

污泥农用对痕量元素在小麦-玉米轮作体系中的积累及转运的影响

李 琼^{1,2}, 徐兴华², 左余宝², 桂 萌³, 崔希龙³, 华 璐¹, 马义兵²

(1.首都师范大学资源环境与旅游学院 资源环境与地理信息系统北京市重点实验室, 北京 100048; 2.中国农业科学院农业资源与农业区划研究所 农业部作物营养与养分循环重点实验室, 北京 100081; 3.北京城市排水集团有限责任公司, 北京 100061)

摘 要:利用田间试验初步研究了污泥农用对小麦、玉米大田作物及土壤环境影响以及污泥中痕量元素在土壤与植物可食部分之间转移规律。结果表明,施用污泥后,尤其是 $36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 施用量时,土壤中 Zn、Cu、Cd、Pb、As 和 Hg 的含量均显著增加,但是施用污泥 4.5 至 $36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 后,除小麦籽粒中 Zn、Cu 含量和玉米籽粒中 Zn、Cr 含量显著增加外,其他痕量元素在小麦和玉米籽粒中的含量没有显著增加。作物籽粒中 Zn 含量与土壤中污泥施加量之间存在着显著的线性回归关系,土壤中增施 $1 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥,小麦和玉米籽粒中 Zn 的含量分别增加 0.570 和 $0.118 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。小麦和玉米籽粒除 Ni 和 Pb 的富集系数相近外,对其他痕量元素而言,小麦籽粒的富集系数显著高于玉米籽粒。从痕量元素的累积速率和现行土壤环境质量标准考虑,北京污泥中 Hg 是优先考虑控制的元素,但是污泥中 Hg 对食品安全的影响还需要进行长期的大田实验研究。

关键词:城市污泥;土壤;痕量元素;富集系数

中图分类号:X171.5 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2009)10-2042-08

Effects of Biosolid on the Accumulation and Transfer of Trace Elements in Soil-Wheat/Maize System

LI Qiong^{1,2}, XU Xing-hua², ZUO Yu-bao², GUI Meng³, CUI Xi-long³, HUA Luo¹, MA Yi-bing²

(1.The Key Lab of Resource Environment and GIS, The College of Resource Environment and Tourism, Capital Normal University, Beijing 100048, China; 2.Ministry of Agriculture Key Laboratory of Crop Nutrition and Nutrient Cycling, and Institute of Agricultural Resources and Regional Planning, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China; 3.Beijing Drainage Group Co. Ltd, Beijing 100061, China)

Abstract: A field experiment was carried out to investigate the phytoavailability of trace elements in soils amended with biosolid and the transfer of trace elements in sludge from soil to the edible parts of plants. The results showed that land application of biosolid, especially at high rates, increased significantly the concentrations of Zn, Cu, Cd, Pb, As and Hg in soils. However, except for the increase in the concentrations of Zn and Cu in wheat grains and Zn and Cr in corn grains, the concentrations of other trace elements in crop grains were not increased significantly by application of biosolid at the rates from $4.5 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ to $36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$. There was a significant linear relationship between the concentrations of Zn in crop grains and the application rates of biosolid in soils; the concentrations of Zn in wheat and corn grains were increased by 0.57 and $0.118 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, respectively, when biosolid of $1 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ was added to the soil. Except for similar accumulation factors between wheat and corn grains for Ni and Pb, for other trace elements the bioaccumulation factors of wheat grains were found to be higher than those of corn grains. According to the accumulation rates of different trace elements and current soil environmental criteria, Hg in biosolid in Beijing was the element of high risk for soil environment quality. However, the effects of trace elements in biosolid in Beijing on food safety need to be investigated through further long-term field experiments. The results provided a scientific basis for developing a reasonable standard of biosolid application on agricultural land.

Keywords: biosolid; soil; trace elements; bioaccumulation factor

收稿日期:2009-03-10

基金项目:北京城市排水集团有限责任公司提供项目资助

作者简介:李 琼(1984—),男,山东茌平人,博士研究生,主要从事土壤痕量元素的污染与修复方面的研究。E-mail:liq1130@163.com

通讯作者:马义兵 E-mail:ybma@caas.ac.cn

污泥中由于含有大量的植物生长必需营养成分,对作物生长起到良好的增产效果,可改善土壤理化性状,同时污泥农用也会造成痕量元素的积累及危害,因此污泥农用倍受国内外关注^[1-2]。目前污泥农用是国际上污泥处置的一种方法^[3]。我国污泥农业利用率较低,不超过 10%,而英国、美国、法国、荷兰等国家污泥农业利用率为 60%^[4]。国外一些研究表明污泥农用可以提高土壤痕量元素和作物组织中痕量元素的浓度^[5-7]。McLaughlin 等研究发现污泥中的镉与可溶性镉盐有相似的溶解度,但污泥中镉对小麦的有效性和转移性显著低于镉盐^[8]。国内一些学者经过研究发现:施加堆肥污泥后,使得土壤和植物中的一些痕量元素(如 Cd、Pb 等)显著增加,改变了原来的土壤环境^[9-10],但是在田间进行作物的轮作来研究污泥农用后痕量元素在土壤-植物体系中的积累及转运还鲜见报道。国内许多学者对中国城市污泥的土地利用情况进行过大量的研究,并充分肯定了污泥的土地利用效果^[11-14],由于国内外的污泥性质差异显著^[13],国外污泥农用规范很难适用于中国,至今仍没有相应统一的污泥农用规范进行实施。因此,在大田展开污泥土地合理施用的研究十分必要。

本项研究以北京市污水处理厂污泥为研究对象,通过农田试验,探讨:(1)污泥农用对小麦、玉米大田作物产量和土壤环境的影响;(2)污泥痕量元素在土壤与植物体系中的积累及转运规律,为城市污泥合理农用提供理论基础。

1 材料与方法

1.1 试验地点及供试污泥

试验地点为中国农业科学院山东德州陵县实验站。试验站(37°20'N,116°38'E,海拔 20 m)属暖温带半湿润半干旱季风气候区。试验地土壤类型为潮土,0~200 cm 土壤质地为轻壤土,容重 1.32~1.43 g·cm⁻³,田间持水量 20.3%(质量含水率)。发酵污泥由北京排水集团污泥分公司提供,含水量 10.02%。污泥及德州试验点的土壤基本性状见表 1。

