

华北地区农田土壤镉来源及大气沉降的贡献

刘进, 潘月鹏, 师华定

引用本文:

刘进, 潘月鹏, 师华定. 华北地区农田土壤镉来源及大气沉降的贡献[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(8): 1698–1708.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-1438>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

广西某采选废矿区重金属生态风险与源汇关系

毛志强, 田康, 刘本乐, 张晓辉, 卞子金, 黄标, 袁旭音, 吴龙华, 罗栋源

农业环境科学学报. 2021, 40(5): 987–998 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1338>

植物塘+人工湿地系统对灌溉水净化及稻米镉的阻控效果

刘寿涛, 何钟响, 许蒙, 李丹阳, 罗海艳, 刘孝利, 铁柏清

农业环境科学学报. 2019, 38(5): 1060–1068 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-1216>

基于APCS-MLR受体模型的农田土壤重金属源解析

霍明珠, 高秉博, 乔冬云, SainbuyanBayarsaikhan, 安毅, 霍莉莉

农业环境科学学报. 2021, 40(5): 978–986 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1277>

畜禽粪便中铜和锌污染现状及风险分析

袁凯, 熊苏雅, 梁静, 李彦明, 乔玉辉, 李花粉, 陈清

农业环境科学学报. 2020, 39(8): 1837–1842 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0142>

前期灌溉养殖废水和再生水对土壤吸附镉能力的影响

李宝贵, 刘源, 陶甄, 赵志娟, 樊涛, 李中阳

农业环境科学学报. 2021, 40(6): 1244–1255 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1519>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

刘进, 潘月鹏, 师华定. 华北地区农田土壤镉来源及大气沉降的贡献[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(8): 1698–1708.

LIU J, PAN Y P, SHI H D. Atmospheric deposition as a dominant source of cadmium in agricultural soils of north China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(8): 1698–1708.



开放科学 OSID

华北地区农田土壤镉来源及大气沉降的贡献

刘进^{1,2}, 潘月鹏^{1,2*}, 师华定³

(1. 中国科学院大气物理研究所, 大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 生态环境部土壤与农业农村生态环境监管技术中心, 北京 100012)

摘要:为研究农田土壤重金属镉(Cd)的来源,采用源清单法统计了华北地区(北京、天津、河北和山东)大气沉降、灌溉水、畜禽粪便、化肥施用和市政污泥5种途径对农田土壤Cd的输入量。结果表明:2005—2009年华北农田土壤Cd的输入量范围为1.56~2.63 mg·m⁻²·a⁻¹,其中灌溉水输入贡献最大(63.0%),其次为大气沉降(30.9%)、畜禽粪便(5.2%)、化肥施用(0.6%)和市政污泥(0.3%)。2015—2019年华北农田Cd的输入量减小为0.22~0.35 mg·m⁻²·a⁻¹,其主要来源变为大气沉降,贡献占比56.5%;灌溉水、畜禽粪便、化肥施用和市政污泥占比分别为13.7%、23.8%、3.9%和2.1%。除了化肥施用,其他4种源的Cd输入量在过去15 a中均呈现不同程度的下降趋势,大气沉降取代灌溉水成为近年来华北地区农田土壤Cd的主要来源。

关键词:镉; 农田土壤; 源清单; 大气沉降; 华北地区

中图分类号:X53; X51 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2022)08-1698-11 doi:10.11654/jaes.2021-1438

Atmospheric deposition as a dominant source of cadmium in agricultural soils of north China

LIU Jin^{1,2}, PAN Yuepeng^{1,2*}, SHI Huading³

(1. Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Beijing 100029, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Technical Centre for Soil, Agriculture and Rural Ecology and Environment, Ministry of Ecology and Environment, Beijing 100012, China)

Abstract: An inventory of Cd inputs to agricultural soils in north China during 2005—2019 is presented, which states the major sources including atmospheric deposition, sewage sludge, livestock manures, inorganic fertilizer, and irrigation water. Across the four major cropland areas in Beijing, Tianjin, Hebei, and Shandong, irrigation water was the main source of Cd accumulation during the period 2005—2009, accounting for 63.0% of total inputs (1.56~2.63 mg·m⁻²·a⁻¹), followed by atmospheric deposition (30.9%), livestock manures (5.2%), inorganic fertilizers (0.6%), and sewage sludge (0.3%). However, a decade later, total Cd inputs to agricultural soils in the target region significantly reduced to 0.22~0.35 mg·m⁻²·a⁻¹. During 2015—2019, atmospheric deposition became an important source, responsible for an estimated 56.5% of total Cd inputs, followed by livestock manure (23.8%), irrigation water (13.7%), inorganic fertilizers (3.9%), and sewage sludge (2.1%). These findings suggested that the major source of Cd in agricultural soils shifted from irrigation water to atmospheric deposition during the past 15 years.

Keywords: cadmium(Cd); agricultural soil; source inventory; atmospheric deposition; north China

收稿日期: 2021-12-11 录用日期: 2022-03-10

作者简介: 刘进(1991—), 男, 山东禹城人, 博士研究生, 研究方向为大气重金属干湿沉降。E-mail: liujin@mail.iap.ac.cn

*通信作者: 潘月鹏 E-mail: panyuepeng@mail.iap.ac.cn

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFD0800302)

Project supported: The National Key Research and Development Program of China(2016YFD0800302)

重金属在土壤中有较强的迁移能力和毒性^[1],严重威胁农作物生长和农产品安全^[2]。重金属污染是全球普遍关注的环境问题^[3-4]。2014年《全国土壤污染状况调查公报》显示,我国土壤环境状况总体不容乐观,全国耕地土壤点位超标率为19.4%,主要污染物为镉(Cd)、镍(Ni)、铜(Cu)等重金属。2021年11月2日,中共中央、国务院发布《关于深入打好污染防治攻坚战的意见》,提出要深入推进农用地土壤污染防治和安全利用,实施农用地土壤Cd等重金属污染源头防治行动。精准识别农田Cd的来源是实施土壤Cd污染防治的科学基础。

土壤重金属的源识别方法主要包括因子分析法、主成分分析法、聚类分析法和富集因子法等,这些方法主要用于定性识别重金属来源。在定量源解析方面,常用的方法有源清单法、化学质量平衡法、正定矩阵因子分解法和同位素比值法等^[5],后3种受体方法可以在点位上解析重金属的来源,但在区域尺度上的应用还存在一定局限性^[5],而源清单法主要是通过活动水平和排放因子自下而上估算不同源的重金属排放量^[5]。受限于统计资料的空间尺度,源清单法比较适合在县域尺度以上探讨农田重金属的来源。1974年,荷兰首次应用源清单法定量估算了农田土壤重金属的输入^[6]。随后,源清单法被英国和法国等欧洲国家广泛使用^[6-7]。源清单法也曾用于我国国家尺度农田土壤重金属输入的调研^[8],但在区域尺度尤其是华北地区的应用研究较少^[2]。

2014年《全国土壤污染状况调查公报》中统计的土壤Cd点位超标率为7.0%,是超标率最高的重金属。华北地区作为我国重要的粮食产地,其土壤Cd污染也较为严重^[9]。因此,厘清华北地区农田土壤Cd的输入途径及其各自的贡献具有重要的科学意义和迫切的现实需求。基于已有的文献报道,农田土壤Cd的主要输入途径包括大气沉降、灌溉水、畜禽粪便、化肥施用和市政污泥等^[2,6-8,10]。本文基于文献统计和源清单法对华北地区农田土壤Cd的上述5种输入源进行了统计分析,旨在量化各污染源对农田土壤Cd的输入量和贡献率及其时空变化,以期为华北地区农田重金属污染防治提供科学参考。

1 材料与方法

除了大气Cd沉降量来自文献中的直接观测数据,其他源的输入量均使用清单调查法计算,即活动水平乘以排放因子。其中,活动水平数据来自行业统

计资料,排放因子数据来自文献。文献调研主要基于Web of Science、Science Direct、中国知网数据库(CNKI)和维普中文科技期刊全文数据库。检索时间段为2005—2019年,检索内容包括华北地区大气Cd沉降量以及畜禽粪便、灌溉水、肥料和市政污泥中Cd的含量,检索结果见图1。

