y, Huang Y F, Zhang S W. Dong Y Y, Chen P F. Effects of different sampling densities on geographically weighted regression kriging for predicting soil organic carbon[J]. *Spatial statistics*, 2017, 20: 76-91

责任编辑：杨爱东

第一作者简介：黄亚捷，博士，高级工程师。研究方向为环境污染监测与治理研究、农业农村环境政策等。发表学术论文16篇，其中以第一作者身份在EI、SCI等一区国际顶级刊物发表论文7篇，以第一作者身份发表核心期刊等论文5篇。作为编委编辑著作3本。撰写多篇《环境发展专报》获得生态环境部部长肯定批示。主持和作为技术骨干参与国家自然科学基金、中心科技发展基金以及地方基金项目(课题)8项。

通讯作者简介：刘海东，博士，教授级高工，现任生态环境部环境发展中心环境管理与数据应用研究所副所长。多年来主要从事环境管理与规划、农业农村环境政策、环境影响评价等领域的研究工作，是农业部畜禽养殖废弃物资源化利用技术指导委员会委员、中国环境科学学会环境社会治理专委会常务委员。发表论文多篇，撰写多篇研究与政策信息专报，获得国办、生态环境部有关领导批示。