1.2 供试作物及肥料

供试作物为冬小麦、夏玉米,供试肥料为尿素(N 含量 46%),过磷酸钙(P₂O₅ 含量 15%),硫酸钾(K₂O 50%),精制鸡粪有机肥(市售,河北提供,以鸡粪为原料经发酵加工而成,含水量 9.43%),其痕量元素含量未超过有机肥痕量元素含量限值(GB81720,鸡粪的基本性状见表 1)。

表 1 供试土壤、污泥及鸡粪的基本性状

Table 1 The basic properties of the soil, biosolid and chicken manure

项目	陵县土壤	GB15618—1995	污泥	GB18918—2002	鸡粪	GB8172
全 N /%	0.08	—	2.7	—	2.4	—
全 P /%	0.1	—	3.8	—	2	—
全 K /%	0.3	—	0.2	—	1.8	—
速效 N/mg·kg ⁻¹	80	—	—	—	—	—
速效 P/mg·kg ⁻¹	5.5	—	—	—	—	—
速效 K /mg·kg ⁻¹	73	—	—	—	—	—
有机质 /%	1.2	—	35.5	—	20.8	—
pH (土/水 1:5)	8.9	—	7.5	—	—	—
Zn/mg·kg ⁻¹	46.6	≤100	1 665	<3 000	659.9	—
Cu/mg·kg ⁻¹	17	≤35	238	<1 500	52.3	—
Cr /mg·kg ⁻¹	50	≤90	99	<1 000	140.2	≤300
Cd/mg·kg ⁻¹	0.11	≤0.2	1.5	<20	0.2	≤3
Pb/mg·kg ⁻¹	10.2	≤35	79	<1000	9.9	≤100
Ni/mg·kg ⁻¹	27	≤40	46	<200	21	—
As/mg·kg ⁻¹	10.4	≤15	20	<75	19.4	≤30
Hg/mg·kg ⁻¹	0.1	≤0.15	13	<15	0.4	≤5

注:GB15618—1995 引用的为一级土壤环境质量标准;GB18918—2002 引用的为 pH≥6.5 时污泥农局限值;GB8172 城镇垃圾农用控制标准,我国对有机肥的痕量元素限量值是参照这个标准的。

1.3 试验设计

试验共设 8 个处理(表 2、3),分别为:不施污泥和氮肥(CK),低氮用量处理(0.5N),正常氮用量处理(1N),4 个污泥施用量(分别为 4.5、9.0、18 和 36 t·hm⁻²)和一个正常鸡粪用量处理(鸡粪 9.0 t·hm⁻²)。污泥和鸡粪处理的氮肥施用量与 0.5N 处理相同。其中,正常氮用量处理(1N)是指施用尿素纯氮(N)量小麦、玉米各 180 kg·hm⁻²(小麦茬底肥 60 kg·hm⁻²、追肥 120 kg·hm⁻²,底肥于小麦种前撒施后耕翻入土,追肥于小麦拔节期撒施后灌溉随水入土;玉米茬 180 kg·hm⁻²,在玉米小喇叭口期一次性条施);污泥(以烘干基计算)在小麦播种前以底肥形式一次施入,每年施用一次。鸡粪施用方法与污泥相同。以上所有处理均施用等量 P、K 肥料作为底肥,分别为 P₂O₅ 90 kg·hm⁻²、K₂O 120 kg·hm⁻²,于冬小麦、夏玉米播种前一次施入,玉米茬不施污泥和鸡粪。以上各处理均重复 3 次。试验从冬小麦开始,到夏玉米收获,一个小麦-玉米轮作周期。土壤样品在施肥前采集作为空白对照,小麦收获后再次采集。秸秆和籽粒样品均为小麦、玉米成熟后采集。

试验小区面积 40 m² (5 m × 8 m),共 24 个小区,随机排列。小麦和玉米季各个小区污泥及肥料用量见表 2 和表 3。

表 2 小麦茬不同处理施用污泥及肥料的量(kg·hm⁻²)

Table 2 The application rates of biosolid, chemical fertilizers and chicken manure in different treatments for wheat(kg·hm ⁻²)												
处理	底肥											
	污泥/		鸡粪/		尿素/		过磷酸钙/		硫酸钾/		追肥	
	t·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹	kg·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹	kg·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹	kg·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹	kg·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹	kg·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹
CK	0	0	0	0	0	0.000	600	2.4	240	0.96	0	0.000
0.5N	0	0	0	0	65.25	0.261	600	2.4	240	0.96	130.4	0.522
1N	0	0	0	0	130.5	0.522	600	2.4	240	0.96	260.8	1.043
0.5S+0.5N	4.5	18	0	0	65.25	0.261	600	2.4	240	0.96	130.4	0.522
1S+0.5N	9	36	0	0	65.25	0.261	600	2.4	240	0.96	130.4	0.522
2S+0.5N	18	72	0	0	65.25	0.261	600	2.4	240	0.96	130.4	0.522
4S+0.5N	36	144	0	0	65.25	0.261	600	2.4	240	0.96	130.4	0.522
1J+0.5N	0	0	9937.5	39.75	65.25	0.261	600	2.4	240	0.96	130.4	0.522

注:按小区面积换算的肥料实物量,小区面积 40 m²,污泥、鸡粪肥料已换算为实物重(扣除了水分)。

表 3 玉米茬不同处理肥料施用量(kg·hm⁻²)

Table 3 The application rates of chemical fertilizers and chicken manure in different treatments for corn(kg·hm ⁻²)						
处理	底肥				追肥	
	过磷酸钙/		硫酸钾/		尿素(大喇叭口期)/	
	kg·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹	kg·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹	kg·hm ⁻²	kg·区 ⁻¹
CK	600	2.4	240	0.96	0	0
0.5N	600	2.4	240	0.96	195.65	0.783
1N	600	2.4	240	0.96	391.3	1.565
污泥和鸡粪	600	2.4	240	0.96	195.65	0.783