1.1 大气沉降

大气Cd沉降观测数据来自文献^[1,10-14],包括干沉降和湿沉降,为Cd的大气沉降总量, $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。考虑到华北地区大气污染的特殊性,即在空间分布上具有区域性特征^[15]、在时间演变上具有周期性特征^[16],上述文献资料可在一定程度上体现华北地区大气Cd沉降特征。

1.2 灌溉水

灌溉水的Cd输入量计算公式:

$$A_{ij} = \sum_j N_j C_{ij} / S$$

式中: A_{ij} 为灌溉水Cd输入量, $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$; N_j 为灌溉用水量(来自统计年鉴), $\text{L} \cdot \text{a}^{-1}$; C_{ij} 为灌溉水中Cd的含量(来自文献^[17-22]), $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; S 为耕地面积(来自统计年鉴,下同), m^2 。

1.3 畜禽粪便

畜禽粪便的Cd输入量计算公式:

$$A_{ij} = f \sum_j N_j P_j (1 - f_w) C_{ij} / S$$

式中: A_{ij} 为畜禽粪便Cd输入量, $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$; f 为畜禽粪便投入到农田的比例,30%^[2]; N_j 为每年的动物数量(来自统计年鉴),头; P_j 为畜禽每年的排泄系数^[2], $\text{kg} \cdot \text{a}^{-1}$ (鲜质量); f_w 为畜禽粪便含水率^[2]; C_{ij} 为畜禽粪便中Cd的含量(来自文献^[23-29]), $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (干质量); S 为耕地面积, m^2 。

1.4 化肥施用

化肥施用的Cd输入量计算公式:

$$A_{ij} = \sum_j N_j C_{ij} / S$$

式中: A_{ij} 为化肥施用的Cd输入量, $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$; N_j 为农田化肥施肥量(来自统计年鉴), $\text{kg} \cdot \text{a}^{-1}$; C_{ij} 为肥料中Cd的含量(来自文献^[1,30-34]), $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; S 为耕地面积, m^2 。

1.5 市政污泥

市政污泥的Cd输入量计算公式:

$$A_{ij} = f \sum_j N_j P_j (1 - f_w) C_{ij} / S$$

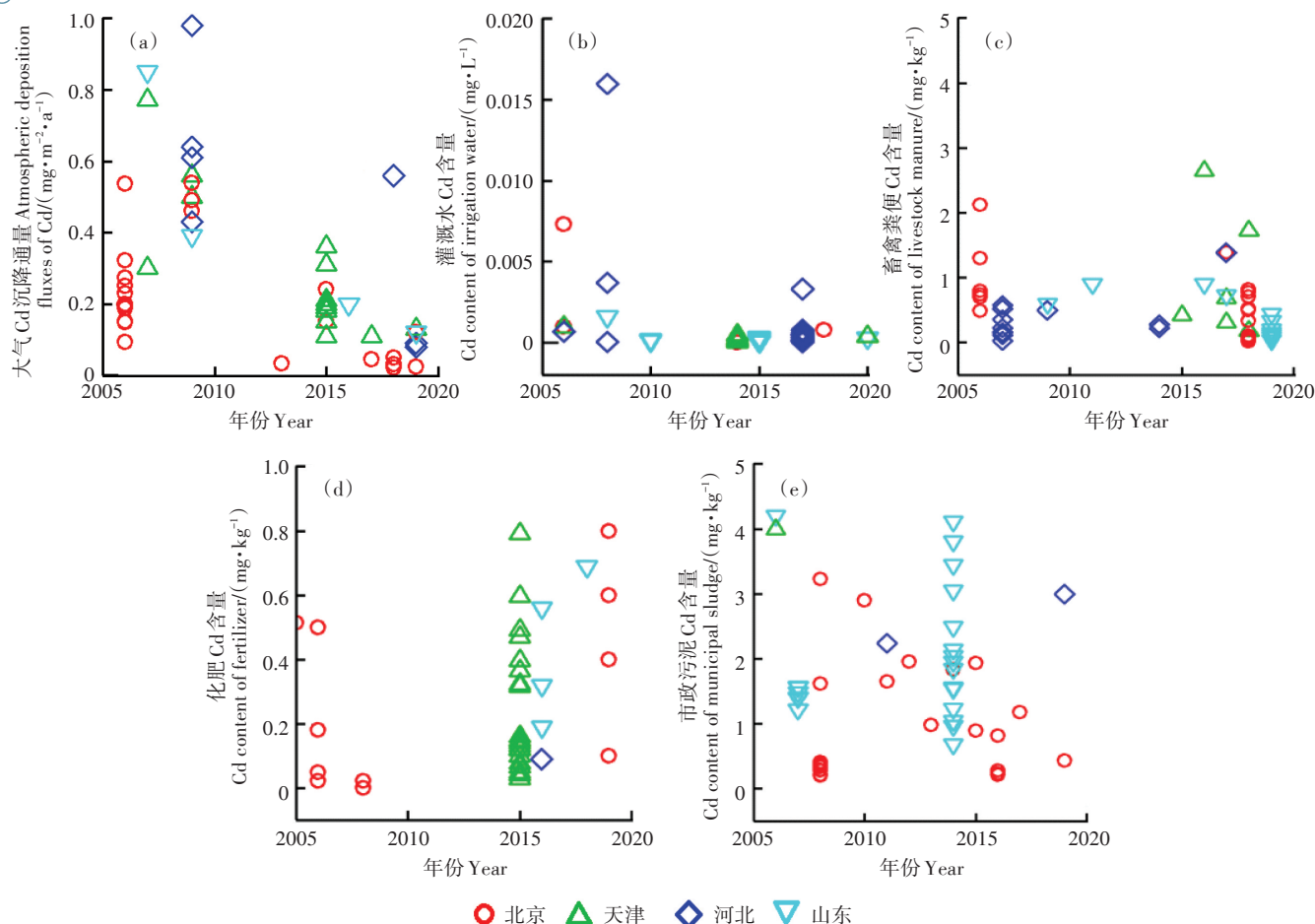


图1 大气Cd沉降通量和其他农田重金属输入源Cd含量

Figure 1 Atmospheric deposition fluxes of Cd and Cd content in different sources input agricultural soil

式中: A_{ij} 为市政污泥 Cd 输入量, $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$; f 为市政污泥投入到农田的比例, 10%^[2]; N_i 为废水排放量 (来自统计年鉴), $\text{kg} \cdot \text{a}^{-1}$; P_i 为污泥产生系数, 0.001^[2]; f_w 为污泥含水率, 80%^[2]; C_{ij} 为污泥中 Cd 的含量 (以干质量计, 来自文献[35–40]), $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; S 为耕地面积, m^2 。

2 结果与讨论

2.1 大气沉降 Cd 输入量变化

大气沉降向华北 4 省 (市) 农田土壤输入的 Cd 通量范围为 $0.02 \sim 2.90 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。由于相同年份的测量数据缺乏, 后续分析以 5 a 为一时间段, 重点讨论 2005—2009 年和 2015—2019 年两个时段的差异。从表 1 可以看出, 2005—2009 年华北地区大气 Cd 沉降量为 $0.55 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 明显高于国内外其他大部分站点相同时段或相近时段的观测结果。2015—2019 年, 华北地区大气 Cd 沉降量显著下降至 $0.16 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 该数值虽然高于相邻时段国外的观测结果, 但已经低于国内大部分地区的测量值。

与 2005—2009 年相比, 2015—2019 年华北 4 省 (市) 大气 Cd 的沉降量均呈现下降趋势 (图 2a), 降幅为 58.9%~82.9%, 平均降幅达 69.3%。华北大气 Cd 沉降量的显著下降与大气颗粒物的质量浓度和干沉降量的下降密切相关。以北京为例, 相比于 2005—2009 年, 2015—2019 年 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 和颗粒物干沉降通量分别下降了 18.1%、38.3% 和 34.9% (图 3a)。对于天津、河北和山东而言, 各省 (市) 环境状况公报发布的大气颗粒物浓度与 Cd 沉降通量的年际变化趋势也基本一致 (图 3b)。