注:按小区面积换算的肥料实物量,小区面积 40 m²,污泥、鸡粪肥料夏玉米茬不施;污泥和鸡粪处理包括 0.5S+0.5N、1S+0.5N、1S+0.5N、4S+0.5N 和 1J+0.5N,其 NPK 肥料用量相同。

1.4 分析方法和数据分析

土壤和污泥 pH 用酸度计法测定^[15](水土比 5:1);污泥有机质含量采用重铬酸钾法;土壤全 P 采用三酸(硝酸-高氯酸-氢氟酸)消煮,钼锑抗比色法;土壤全 N 采用半微量凯式定氮法;土壤全 K 采用三酸(硝酸-高氯酸-氢氟酸)消煮,火焰光度法;土壤速效氮采用碱解扩散法,土壤速效磷用 0.5 mol·L⁻¹ NaHCO₃ (pH=8.5)浸提-钼锑抗比色法;土壤速效钾采用乙酸铵提取-火焰光度计法测定^[16]。供试土壤和污泥采用 EPA3050 方法(湿式消化法,美国检测标准)消解,植株样品用 HNO₃-H₂O₂ 混合酸微波消解,然后用 ICP-MS(Agilent 7500 USA)测定 Zn、Cu、Cd、Cr、Ni、Pb 元素的含量,用原子荧光(吉天 AFS-920 中国)测定 As、Hg 元素的含量。分析过程用国家一级标准物质:土壤 GBW07403 和小麦 GBW10011 对样品中痕量元素含量测定进行分析质量控制;数据分析采用 SPASS13.0 和 Microsoft Excel for Windows 2007。

2 结果与讨论

德州土壤的含氮量较高,而磷、钾较低(表 1),除

空白外,各处理都施加了磷、钾的底肥,所有处理间小麦、玉米产量均无显著差异($P<0.05$)。因此,对城市污泥大田施用对土壤痕量元素含量、小麦、玉米籽粒痕量元素含量、小麦、玉米秸秆痕量元素含量、痕量元素在土壤-小麦、玉米之间累积和转运的影响进行了重点分析。

2.1 污泥农用对土壤痕量元素含量的影响

污泥施用后,经过一茬小麦的种植后,土壤中痕量元素的变化情况如表 4 所示。

将所有处理的土壤痕量元素含量与土壤环境质量标准(GB15618—1995)比较可知(表 4),所有处理土壤的 Zn、Cu、Cr、Ni、Cd、Pb、As、Hg 含量均没有超出土壤环境质量二级标准(GB15618—1995),且土壤中 Zn、Cu、Cr、Cd、Pb 的含量远远低于二级标准值。

施用污泥与相应的对照(0.5N)比较(表 4)可知,低量污泥处理(0.5S+0.5N 或 1S+0.5N)时,土壤痕量元素含量随污泥施用未显著增加,高污泥用量处理(4S+0.5N,36 t·hm⁻²)时,德州土壤的 Zn、Cu、Cd、Pb、As、Hg 含量都显著高于对照(0.5N)处理($P<0.05$)。由表 4 可以看出,1S+0.5N 污泥处理即在连续每年施用

表 4 不同处理对土壤痕量元素含量的影响($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)Table 4 The concentrations of trace elements in soils with different treatments ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)

处理	Zn	Cu	Cr	Ni	Cd	Pb	As	Hg
0.5N	41.5±0.9a	16.7±0.4a	53.9±4.0a	27.8±1.6a	0.111±0.008a	10.1±0.2a	10.4±0.3a	0.11±0.02a
0.5S+0.5N	46.3±2.1a	17.5±0.5a	65.7±6.8a	32.1±2.3a	0.111±0.008a	10.6±0.3a	10.4±0.4a	0.15±0.01a
1S+0.5N	50.4±2.1a	17.8±0.2a	55.6±6.8a	28.3±2.6a	0.110±0.003a	10.4±0.5a	10.4±0.2a	0.23±0.02a
2S+0.5N	67.4±2.6b	19.5±1.1b	51.9±3.5a	26.6±2.0a	0.118±0.010a	11.5±0.5b	10.8±0.4a	0.50±0.19b
4S+0.5N	74.7±8.6b	20.0±1.4b	51.4±2.61a	26.8±1.0a	0.135±0.004b	11.7±0.9b	11.1±0.2b	0.62±0.37b
1J+0.5N	45.0±0.8a	16.7±0.5a	48.0±0.2a	25.5±0.01a	0.111±0.012a	10.1±0.2a	10.6±0.2a	0.14±0.03a
GB 15618—1995	300	100	250	60	1	350	25	1

注:同列数值的不同字母表明 Duncan's 多重比较差异显著($P<0.05$);GB 15618—1995 为土壤环境质量二级标准($\text{pH}>7.5$)。

$9\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 污泥的情况下,土壤中 Hg 含量达到土壤环境质量二级标准(GB15618—1995)所需要的年限为最短,其次是 Zn,其他痕量元素所需年限较长(>30 年)。由表 4 可知,1S+0.5N 污泥处理($9\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$)时,土壤中痕量元素含量变化不显著,而 2S+0.5N 污泥处理($18\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$)时,土壤中 Hg、Zn 的含量增加显著。

将土壤中痕量元素浓度与污泥施加量进行相关性分析,分析结果见表 5。结果表明土壤中 Zn、Cu、

Pb、As、Hg 的含量($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)与土壤中污泥施加量($\text{kg}\cdot\text{hm}^{-2}$)之间存在着显著的线性回归关系。由表 5 可知,土壤中增施 $1\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 污泥,土壤中 Zn、Cu、Cd、Pb、As、Hg 含量分别增加 0.962、0.091、0.000 71、0.044、0.021、0.015 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。从痕量元素的累积速率和现行土壤环境质量标准考虑,北京污泥中 Hg 是优先考虑控制的元素,但是污泥中 Hg 对食品安全的影响还需要进行长期的大田实验研究。

2.2 污泥农用对小麦、玉米籽粒痕量元素含量的影响

施用污泥与相应的对照(0.5N)处理比较可知,施用污泥显著增加了小麦籽粒中 Zn、Cu 的含量,Cd、Cr、Ni、Pb、As、Hg 的含量没有显著增加,并且不同污泥用量处理小麦籽粒中 Cd、Cr、Ni、Pb、As、Hg 的含量差异不显著($P<0.05$);施用污泥显著增加了玉米籽粒中 Zn、Cr 的含量,Cu、Cd、Ni、Pb、As、Hg 的含量没有显著增加,并且不同污泥用量处理玉米籽粒中 Cu、Cd、Ni、Pb、As、Hg 的含量差异不显著($P<0.05$)。

施用污泥和化肥的处理与施用鸡粪的处理(表 6)比较表明,施用污泥和化肥的处理小麦籽粒中 Zn、Cu 的含量显著高于施用鸡粪的处理,小麦籽粒中 Cd、Cr、Ni、Pb、As、Hg 的含量之间差异不显著($P<$

表 5 土壤中痕量元素与污泥施用量的线性关系

Table 5 Correlation analysis between the amounts of biosolid and the concentrations of trace elements in soils

金属	GB 15618—1995/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	直线回 归方程	自由 度 n	相关性 R^2	推测 年限(年)
Zn	300	$y=0.962x+43.04$	4	0.921***	30
Cu	100	$y=0.091x+17.05$	4	0.868**	101
Cd	1	$y=0.000\ 71x+0.107$	4	0.918***	140
Pb	350	$y=0.044x+10.25$	4	0.807*	858
As	25	$y=0.021x+10.32$	4	0.932***	78
Hg	1	$y=0.015x+0.116$	4	0.922***	7

注:* 为 $P<0.10$; ** 为 $P<0.05$; *** 为 $P<0.01$; 使用年限为以不超过二级土壤环境质量标准为参考,计算每年施用 $9\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 污泥可以施用的年数。

表 6 不同处理对小麦籽粒痕量元素含量的影响($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)Table 6 The concentrations of trace elements in wheat grains in different treatments ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)

处理	Zn	Cu	Cr	Ni	Cd	Pb	As	Hg
0.5N	20.3±3.1a	4.7±0.6ab	1.5±0.1bc	0.17±0.05a	0.03±0.002c	0.09±0.01a	0.06±0.01a	0.013±0.003a
0.5S+0.5N	27.2±3.2b	5.2±0.6bc	1.5±0.1bc	0.10±0.04a	0.02±0.003bc	0.09±0.01a	0.07±0.02a	0.013±0.003a
1S+0.5N	29.5±2.0bc	5.7±0.5c	0.8±0.1a	0.10±0.02a	0.02±0.001ab	0.08±0.01a	0.06±0.01a	0.011±0.001a
2S+0.5N	33.5±1.4c	5.6±0.2c	0.9±0.1a	0.11±0.01a	0.02±0.004bc	0.11±0.01a	0.07±0.01ab	0.011±0.003a
4S+0.5N	42.8±13.4d	6.0±0.4c	0.9±0.1a	0.09±0.01a	0.03±0.001ab	0.11±0.02a	0.07±0.01ab	0.010±0.001a
1J+0.5N	20.5±0.9a	3.8±0.3a	1.0±0.1a	0.14±0.06a	0.02±0.002a	0.10±0.02a	0.09±0.01b	0.010±0.003a
GB 2715—2005	—	—	—	—	0.1	0.2	0.1	0.02

注:同列数值间不同字母表明 Duncan's 多重比较差异显著($P<0.05$)。

0.05);施用污泥和化肥的处理玉米籽粒中 Zn 的含量显著高于施用鸡粪的处理,玉米籽粒中 Cu、Cd、Cr、Ni、Pb、As、Hg 的含量之间差异不显著 ($P<0.05$)。因此,对于小麦、玉米籽粒中的痕量元素来说,施用污泥跟施用鸡粪效果基本一样,但要注意 Zn 的富集影响。

与粮食卫生标准(GB2715—2005)相比较(表 6、7)发现,小麦籽粒中 Cd、Pb、As、Hg 的含量都没有超过标准限量值;玉米籽粒中 Cd、As、Hg 的含量都没有超过标准限量值,但个别处理玉米籽粒中 Pb 的含量接近国家标准。数据表明,在污泥施用量小于 $36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 时土壤中痕量元素均未超出土壤环境质量二级标准,同时小麦和玉米籽粒中痕量元素含量也都符合粮食卫生标准。

将作物籽粒中痕量元素的浓度与污泥的施加量进行相关性分析,结果表明,作物籽粒中 Zn 的含量 ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)与土壤中污泥施加量 ($\text{t} \cdot \text{hm}^{-2}$)之间存在着显著的线性回归关系(图 1)。由图 1 可知,土壤中每增施 $1 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥,小麦、玉米籽粒中 Zn 的增加量分别为 0.570 和 $0.118 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$;施用污泥处理显著增加了小麦、玉米籽粒中 Zn 的含量,并且污泥施用于土壤后,植株体内痕量元素累积随污泥施用量的增加而增大。水稻、小麦、玉米等禾谷类作物对过量锌的适应性强,尤其是玉米,对过量锌既有拒吸作用,同时又具有

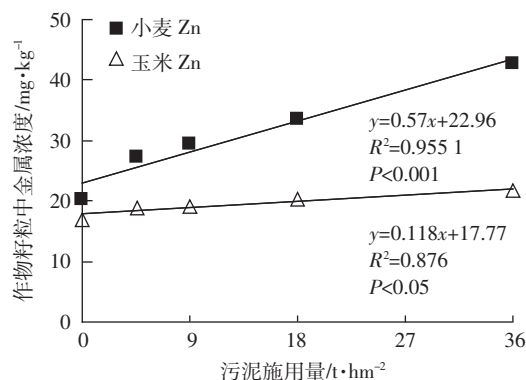


图 1 不同作物籽粒中 Zn 浓度与污泥施用量的关系

Figure 1 The relationship between Zn concentrations of grains and the application amounts of biosolid