2.2 其他途径 Cd 输入量变化

华北 4 省 (市) 灌溉水向农田土壤输入的 Cd 通量范围为 $0.03 \sim 2.15 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。其中, 2005—2009 年华北地区灌溉水 Cd 输入量 ($1.23 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$) 高于国内外其他地区; 但 2015—2019 年的输入量仅为 $0.04 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 在国内处于中等水平 (表 2)。与 2005—2009 年相比, 2015—2019 年各省 (市) 灌溉水 Cd 的输入量均呈现显著减少趋势, 降幅都超过了 95% (图 2b), 这

表1 近20年国内外大气Cd沉降量($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)

Table 1 Atmospheric Cd deposition of China and abroad in the past 20 years($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)

国家	站点	观测年份	Cd沉降量	参考文献
Country	Site	Period	Cd deposition	Reference
中国	华北地区	2005—2009	0.55	本研究
美国	德拉华湾	1995—1996	0.05	[41]
美国	切萨皮克湾	1995—1996	0.04	[41]
日本	能登町	2003—2005	0.30	[42]
芬兰	维罗拉赫蒂	2007	0.04	[3]
法国	科西嘉岛	2008—2010	0.13	[4]
中国	珠江三角洲	2001—2002	0.07	[43]
中国	广东南海市	2001—2002	0.20	[43]
中国	黑龙江绥化	2006—2007	0.40	[44]
中国	海南	2006—2007	0.10	[44]
中国	湖南长沙	2006—2007	1.60	[44]
中国	山西平遥	2006	0.40	[45]
中国	浙江嵊泗	2000—2001	0.10	[46]
中国	江苏宜兴	2009	0.40	[47]
中国	浙江湖州	2009	0.50	[47]
中国	湖北云梦县	2009—2010	0.70	[48]
中国	华北地区	2015—2019	0.16	本研究
古巴	加勒比海	2014—2016	0.03	[49]
哈萨克斯坦	乌拉尔斯克	2013—2018	0.06	[50]
尼泊尔	加德满都	2011—2012	0.10	[51]
中国	长江三角洲	2005—2018	0.26	[52]
中国	胶州湾	2015—2016	0.20	[53]
中国	大亚湾	2015—2017	0.20	[54]
中国	渤海湾	2016—2017	0.10	[55]
中国	湖南湘潭	2016—2018	1.10	[56]

与我国农田灌溉水质监管加强和农业用水效率逐年提高有关^[61]。

华北4省(市)畜禽粪便向农田土壤输入的Cd通量范围为 $0.03\sim0.17\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,2005—2009年和2015—2019年的平均值分别为 $0.10\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 和 $0.07\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,均低于国内外同时段所报道的结果^[8]。与2005—2009年相比,2015—2019年各省(市)畜禽粪便Cd的输入量均呈现减少趋势(图2c),降幅范围为15.1%~45.9%,这与我国对饲料添加剂安全性规范的严格监管^[69]和华北4省(市)畜禽饲养数量整体下降有关。其中,华北各省畜禽饲养数量从2005—2009年到2015—2019年的降幅范围为3.6%~45.9%。

华北4省(市)农田施肥Cd输入量范围为 $0.007\sim0.015\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,2005—2009年和2015—2019年两个时段的多年平均值均为 $0.01\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,该输入量低于国外同时期的结果,在国内同时期处于中等水平

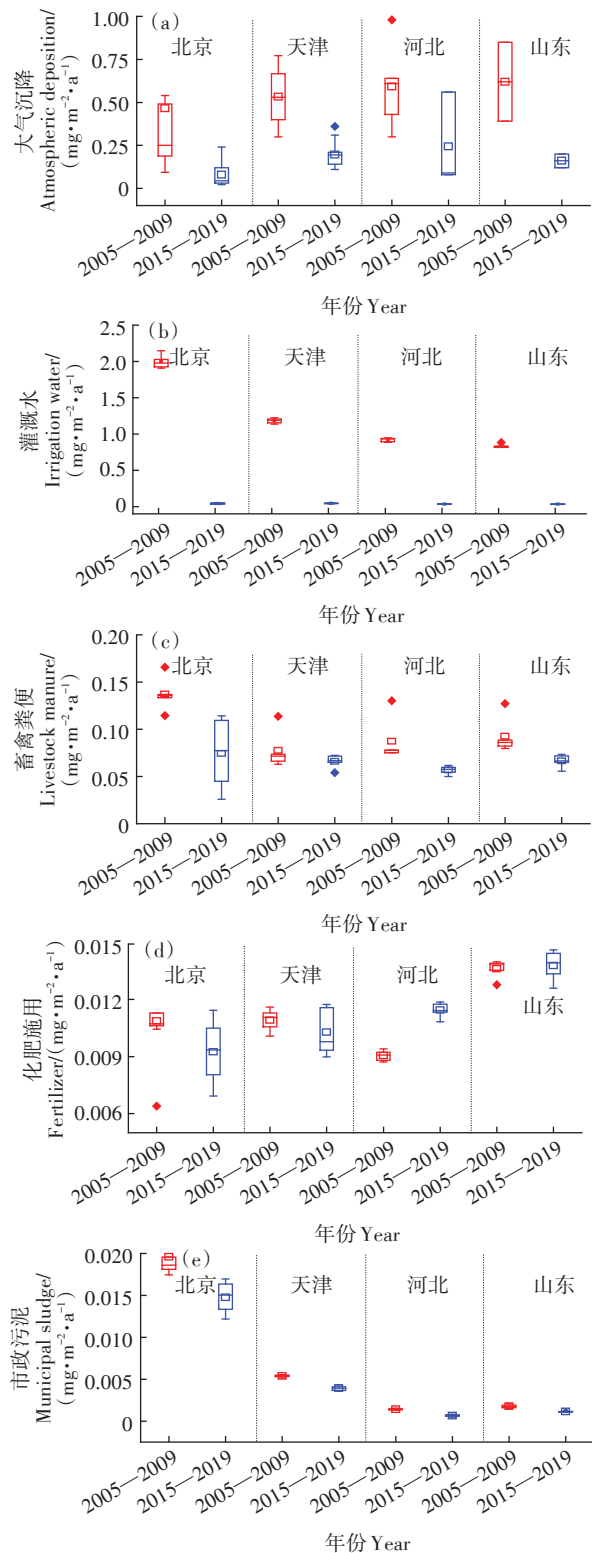
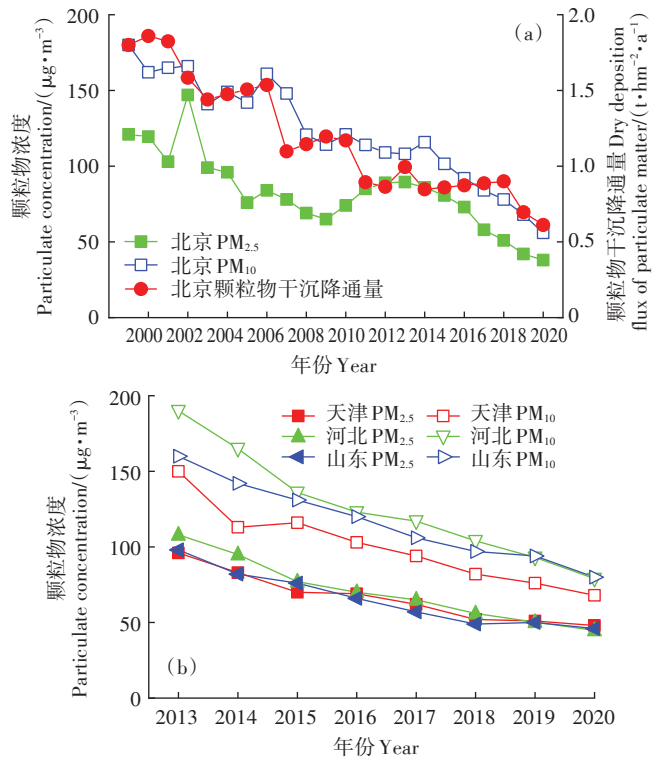


图2 华北地区农田土壤Cd的来源和输入量

Figure 2 Sources and fluxes of Cd input to agricultural soils in north China

(表3)。与2005—2009年相比,2015—2019年北京和天津施肥Cd输入量分别下降了14.8%和5.8%,而河



1999—2020年 PM_{10} 浓度、2013—2020年 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度、1999—2012年和2018—2020年颗粒物干沉降通量引自北京市环境公报；1999年 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度引自文献[57]，2000—2004年和2011—2012年 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度引自文献[58]，2005—2010年 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度引自文献[59]；2013—2014年颗粒物干沉降通量引自文献[60]

Concentrations of PM_{10} in 1999—2020, $\text{PM}_{2.5}$ in 2013—2020, dry deposition flux of particulate matter in 1999—2012 and 2018—2020 are derived from the Beijing ecology and environment statement; concentrations of $\text{PM}_{2.5}$ in 1999 is obtained from literature[57]; concentrations of $\text{PM}_{2.5}$ in 2000—2004 and 2011—2012 are obtained from literature[58]; concentrations of $\text{PM}_{2.5}$ in 2005—2010 is obtained from literature[59]; dry deposition flux of particulate matter in 2013—2014 is obtained from the literature[60]

图3 华北地区大气颗粒物质量浓度及其干沉降通量年际变化

Figure 3 Interannual variation of concentration and dry deposition of particulate matter in north China

北和山东分别上升了26.4%和1.2%(图2d)。由图1d可以看出,化肥中Cd平均浓度由2005—2009年的 $0.18\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 增加至2015—2019年的 $0.30\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,增幅为66.7%,这可以解释河北化肥施用Cd输入量的上升趋势。其他省(市)化肥源Cd输入量的年际变化可能与施肥量的减少有关。与2005—2009年相比,2015—2019年北京、天津和山东施肥量降幅分别为40.6%、24.5%和9.6%。尽管河北2015—2019年施肥量呈降低趋势,但比2005—2009年Cd输入量仍小幅增加了3.2%。因此,华北4省(市)农田施肥Cd输入量的变化主要受到施肥量的影响。

华北4省(市)通过市政污泥输入农田土壤Cd的

表2 近15年国内外灌溉水输入农田Cd通量($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)

Table 2 Cd input from irrigation water of China and abroad in the past 15 years($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)

国家 Country	站点 Site	观测年份 Period	Cd输入 Cd input	参考文献 Reference
中国	华北地区	2005—2009	1.23	本研究
英国	英格兰	2003	0.01	[6]
中国	全国范围	2005	0.02	[8]
中国	长江三角洲	2007—2008	0.565	[62]
中国	珠江三角洲	2007	0.37	[63]
中国	海南	2006—2007	0.11	[64]
中国	黑龙江	2006—2007	0.01	[44]
中国	华北地区	2015—2019	0.04	本研究
中国	江苏南京	2013	0.001	[65]
中国	广西临桂县	2014—2015	0.035	[66]
中国	四川成都	2014—2015	0.25	[66]
中国	湖南	2016	0.255	[67]
中国	浙江	2017	0.225	[68]

表3 近15年国内外化肥施用输入农田Cd通量($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)

Table 3 Cd input from fertilizer application of China and abroad in the past 15 years($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)

国家 Country	站点 Site	观测时段 Period	Cd输入 Cd input	参考文献 Reference
中国	华北地区	2005—2009	0.01	本研究
英国	英格兰	2003	0.16	[6]
中国	海南	2006—2007	0.32	[64]
中国	黑龙江	2006—2007	0.04	[44]
中国	天津	2007—2008	0.05	[13]
中国	珠江三角洲	2007	0.14	[63]
中国	长江三角洲	2007—2008	0.011	[62]
中国	华北地区	2015—2019	0.01	本研究
法国	阿尔萨斯	2012	0.09	[7]
埃及	索哈杰	2014	1.49	[70]
中国	江苏南京	2013	0.675	[65]
中国	浙江衢州	2019	0.015	[71]
中国	广东大宝山	2018—2019	0.007	[72]

通量范围为 $4.8\times 10^{-4}\sim 2.4\times 10^{-2}\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 2005—2009年和2015—2019年两个时段的多年平均值分别为 7.0×10^{-3} 和 $5.1\times 10^{-3}\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,该结果接近于法国和我国其他地区同时期平均水平^[17-8],但低于英国英格兰和埃及同时期报道的结果^[6,70]。与2005—2009年相比,2015—2019年华北4省(市)市政污泥输入量均呈现下降趋势(图2e),下降幅度为24.7%~53.7%。然而,各省(市)废水排放量均呈现上升趋势,这与市政污泥输入农田Cd通量的减小趋势相反。因此,废

水排放量的变化并不是市政污泥输入农田Cd通量减小的原因。真实的原因可能与我国进一步加强农用污泥污染物控制标准有关,1984年公布的《农用污泥污染物控制标准》(GB 4284—1984)中Cd的限值为 $20 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,而在2018年公布的标准中限值调整为 $15 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (GB 4284—2018)。

2.3 华北地区农田土壤Cd输入量和相对构成

2005—2009年北京、天津、河北和山东4省(市)输入农田土壤Cd的通量分别为 2.63 、 1.81 、 $1.61 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 和 $1.56 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。由图4可知,从区域平均情况来看,灌溉水输入占比最大,为63.0%,其次是大气沉降(30.9%)、畜禽粪便(5.2%)、化肥施用(0.6%)和市政污泥(0.3%)。

2015—2019年北京、天津、河北和山东4省(市)对农田土壤Cd的输入量分别为 0.22 、 0.32 、 $0.35 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 和 $0.27 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。由图5可知,从区域平均情况来看,大气沉降为主要输入源,贡献占比高达56.5%;其次是畜禽粪便,贡献占比为23.8%;灌溉水、化肥施用和市政污泥占比则分别为13.7%、3.9%和2.1%。与2005—2009年相比,2015—2019年大气沉降Cd的输入量下降了69.3%,灌溉水的Cd输入量降幅高达96.9%。这两个输入源虽然都呈现快速下降趋势,但降幅存在一定差异,最终导致大气沉降超过灌溉水成为农田Cd的主要输入源。

表4统计了近20年国内外农田土壤Cd输入清单中大气沉降的贡献比例。可以看出,2005—2009年,华北地区大气沉降的贡献占比(30.9%)接近于我国平均水平和三江平原地区,但低于英格兰和我国珠江三角洲;2015—2019年,华北地区大气沉降的贡献(56.5%)高于法国和我国江苏和浙江,但低于我国其他地区的报道结果。目前,大气沉降已成为华北地区农田土壤Cd输入的主要来源,这与我国2008—2018年源清单统计结果(63.2%)较为接近^[2]。为改善农田土壤环境质量,进一步控制农田土壤Cd的累积,未来需要通过进一步加强大气污染防治来减少大气Cd沉降量。

随着我国大气污染防治力度的加强,近年来华北地区大气Cd沉降量已进入下降通道^[11]。2016—2020年华北地区农田大气Cd的沉降量平均为 $0.03 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ ^[11],显著低于2008—2010年的 $0.54 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ ^[10]。为更有针对性地削减大气Cd沉降,建议加强大气颗粒物Cd的排放规律、粒径分布、相态变化、区域输送、沉降过程和溯源研究。大气中的Cd主要来自燃煤^[75]、化石燃料和生物质燃烧^[76]、冶金^[77]、机动车排放^[78]、扬尘和机械磨损过程等^[79]。这些来源在京津冀城市地区^[80]、工业地区^[76]、背景地区^[79]和农业地区^[11]的颗粒物或大气沉降源解析结果中均有发现,是需要重点管控的行业类型。同时,华北地区大气中的Cd