耐高锌的能力^[7],但是对污泥施用后土壤中微生物的多样性和生态风险需要进一步研究。对于德州当季作物小麦、玉米来说,施用污泥跟施用化肥、鸡粪一样是比较安全的,但长期施用污泥对小麦、玉米籽粒中痕量元素有影响,还需要进行长期定位试验研究。

2.3 污泥农用对小麦、玉米秸秆痕量元素含量的影响

施用污泥处理与相应的对照(0.5N)比较,小麦秸秆中 Zn 和 Cu 的含量在高污泥用量处理 ($4\text{S}+0.5\text{N}$, $36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$)中显著增加 ($P<0.05$),对 Cd、Cr、Ni、Pb、As、Hg 的含量而言,施用污泥处理未显著增加;玉米秸秆中 Zn、

表 7 不同处理对玉米籽粒痕量元素含量的影响 ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)

Table 7 The concentrations of trace elements in corn grains in different treatments ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)

处理	Zn	Cu	Cr	Ni	Cd	Pb	As	Hg
0.5N	16.85±0.22a	1.51±0.15a	0.10±0.01a	0.14±0.04ab	0.001±0.001a	0.11±0.01ab	0.008±0.002ab	ND
0.5S+0.5N	18.77±0.84b	1.84±0.64a	0.34±0.01b	0.11±0.01ab	0.001±0.001a	0.06±0.02a	0.007±0.002ab	ND
1S+0.5N	19.18±0.50b	1.62±0.17a	0.41±0.14c	0.16±0.04ab	0.001±0.001a	0.22±0.01c	0.009±0.001b	ND
2S+0.5N	20.40±0.47c	1.48±0.39a	0.40±0.23c	0.06±0.02c	0.001±0.003a	0.15±0.01b	0.009±0.002b	0.001±0.000 3a
4S+0.5N	21.63±0.24d	1.49±0.39a	0.28±0.05b	0.06±0.01c	ND	ND	0.010±0.002b	0.000 5±0.000 2a
1J+0.5N	16.74±0.41a	1.49±0.21a	0.39±0.17bc	0.09±0.04ab	ND	ND	0.013±0.002bc	0.000 2±0.000 2a
GB 2715—2005	—	—	—	—	0.1	0.2	0.1	0.02

注:同列数值的不同字母表明 Duncan's 多重比较差异显著 ($P<0.05$);ND 表示“未检出”。

表 8 不同处理对小麦秸秆痕量元素含量的影响 ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)

Table 8 The concentrations of trace elements in wheat straw in different treatments ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)

处理	Zn	Cu	Cr	Ni	Cd	Pb	As	Hg
0.5N	5.2±0.3a	2.2±0.1a	22.0±0.5a	13.3±0.6a	0.06±0.01a	1.8±0.1a	0.27±0.03a	0.017±0.002a
0.5S+0.5N	7.0±0.5ab	2.6±0.3ab	15.4±1.2a	10.4±0.8a	0.06±0.01a	1.7±0.1a	0.26±0.01a	0.020±0.003a
1S+0.5N	7.0±1.1ab	2.6±0.5ab	21.2±2.9a	13.3±1.9a	0.06±0.01a	1.9±0.2ab	0.29±0.02a	0.021±0.004a
2S+0.5N	7.8±2.8ab	2.6±0.1ab	20.0±2.1a	13.3±1.4a	0.06±0.01a	1.9±0.2ab	0.28±0.02a	0.020±0.00a
4S+0.5N	11.4±0.6b	2.8±0.3b	16.2±1.2a	11.1±0.9a	0.06±0.01a	1.9±0.1ab	0.28±0.03a	0.024±0.003a
1J+0.5N	6.3±0.7a	2.6±0.3ab	21.6±5.0a	12.9±3.7a	0.06±0.01a	2.3±0.1b	0.36±0.03b	0.025±0.004a

注:同列数值的不同字母表明 Duncan's 多重比较差异显著 ($P<0.05$)。

表 9 不同处理对玉米秸秆痕量元素含量的影响($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)Table 9 The concentrations of trace elements in corn straw in different treatments ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)

处理	Zn	Cu	Cr	Ni	Cd	Pb	As	Hg
0.5N	12.75±1.2ab	6.83±0.4a	4.29±0.83ab	0.44±0.05a	0.050±0.00ab	0.85±0.2a.	0.23±0.004b	0.017±0.017b
0.5S+0.5N	16.57±1.3ab	7.26±0.6ab	5.90±2.36b	0.43±0.06a	0.065±0.00bc	0.90±0.1a	0.21±0.014ab	0.014±0.014ab
1S+0.5N	20.53±3.4b	7.67±0.7b	7.31±0.91bc	0.55±0.06a	0.052±0.01ab	0.72±0.1a	0.20±0.027ab	0.018±0.018aab
2S+0.5N	29.13±5.2c	8.29±0.3bc	8.86±0.32c	0.52±0.03a	0.079±0.001c	1.02±0.1a	0.28±0.03bc	0.022±0.000 3a
4S+0.5N	34.95±4.3c	8.78±0.2c	7.86±1.29bc	0.50±0.11a	0.041±0.01ab	0.85±0.3a	0.20±0.05ab	0.018±0.018bab
1J+0.5N	11.59±0.9a	7.51±0.6b	7.82±1.20bc	0.50±0.08a	0.048±0.01ab	0.96±0.1a	0.29±0.02c	0.020±0.020bab

注: 同列数值的不同字母表明 Duncan's 多重比较差异显著($P < 0.05$)。

Cu、Cd、Cr 的含量在 4S+0.5N($36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$)污泥处理时显著增加($P < 0.05$), Ni、Pb、As、Hg 的含量施用污泥和化肥的处理与单施化肥处理差异不显著。

施用污泥和化肥的处理与施用鸡粪的处理比较(表 8、表 9), 施用等量污泥处理和鸡粪处理小麦秸秆中所有痕量元素都没有显著差异, 只有 4S+0.5N($36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$)污泥处理时小麦、玉米秸秆中 Zn 和 Cu 的含量才会显著高于施用鸡粪的处理, 所以, 施用 1S+0.5N($9 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$)处理的污泥用量跟施用等量的鸡粪对小麦、玉米秸秆中痕量元素含量的影响是一致的, 不会造成作物秸秆中痕量元素的累积, 但是 4S+0.5N($36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$)污泥处理时, 小麦秸秆中 Zn 和 Cu 的含量要比常规施用量的鸡粪要高。

将作物秸秆中痕量元素的浓度与土壤中污泥的施加量进行相关性分析, 结果表明小麦秸秆中 Zn、Hg 的含量和玉米秸秆中 Zn、Cu 的含量与土壤中污泥施加量之间存在着显著的线性回归关系(图 2)。由图 2 可知, 土壤中每年增施 $1 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥, 小麦秸秆中 Zn、Hg 的增加量分别为 0.157 、 $0.000 2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 玉米秸秆中 Zn、Cu 的增加量分别为 0.62 、 $0.053 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。按照金属的累积速率, 近期施用一定量的污泥不会造成小麦、玉米秸秆痕量元素的显著增加, 其对小麦、玉米秸秆痕量元素含量的影响跟鸡粪类似, 施用污泥后的小麦、玉米秸秆完全可以用作秸秆还田和其他用途, 不会造成痕量元素的二次污染。

2.4 施用污泥对痕量元素在土壤-小麦、玉米之间富集系数的影响

富集系数(bioaccumulation factor)也称吸收系数, 是指植物中某元素含量与土壤中该元素含量之比^[18], 富集系数表征土壤-植物体系中元素迁移的难易程度, 是反映植物将痕量元素吸收转移到体内能力大小的评价指标。富集系数越高, 表明植物地上部痕量元素富集质量分数大^[19]。

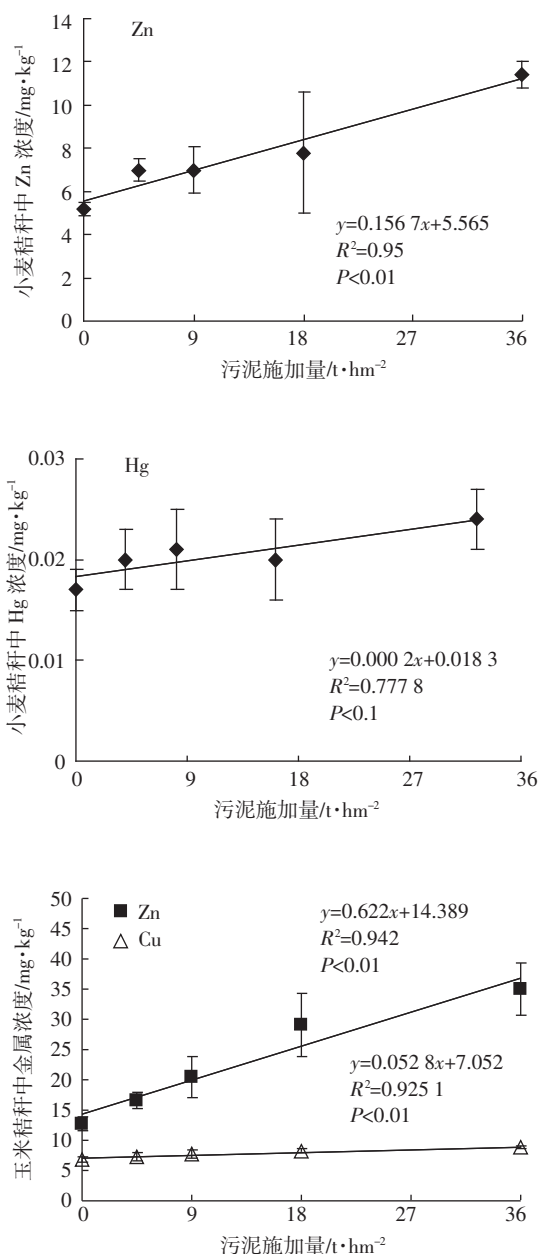


图 2 不同作物秸秆中痕量元素浓度与污泥施加量的关系
Figure 2 The relationship between the concentrations of trace elements in straw and the application amounts of biosolid

由表 10、11 可知,小麦、玉米秸秆和籽粒对痕量元素的富集系数均小于 1,可以看出,小麦和玉米对痕量元素的富集能力较弱。总体而言,小麦籽粒中 Zn 和 Cu 的浓度明显高于秸秆,而小麦籽粒中 Cr、Ni、Pb、Cd、As、Hg 浓度明显低于秸秆;对小麦籽粒而言,Zn、Cu 和 Cd 的富集系数(0.204~0.546)高于其他痕量元素的富集系数(0.004 0~0.058 2);小麦秸秆中 Cr、Ni 和 Cd 的富集系数(0.345~0.516)高于其他痕量元素的富集系数(0.026~0.170);除 Zn 之外,玉米秸秆中 Cu、Cr、Ni、Pb、Cd、As、Hg 的浓度明显高于籽粒;对玉米籽粒而言,Zn 的富集系数(0.357)远高于其他痕量元素的富集系数(0.000 82~0.087 6);玉米秸秆中 Zn、Cu 和 Cd 的富集系数(0.394~0.495)高于其他痕量元素的富集系数(0.002 11~0.125);除 Ni 和 Pb 小麦和玉米籽粒的富集系数相近外,对其他痕量元素而言,小麦籽粒的富集系数显著高于玉米籽粒。

对作物秸秆、籽粒的富集系数进行显著性分析,结果(表 10、11)显示,随着污泥用量的增加,玉米秸秆中的 Zn、Cr 和 Ni、玉米籽粒中的 Cr 和小麦籽粒中的 Zn 的富集系数显著增加($P<0.05$),玉米秸秆中的 Hg、玉米籽粒中的 Zn、小麦籽粒、秸秆中的 Cr、Ni、