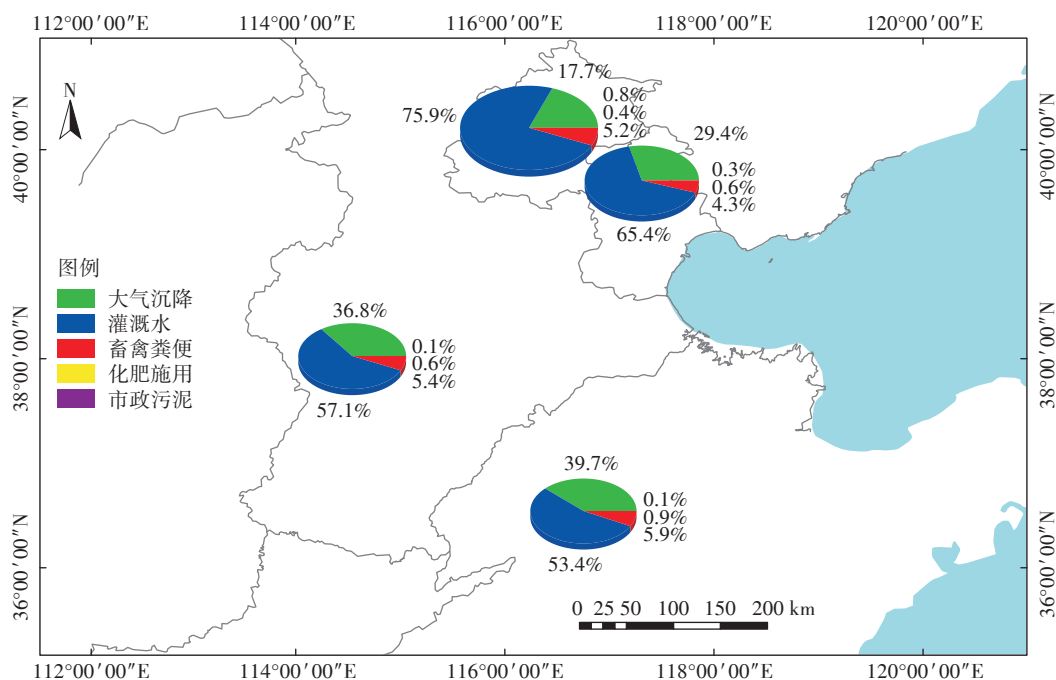


图4 华北地区2005—2009年农田土壤Cd输入量贡献占比空间分布

Figure 4 Spatial distribution of Cd input proportion to agricultural soils in north China from 2005 to 2009

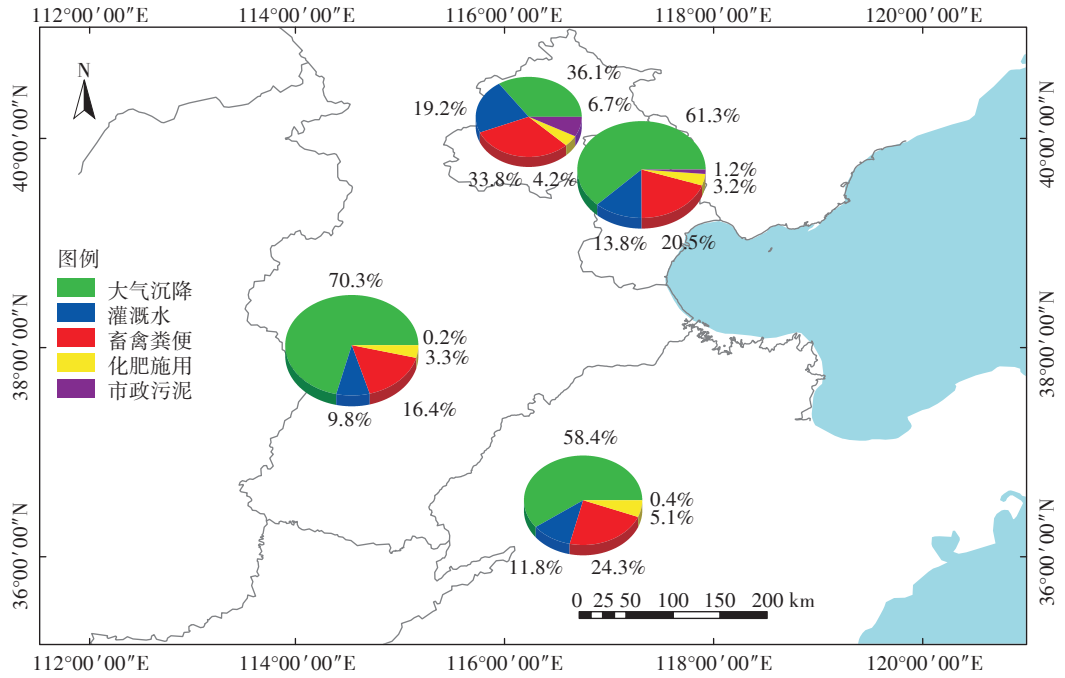


图 5 华北地区 2015—2019 年农田土壤 Cd 输入量贡献占比空间分布

Figure 5 Spatial distribution of Cd input proportion to agricultural soils in north China from 2015 to 2019

表 4 近 20 年国内外大气沉降输入农田土壤 Cd 的贡献

Table 4 Atmospheric Cd input to agricultural soil of China and abroad in the past 20 years

国家 Country	站点 Site	观测年份 Period	大气沉降贡献占比 Contribution of atmospheric deposition/%	参考文献 Reference
中国	华北地区	2005—2009	30.9	本研究
英国	英格兰	2000	52.5	[6]
中国	全国范围	2005	34.8	[8]
中国	珠江三角洲	2007	67.8	[63]
中国	三江平原	2000—2010	34.8	[73]
中国	北京延庆	2005—2006	83.2	[1]
中国	华北地区	2015—2019	56.5	本研究
法国	法国	2012	16.7	[7]
中国	全国范围	2008—2018	67.6	[2]
中国	中国北方	2008—2018	63.2	[2]
中国	中国南方	2008—2018	74.5	[2]
中国	江苏南京	2013	44.0	[65]
中国	湖南湘江	2015	83.0	[74]
中国	浙江	2017	34.0	[68]

主要存在于粗粒子中^[11],主要发生近源沉降,因此可以针对农田周围的重点排放源进行防控。但在雾霾期间,Cd 更容易富集在细颗粒物中而发生远距离的大气传输^[16],因此需要在区域尺度上进行协同减排。

3 结论

- (1) 2015—2019 年,大气沉降、灌溉水、畜禽粪便、化肥施用和市政污泥 5 种途径输入华北地区农田土壤 Cd 的总量为 $0.29\text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,这一数值比 2005—2009 年下降了 84.7%。
- (2) 与 2005—2009 年相比,2015—2019 年华北地区大气沉降、灌溉水、畜禽粪便和市政污泥 Cd 输入量的降幅分别为 69.3%、96.9%、33.3% 和 27.3%;但化肥施用 Cd 输入量仅在个别省(市)出现下降,区域平均增幅为 0.7%。
- (3) 2005—2009 年,灌溉水为华北地区农田土壤 Cd 的主要输入源(63.0%),其次为大气沉降(30.9%),畜禽粪便、化肥施用和市政污泥合计占比 6.1%。2015—2019 年,大气沉降取代了灌溉水成为华北地区农田土壤 Cd 的主要来源,贡献占比 56.5%,是未来需要重点关注的输入途径。

参考文献:

[1] 丛源,郑萍,陈岳龙,等.北京农田生态系统土壤重金属元素的生态风险评价[J].地质通报,2008,27(5):681–688. CONG Y, ZHENG P, CHEN Y L, et al. Ecological risk assessments of heavy metals in soils of the farmland ecosystem of Beijing, China[J]. *Geological Bulletin*