表 10 小麦秸秆、籽粒痕量元素的富集系数

Table 10 Bioaccumulation factors of wheat straw and grains for trace elements

痕量元素	植物部位	处理					平均值
		0.5N	0.5S+0.5N	1S+0.5N	2S+0.5N	4S+0.5N	
Zn	秸秆	0.125a	0.151a	0.139a	0.116a	0.153a	0.137
	籽粒	0.489a	0.587b	0.585b	0.497a	0.573b	0.546
Cu	秸秆	0.132a	0.149a	0.146a	0.133a	0.140a	0.140
	籽粒	0.281a	0.297a	0.320ab	0.287a	0.300a	0.297
Cr	秸秆	0.408a	0.234c	0.381a	0.385a	0.315b	0.345
	籽粒	0.027a	0.022 8ab	0.014 4b	0.017 3b	0.017 5b	0.020
Ni	秸秆	0.478c	0.324a	0.469c	0.500c	0.414b	0.437
	籽粒	0.0061b	0.003 1a	0.003 5a	0.004 1a	0.003 4a	0.004
Cd	秸秆	0.541a	0.541ab	0.545a	0.508ab	0.444b	0.516
	籽粒	0.270a	0.180c	0.181c	0.169c	0.222b	0.204
Pb	秸秆	0.178a	0.160a	0.183a	0.165a	0.162a	0.170
	籽粒	0.008a	0.008 5a	0.007 7a	0.009 6a	0.094a	0.025 7
As	秸秆	0.026a	0.025 0a	0.027 9a	0.025 9a	0.025 2a	0.026
	籽粒	0.005a	0.006 7a	0.005 8a	0.006 5a	0.006 3a	0.006 2
Hg	秸秆	0.155a	0.133a	0.091 3b	0.040 0c	0.038 7c	0.091 6
	籽粒	0.118a	0.086 7b	0.047 8c	0.022 2c	0.016 1d	0.058 2

注:富集系数的计算方法为小麦地上部痕量元素含量与土壤痕量元素含量比值的百分数;同行数值的不同字母表明 Duncan's 多重比较差异显著($P<0.05$),下同。

表 11 玉米秸秆、籽粒痕量元素的富集系数

Table 11 Bioaccumulation factors of corn straw and grains for trace elements

痕量元素	植物部位	处理					平均值
		0.5N	0.5S+0.5N	1S+0.5N	2S+0.5N	4S+0.5N	
Zn	秸秆	0.307a	0.357ab	0.407ab	0.432b	0.468b	0.394
	籽粒	0.406a	0.405a	0.381b	0.303b	0.289b	0.357
Cu	秸秆	0.410a	0.415a	0.431a	0.424a	0.440a	0.424
	籽粒	0.091a	0.105a	0.091a	0.076a	0.075a	0.087 6
Cr	秸秆	0.079 6a	0.089 7a	0.131b	0.171b	0.153b	0.125
	籽粒	0.001 9a	0.005 2ab	0.007 4b	0.007 8b	0.005 5ab	0.005 6
Ni	秸秆	0.015 9a	0.013 4a	0.019 4b	0.0319 6b	0.0187a	0.019 9
	籽粒	0.005 1b	0.003 4ab	0.005 5b	0.002 1a	0.002 4a	0.003 7
Cd	秸秆	0.447b	0.584c	0.471bc	0.667cd	0.308a	0.495
	籽粒	0.002 2	—	—	0.009 3	—	0.005 8
Pb	秸秆	0.083 8a	0.085 0a	0.069 8a	0.088 8a	0.073 1a	0.080 1
	籽粒	0.011 1b	0.005 8a	0.020 9d	0.013 0c	—	0.012 7
As	秸秆	0.021 7a	0.020 3a	0.019 3a	0.026 1b	0.017 9a	0.021 1
	籽粒	0.000 7a	0.000 7a	0.000 9a	0.000 9a	0.000 9a	0.000 82
Hg	秸秆	0.151a	0.095 4b	0.078 04b	0.043 3c	0.029 7c	0.079 5
	籽粒	—	—	0.002 0	0.000 8	0.001 4	0.001 4

Cd、Hg 的富集系数显著减小($P<0.05$),而 Cu 和 As 在玉米和小麦的籽粒和秸秆中均无显著变化;高污泥施用量时 Hg 从土壤到秸秆和籽粒的富集系数明显降低,这是因为污泥施用量大于等于 $18 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 时,显著增加了土壤中 Hg 的含量,但是并没有显著增加秸秆和籽粒中 Hg 的含量。因为污泥中绝大多数痕量元素以难溶态存在,植物有效性较低^[20]。

3 结论

施用污泥后,尤其是高施用量处理(4S+0.5N, $36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$),土壤中 Zn、Cu、Cd、Pb、As 和 Hg 的含量均显著增加。增施 $1 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥,土壤中 Zn、Cu、Cd、Pb、As 和 Hg 含量分别增加 0.962、0.091、0.000 71、0.044、0.021 和 $0.015 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,但是在污泥施用量小于 $36 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 时土壤中痕量元素均未超出土壤环境质量二级标准,同时小麦和玉米籽粒中痕量元素含量也都符合粮食卫生标准。作物籽粒中 Zn 含量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)与土壤中污泥施加量($\text{kg} \cdot \text{hm}^{-2}$)之间存在着显著的线性回归关系,土壤中增施 $1 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥,小麦和玉米籽粒中 Zn 含量分别增加 0.570 和 $0.118 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

除 Ni 和 Pb 小麦和玉米籽粒的富集系数相近外,对其他痕量元素而言,小麦籽粒的富集系数显著高于玉米籽粒。对小麦籽粒而言,Zn、Cu 和 Cd 的富集系数

(0.204~0.546) 高于其他痕量元素的富集系数(0.004 0~0.058 2)。施用污泥后, 小麦籽粒中 Zn 的富集系数显著提高, 而玉米籽粒中 Zn 的富集系数显著降低; Cu 和 As 在玉米和小麦的籽粒和秸秆中的富集系数均无显著变化。

从痕量元素的累积速率和现行土壤环境质量标准考虑, 北京污泥中 Hg 是优先考虑控制的元素, 但是污泥中 Hg 对食品安全的影响还需要进行长期的农田试验研究。

参考文献:

- [1] Lavado R S, Rodriguez M B, Taboada M A. Treatment with biosolids affects soil availability and plant uptake of potentially toxic elements[J]. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 2005, 109: 360-364.
- [2] McLaughlin M J, Whatmuff M, Heemsbergen D, et al. A field investigation of solubility and food chain accumulation of biosolid-cadmium across diverse soil types[J]. *Environ Chem*, 2006, 3: 428-432.
- [3] 王新, 周启星, 陈涛, 等. 污泥土地利用对草坪草及土壤的影响[J]. *环境科学*, 2003, 24(2): 50-53.
- WANG Xin, ZHOU Qi-xing, CHEN Tao, et al. Effects of land utilization of sewage sludge on grass and soils[J]. *Chinese Journal of Environmental Science*, 2003, 24(2): 50-53.
- [4] 莫测辉, 蔡全英, 吴启堂, 等. 微生物方法降低城市污泥的痕量元素含量研究进展[J]. *应用与环境生物学报*, 2001, 7(5): 511-515.
- MO Ce-hui, CAI Quan-ying, WU Qi-tang, et al. Research advances of microbiological method for heavy metal removal from municipal sludge[J]. *Chinese Journal of Applied and Environmental Biology*, 2001, 7(5): 511-515.
- [5] Corey R B, King L D, Lue-Hing C, et al. Effects of sludge properties on accumulation of trace elements by crops//Land application of sludge, food chain implications; Page, A. L. (ed.); Lewis Publishers: Chelsea, MI, 1987: 25-51.
- [6] Berti W R, Jacobs L W. Chemistry and phytotoxicity of soil trace elements from repeated sludge application[J]. *Journal of Environmental Quality*, 1996, 25: 1025-1032.
- [7] Walter I, Martínez F, Cala V. Heavy metal speciation and phytotoxic effects of three representative sewage sludges for agricultural uses[J]. *Environmental Pollution*, 2006, 139: 507-514.
- [8] 马利民, 陈玲, 马娜, 等. 几种花卉植物对污泥中铅的富集特征[J]. *生态学杂志*, 2005, 24(6): 644-647.
- MA Li-min, CHEN Ling, MA Na, et al. Characters of flower plants for lead enrichment from sewage sludge[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2005, 24(6): 644-647.
- [9] 周立祥, 胡霁堂, 戈乃珍, 等. 城市污泥土地利用研究[J]. *生态学报*, 1999, 19(2): 185-193.
- ZHOU Li-xiang, HU Ai-tang, GE Nai-fen, et al. Study on utilization of municipal sewage sludge in farmland and forest land[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 1999, 19(2): 185-193.
- [10] 乔显亮, 骆永明, 吴胜春. 污泥的土地利用及其环境影响[J]. *土壤学报*, 2000(2): 79-85.
- QIAO Xian-liang, LUO Yong-ming, WU Sheng-chun. Land use of sewage sludge and its environmental impact[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2000(2): 79-85.
- [11] 李艳霞, 陈同斌, 罗维, 等. 中国城市污泥有机质及养分含量与土地利用[J]. *生态学报*, 2003, 23(11): 2464-2474.
- LI Yan-xia, CHEN Tong-bin, LUO Wei, et al. Contents of organic matter and major nutrients and the ecological effect related to land application of sewage sludge in China[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2003, 23(11): 2464-2474.
- [12] 王新, 周启星. 污泥堆肥土地利用对树木生长和土壤环境的影响[J]. *农业环境科学学报*, 2005, 24(1): 174-177.
- WANG Xin, ZHOU Qi-xing. Effects of land utilization of sewage sludge compost on tree growth and soil environment [J]. *Journal of Agro-environmental Science*, 2005, 24(1): 174-177.
- [13] 邹绍文, 张树清, 王玉军, 等. 中国城市污泥的性质和处置方式及土地利用前景[J]. *中国农学通报*, 2005, 21(1): 198-201.
- ZOU Shao-wen, ZHANG Shu-qing, WANG Yu-jun, et al. Character and disposal of municipal sludge and its prospect of using on farmland and forestland in China[J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2005, 21(1): 198-201.
- [14] 赵鸣, 吴广芬, 李刚. 污泥资源化利用的途径与分析[J]. *环境科学与技术*, 2005, 28(2): 92-94.
- ZHAO Ming, WU Guang-fen, LI Gang. Analysis of sludge resource reuse[J]. *Chinese Environmental Science and Technology*, 2005, 28(2): 92-94.
- [15] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 科学出版社, 1999.
- LU Ru-kun. Method of analysis in soil and agrochemistry[M]. Beijing: Science Press, 1999.
- [16] 鲍士旦. 土壤农化分析[M]. 北京: 中国农业出版社, 2000.
- BAO Shi-dan. Soil and agricultural chemistry analysis[M]. Beijing: Chinese Agricultural Science Press, 2000.
- [17] 李惠英, 陈素英, 王骥. 铜、锌对土壤-植物系统的生态效应及临界含量[J]. *农村生态环境*, 1994, 10(2): 22-24.
- LI Hui-ying, CHEN Su-ying, WANG Huo. Study on the fates of Cu and Zn in soil-plant system as well as their critical contents[J]. *Rural Eco-Environment*, 1994, 10(2): 22-24.
- [18] 周启星, 宋玉芳. 污染土壤修复原理与方法[M]. 北京: 科学出版社, 2004.
- ZHOU Qi-xing, SONG Yu-fang. Principles and methods for remediation of contaminated soils[M]. Beijing: Science Press, 2004.
- [19] 刘维涛, 张银龙, 陈喆敏, 等. 矿区绿化树木对镉和锌的吸收与分布[J]. *应用生态学报*, 2008, 19(4): 752-756.
- LIU Wei-tao, ZHANG Yin-long, CHEN Zhe-min, et al. Cadmium and zinc absorption and distribution in various tree species in a mining area[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2008, 19(4): 752-756.
- [20] 郭廊兰, 田若涛, 王雁卿, 等. 城市污泥和污泥垃圾堆肥作为肥源对作物重金属积累的影响[J]. *农业环境保护*, 1995, 14(2): 67-71.
- GUO Mei-lan, TIAN Ru-tao, WANG Yan-qing, et al. Effects of municipal sewage sludge and its compost as fertilizers on heavy metal accumulation in crop[J]. *Agro-Environmental Protection*, 1995, 14(2): 67-71.