- of China, 2008, 27(5):681–688.
- [2] PENG H, CHEN Y L, WENG L P, et al. Comparisons of heavy metal input inventory in agricultural soils in north and south China: A review [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 660:776–786.
- [3] KYLLONEN K, KARLSSON V, YRUOHO-AIROLA T. Trace element deposition and trends during a ten year period in Finland[J]. *Science of the Total Environment*, 2009, 407(7):2260–2269.
- [4] DESBOEUF S K, NGUYEN E B, CHEVAILLIER S, et al. Fluxes and sources of nutrient and trace metal atmospheric deposition in the north-western Mediterranean[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18(19):14477–14492.
- [5] 陈雅丽, 翁莉萍, 马杰, 等. 近十年中国土壤重金属污染源解析研究进展[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(10):2219–2238. CHEN Y L, WENG L P, MA J, et al. Review on the last ten years of research on source identification of heavy metal pollution in soils[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2019, 38(10):2219–2238.
- [6] NICHOLSON F A, SMITH S R, ALLOWAY B J, et al. An inventory of heavy metals inputs to agricultural soils in England and Wales[J]. *Science of the Total Environment*, 2003, 311(2):205–219.
- [7] BELON E, BOISSON M, DEPORTES I Z, et al. An inventory of trace elements inputs to French agricultural soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 439:87–95.
- [8] LUO L, MA Y B, ZHANG S Z, et al. An inventory of trace element inputs to agricultural soils in China[J]. *Journal of Environmental Management*, 2009, 90(8):2524–2530.
- [9] 冯宇佳, 赵全利, 孙宏欣, 等. 华北地区菜田土壤-蔬菜重金属污染状况和健康风险评价[J]. 河北农业大学学报, 2017, 40(1):1–7. FENG Y J, ZHAO Q L, SUN H X, et al. Assessment of soil-vegetable contamination and health risk of heavy metals in vegetables around north China[J]. *Journal of Hebei Agricultural University*, 2017, 40(1):1–7.
- [10] PAN Y P, WANG Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at 10 sites in northern China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(2):951–972.
- [11] PAN Y P, LIU J, ZHANG L, et al. Bulk deposition and source apportionment of atmospheric heavy metals and metalloids in agricultural areas of rural Beijing during 2016–2020[J]. *Atmosphere*, 2021, 12(2):283.
- [12] 王卫星, 曹淑萍, 李攻科, 等. 津北大气干湿沉降重金属元素通量与评价研究[J]. 环境科学与管理, 2017, 42(5):46–51. WANG W X, CAO S P, LI G K, et al. Sedimentation flux and its evaluation of dry and wet atmospheric deposition of heavy metal elements in north Tianjin[J]. *Environmental Science and Management*, 2017, 42(5):46–51.
- [13] 侯佳渝, 刘金成, 曹淑萍, 等. 天津市城区大气干湿沉降地球化学研究[J]. 地质调查与研究, 2013, 36(2):131–135. HOU J Y, LIU J C, CAO S P, et al. Study on the dry and wet atmospheric deposition in the urban area of Tianjin[J]. *Geological Survey and Research*, 2013, 36(2):131–135.
- [14] 赵西强, 庞绪贵, 王增辉, 等. 利用原子荧光光谱-电感耦合等离子体质谱法研究济南市大气干湿沉降重金属含量及年沉降通量特征[J]. 岩矿测试, 2015, 34(2):245–251. ZHAO X Q, PANG X G, WANG Z H, et al. Study on the characteristics of heavy metal contents and annual fluxes of atmospheric dry and wet deposition in Jinan City using AFS and ICP-MS[J]. *Rock and Mineral Analysis*, 2015, 34(2):245–251.
- [15] FANG C L, WANG Z B, XU G. Spatial-temporal characteristics of PM_{2.5} in China: A city-level perspective analysis[J]. *Journal of Geographical Sciences*, 2016, 26(11):1519–1532.
- [16] TIAN S L, PAN Y P, LIU Z R, et al. Size-resolved aerosol chemical analysis of extreme haze pollution events during early 2013 in urban Beijing, China[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2014, 279:452–460.
- [17] 张汉珍, 王菲菲, 姜磊, 等. 东营市挑河和神仙沟的河水重金属污染评价[J]. 安全与环境学报, 2017, 17(4):1536–1542. ZHANG H Z, WANG F F, JIANG L, et al. Assessment of heavy metal pollution in the surface water of Tiaohe River and Shenxiangou Brook, Dongying City, Shandong[J]. *Journal of Safety and Environment*, 2017, 17(4):1536–1542.
- [18] 赵钰, 郝春明, 赵端, 等. 潮白河流域(燕郊段)水体重金属元素分布特征及污染评价初探[J]. 华北科技学院学报, 2018, 15(4):99–105. ZHAO Y, HAO C M, ZHAO D, et al. Study on the distribution characteristics and pollution evaluation of heavy metal elements in water bodies in Chaobai River(Yanjiao section)[J]. *Journal of North China Institute of Science and Technology*, 2018, 15(4):99–105.
- [19] 朱雪超, 刘淑芳, 侯冬利, 等. 保定市郊灌溉水质分析及灌区蔬菜质量评价[J]. 河北农业大学学报, 2012, 35(5):72–76. ZHU X C, LIU S F, HOU D L, et al. Irrigation water quality analysis and quality evaluation of the irrigated vegetables in Baoding suburb[J]. *Journal of Hebei Agricultural University*, 2012, 35(5):72–76.
- [20] 苏胜男, 赵杰, 赵超, 等. 黄河流域山东段农田灌溉水环境质量评价[J]. 绿色科技, 2021, 23(10):95–97. SU S N, ZHAO J, ZHAO C, et al. Environmental quality assessment of irrigation water in the Shandong section of the Yellow River basin[J]. *Journal of Green Science and Technology*, 2021, 23(10):95–97.
- [21] 刘苹, 魏建林, 于淑芳, 等. 山东省蔬菜产地灌溉水重金属环境质量分析与评价[J]. 安徽农业科学, 2010, 38(23):12663–12665. LIU P, WEI J L, YU S F, et al. Analysis and evaluation of heavy metal environmental quality of irrigation water in vegetable farmlands of Shandong Province[J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2010, 38(23):12663–12665.
- [22] 时春景, 李红霞, 张言, 等. 永定河上覆水、孔隙水和沉积物中重金属的分布特征[J]. 环境化学, 2017, 36(1):48–61. SHI C J, LI H X, ZHANG Y, et al. Distribution characteristics of heavy metals in overlying water-pore water-sediment in the Yongding River[J]. *Environmental Chemistry*, 2017, 36(1):48–61.
- [23] 程旭艳, 王定美, 乔玉辉, 等. 中国商品有机肥重金属分析[J]. 环境污染与防治, 2012, 34(2):72–76. CHENG X Y, WANG D M, QIAO Y H, et al. Analyze on the heavy metals content in China commodity organic fertilizer[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2012, 34(2):72–76.
- [24] 张树清, 张夫道, 刘秀梅, 等. 规模化养殖畜禽粪主要有害成分测

- 定分析研究[J]. 植物营养与肥料学报, 2005, 11(6): 822-829. ZHANG S Q, ZHANG F D, LIU X M, et al. Determination and analysis on main harmful composition in excrement of scale livestock and poultry feedlots[J]. *Journal of Plant Nutrition and Fertilizers*, 2005, 11(6): 822-829.
- [25] 潘寻, 韩哲, 贾伟伟. 山东省规模化猪场猪粪及配合饲料中重金属含量研究[J]. 农业环境科学学报, 2013, 32(1): 160-165. PAN X, HAN Z, BEN W W. Heavy metal contents in pig manure and pig feeds from intensive pig farms in Shandong Province, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, 32(1): 160-165.
- [26] 彭皓, 马杰, 马玉玲, 等. 天津市武清区农田土壤和蔬菜中重金属污染特征及来源解析[J]. 生态学杂志, 2019, 38(7): 2102-2112. PENG H, MA J, MA Y L, et al. Characteristics and source identification of heavy metal pollution in agricultural soils and vegetables in Wuqing District, Tianjin City, China[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2019, 38(7): 2102-2112.
- [27] 梁金凤, 齐庆振, 贾小红, 等. 京郊有机肥料的质量状况分析[J]. 中国土壤与肥料, 2009(6): 79-83. LIANG J F, QI Q Z, JIA X H, et al. Investigation of quality in organic fertilizers in Beijing suburb[J]. *Soil and Fertilizer Sciences in China*, 2009(6): 79-83.
- [28] 范丽霞, 王磊, 杨发斌, 等. 山东省畜禽粪便农用的重金属污染风险评价[J]. 山东农业科学, 2020, 52(4): 150-154. FAN L X, WANG L, YANG F B, et al. Risk assessment of heavy metal pollution from livestock and poultry manures for agricultural use in Shandong Province[J]. *Shandong Agricultural Sciences*, 2020, 52(4): 150-154.
- [29] 庞敏晖, 李顺江, 杜连凤, 等. 京郊有机肥产品质量调查与分析[J]. 土壤通报, 2021, 52(1): 123-128. PANG M H, LI S J, DU L F, et al. Investigation and analysis on quality of organic fertilizer products in the suburbs of Beijing[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2021, 52(1): 123-128.
- [30] 芮玉奎, 申建波, 张福锁. 应用ICP-MS测定两种氮肥中重金属含量[J]. 光谱学与光谱分析, 2008, 28(10): 2425-2427. RUI Y K, SHEN J B, ZHANG F S. Application of ICP-MS to determination of heavy metal content of heavy metals in two kinds of N fertilizer[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2008, 28(10): 2425-2427.
- [31] 芮玉奎, 申建波, 张福锁, 等. 应用ICP-MS测定KCl肥料中重金属元素含量[J]. 光谱学与光谱分析, 2008, 28(10): 2428-2430. RUI Y K, SHEN J B, ZHANG F S, et al. Application of ICP-MS to detecting ten kinds of heavy metals in KCl fertilizer[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2008, 28(10): 2428-2430.
- [32] 王卫星, 曹淑萍, 李攻科, 等. 常用化肥重金属元素含量分析评价及其对土壤环境的影响[J]. 天津农业科学, 2017, 23(4): 19-22. WANG W X, CAO S P, LI G K, et al. Analysis and evaluation of heavy metal elements in common fertilizers and their effects on soil environment[J]. *Tianjin Agricultural Sciences*, 2017, 23(4): 19-22.
- [33] 范珊珊, 刘继远, 谭晓东, 等. 北京市水溶肥料重金属元素分析与评价[J]. 生态环境学报, 2021, 30(2): 430-437. FAN S S, LIU J Y, TAN X D, et al. Comment and degree of contamination of heavy metals in water-soluble fertilizers in Beijing[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2021, 30(2): 430-437.
- [34] 江南, 平令文, 季晓慧, 等. 典型北方菜田常用肥料中重金属含量分析及污染风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2020, 39(3): 521-529. JIANG N, PING L W, JI X H, et al. Content analysis and pollution risk assessment of heavy metal in common fertilizers in typical north vegetable fields[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2020, 39(3): 521-529.
- [35] 杨妍妍, 李金香, 刘亚平, 等. 北京城市污水处理厂污泥中重金属污染状况及潜在生态风险分析[J]. 环境污染与防治, 2019, 41(9): 1098-1102, 1107. YANG Y Y, LI J X, LIU Y P, et al. Pollution feature and assessment of potential ecological risk of heavy metals in municipal sludge from wastewater treatment plants in Beijing[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2019, 41(9): 1098-1102, 1107.
- [36] 王晓林. 山东省城市污水处理厂污泥重金属污染特征及风险评价[J]. 环境污染与防治, 2016, 38(8): 59-63. WANG X L. Pollution characteristics and risk assessment of heavy metals in sewage sludge from municipal wastewater treatment plants in Shandong[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2016, 38(8): 59-63.
- [37] 刘东方, 张友萍, 王爱娟, 等. 华北地区典型城市污水处理厂污泥填埋处置可行性分析[J]. 环境污染与防治, 2010, 32(5): 40-42. LIU D F, ZHANG Y P, WANG A J, et al. Feasibility analysis on sludge landfill of typical wastewater treatment plants in north China[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2010, 32(5): 40-42.
- [38] 谭国栋, 李文忠, 何春利. 北京市污水处理厂污泥特性分析[J]. 科技信息, 2011(7): 435-437. TAN G D, LI W Z, HE C L. Analysis of characteristics of sludge in Beijing wastewater treatment plant[J]. *Science & Technology Information*, 2011(7): 435-437.
- [39] 孟国欣, 查同刚, 张晓霞, 等. 北京市污水处理厂污泥重金属污染特征和生态风险评价[J]. 生态环境学报, 2017, 26(9): 1570-1576. MENG G X, ZHA T G, ZHANG X X, et al. Heavy metal pollution characteristics and ecological risk assessment of the sludge from wastewater treatment plants in Beijing[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2017, 26(9): 1570-1576.
- [40] 姚聪颖, 曹吉鑫, 彭祚登, 等. 北京排水污泥重金属含量的季节变化特征及污染风险评价[J]. 环境保护与循环经济, 2020, 40(8): 48-52. YAO C Y, CAO J X, PENG Z D, et al. Seasonal change characteristics of heavy metal content in Beijing drainage sludge and pollution risk evaluation[J]. *Environmental Protection and Circular Economy*, 2020, 40(8): 48-52.
- [41] KIM G, SCUDLARK J R, CHURCH T M. Atmospheric wet deposition of trace elements to Chesapeake and Delaware Bays[J]. *Atmospheric Environment*, 2000, 34(20): 3437-3444.
- [42] SAKATA M, ASAKURA K. Factors contributing to seasonal variations in wet deposition fluxes of trace elements at sites along Japan Sea coast[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(25): 3867-3875.
- [43] WONG C S C, LI X D, ZHANG G, et al. Atmospheric deposition of heavy metals in the Pearl River Delta, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2003, 37(6): 767-776.
- [44] XIA X Q, YANG Z F, CUI Y J, et al. Soil heavy metal concentrations and their typical input and output fluxes on the southern Song-nen Plain, Heilongjiang Province, China[J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, 139(1): 85-96.
- [45] 赖木收, 杨忠芳, 王洪翠, 等. 太原盆地农田区大气降尘对土壤重

- 金属元素累积的影响及其来源探讨[J]. 地质通报, 2008, 27(2): 240–245. LAI M S, YANG Z F, WANG H C, et al. Effects of atmospheric fallouts on heavy metal elements accumulation in soils in farmland areas in the Taiyuan basin, Shanxi, China and sources of fallouts[J]. *Geological Bulletin of China*, 2008, 27(2): 240–245.
- [46] 刘昌岭, 任宏波, 陈洪涛, 等. 黄海及东海海域大气降水中的重金属[J]. 海洋科学, 2003, 27(9): 64–68. LIU C L, REN H B, CHEN H T, et al. Heavy metals in precipitation from the Yellow Sea and the East China Sea regions[J]. *Marine Sciences*, 2003, 27(9): 64–68.
- [47] 余辉, 张璐璐, 李焕利, 等. 太湖流域重金属湿沉降特征[J]. 环境科学研究, 2011, 24(12): 1331–1338. YU H, ZHANG L L, LI H L, et al. Wet deposition characteristic of heavy metals in Taihu Lake watershed[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2011, 24(12): 1331–1338.
- [48] 徐宏林, 李定远, 杨军, 等. 湖北省云梦县重金属元素大气干湿沉降通量初探[J]. 资源环境与工程, 2015, 29(6): 816–821. XU H L, LI D Y, YANG J, et al. Preliminary study on flux of atmospheric dry and wet deposition of heavy metal elements in Yunmeng County, Hubei Province[J]. *Resources Environment & Engineering*, 2015, 29(6): 816–821.
- [49] MORERA-GOMEZ Y, SANTAMARIA J M, ELUSTONDO D, et al. Determination and source apportionment of major and trace elements in atmospheric bulk deposition in a Caribbean rural area[J]. *Atmospheric Environment*, 2019, 202: 93–104.
- [50] CHEREDNICHENKO V S, CHEREDNICHENKO A V, CHEREDNICHENKO A V. Heavy metal deposition through precipitation in Kazakhstan[J]. *Heliyon*, 2021, 7(1): e05844.
- [51] TRIPATHEE L, KANG S C, HUANG J, et al. Concentrations of trace elements in wet deposition over the central Himalayas, Nepal[J]. *Atmospheric Environment*, 2014, 95: 231–238.
- [52] MA Y D, TANG Y Q, XU H, et al. Bulk/wet deposition of trace metals to rural, industrial, and urban areas in the Yangtze River Delta, China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, 169: 185–191.
- [53] XING J, SONG J, YUAN H, et al. Atmospheric wet deposition of dissolved trace elements to Jiaozhou Bay, north China: Fluxes, sources and potential effects on aquatic environments[J]. *Chemosphere*, 2017, 174: 428–436.
- [54] WU Y C, ZHANG J P, NI Z X, et al. Atmospheric deposition of trace elements to Daya Bay, South China Sea: Fluxes and sources[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, 127: 672–683.
- [55] 张国忠, 崔阳, 潘月鹏, 等. 渤海湾大气金属元素沉降和来源解析研究[J]. 环境科学学报, 2019, 39(8): 2708–2716. ZHANG G Z, CUI Y, PAN Y P, et al. Deposition fluxes and source apportionment of atmospheric trace metals in the Bohai Bay[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, 39(8): 2708–2716.
- [56] FENG W L, GUO Z H, PENG C, et al. Atmospheric bulk deposition of heavy metal(loid)s in central south China: Fluxes, influencing factors and implication for paddy soils[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2019, 371: 634–642.
- [57] HE K B, YANG F M, MA Y L, et al. The characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2001, 35(29): 4959–4970.
- [58] LV B L, ZHANG B, BAI Y Q. A systematic analysis of PM_{2.5} in Beijing and its sources from 2000 to 2012[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, 124: 98–108.
- [59] WANG L L, LIU Z R, SUN Y, et al. Long-range transport and regional sources of PM_{2.5} in Beijing based on long-term observations from 2005 to 2010[J]. *Atmospheric Research*, 2015, 157: 37–48.
- [60] 姚利, 刘进, 潘月鹏, 等. 北京大气颗粒物和重金属铅干沉降通量及季节变化[J]. 环境科学, 2017, 38(2): 423–428. YAO L, LIU J, PAN Y P, et al. Atmospheric dry deposition fluxes and seasonal variations of particulate matter and lead in urban Beijing[J]. *Environmental Science*, 2017, 38(2): 423–428.
- [61] 王梦然, 马振兴. 华北地区农业用水效率分析[J]. 南方农业, 2014, 8(27): 78–80. WANG M R, MA Z X. Analysis of agricultural water use efficiency in north China[J]. *South China Agriculture*, 2014, 8(27): 78–80.
- [62] HOU Q Y, YANG Z F, JI J F, et al. Annual net input fluxes of heavy metals of the agro-ecosystem in the Yangtze River Delta, China[J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, 139(1): 68–84.
- [63] 周永章, 沈文杰, 李勇, 等. 基于通量模型的珠江三角洲经济区土壤重金属地球化学累积预测预警研究[J]. 地球科学进展, 2012, 27(10): 1115–1125. ZHOU Y Z, SHEN W J, LI Y, et al. A study of prediction and early-warning forecast on geochemical accumulation of soil heavy metals based on flux model in Pearl River Delta economic zone(China)[J]. *Advances in Earth Science*, 2012, 27(10): 1115–1125.
- [64] JIANG W, HOU Q Y, YANG Z F, et al. Annual input fluxes of heavy metals in agricultural soil of Hainan Island, China[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, 21(13): 7876–7885.
- [65] HU W, HUANG B, SHI X, et al. Accumulation and health risk of heavy metals in a plot-scale vegetable production system in a peri-urban vegetable farm near Nanjing, China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, 98: 303–309.
- [66] 陈雪, 杨忠芳, 陈岳龙, 等. 广西中东部9县区农田土壤Cd输入通量研究[J]. 物探与化探, 2019, 43(2): 415–427. CHEN X, YANG Z F, CHEN Y L, et al. Cadmium input flux in farmland soil of nine counties in middle and east Guangxi[J]. *Geophysical and Geochemical Exploration*, 2019, 43(2): 415–427.
- [67] YI K X, FAN W, CHEN J Y, et al. Annual input and output fluxes of heavy metals to paddy fields in four types of contaminated areas in Hunan Province, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 634: 67–76.
- [68] SHI T R, MA J, WU F Y, et al. Mass balance-based inventory of heavy metals inputs to and outputs from agricultural soils in Zhejiang Province, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 649: 1269–1280.
- [69] NI R X, MA Y B, TIAN J. Current inventory and changes of the input/output balance of trace elements in farmland across China[J]. *PLoS One*, 2018, 13(6): e0199460.
- [70] SALMAN S A, ELNAZER A A, NAZER HA EI. Integrated mass balance of some heavy metals fluxes in Yaakob Village, south Sohag,

- Egypt[J]. *International Journal of Environmental Science Technology*, 2017, 14(5):1011–1018.
- [71] 童文彬, 郭彬, 林义成, 等. 衢州典型重金属污染农田镉、铅输入输出平衡分析[J]. 核农学报, 2020, 34(5):1061–1069. TONG W B, GUO B, LIN Y C, et al. Assessment of input–output patterns of Cd and Pb of typical heavy metal polluted agricultural land in Quzhou[J]. *Journal of Nuclear Agricultural Sciences*, 2020, 34(5):1061–1069.
- [72] 陈强, 马明杰, 游远航, 等. 广东大宝山矿区附近农田土壤镉元素输入通量研究[J]. 华南地质与矿产, 2020, 36(2):147–152. CHEN Q, MA M J, YOU Y H, et al. Cadmium input flux in farmland soil near the Dabaoshan mining area of Guangdong Province[J]. *South China Geology*, 2020, 36(2):147–152.
- [73] LOU H Z, YANG S T, ZHAO C S, et al. Phosphorus risk in an intensive agricultural area in a mid–high latitude region of China[J]. *Catena*, 2015, 127:46–55.
- [74] 魏兆轩, 张建新. 湘江下游农田土壤重金属污染输入途径及影响程度探析[J]. 国土资源导刊, 2015, 12(4):67–69. WEI Z X, ZHANG J X. Analysis on input ways and influence degree of heavy metal pollution in downstream of Xiangjiang River farmland soil[J]. *Land & Resources Herald*, 2015, 12(4):67–69.
- [75] MILLER B B, DUGWELL D R, KANDIYOTI R, et al. Partitioning of trace elements during the combustion of coal and biomass in a suspension–firing reactor[J]. *Fuel*, 2002, 81(2):159–171.
- [76] PAN Y P, TIAN S L, LI X R, et al. Trace elements in particulate matter from metropolitan regions of northern China: Sources, concentrations and size distributions[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 537:9–22.
- [77] SZEFER P, SZEFER K. Some metals and their possible sources in rain water of the Southern Baltic coast, 1976 and 1978–1980[J]. *Science of the Total Environment*, 1986, 57:79–89.
- [78] BEGUM B A, KIM E, BISWAS S K, et al. Investigation of sources of atmospheric aerosol at urban and semi–urban areas in Bangladesh[J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(19):3025–3038.
- [79] PAN Y P, WANG Y S, SUN Y, et al. Size–resolved aerosol trace elements at a rural mountainous site in northern China: Importance of regional transport[J]. *Science of the Total Environment*, 2013, 461/462:761–771.
- [80] GAO J J, WANG K, WANG Y, et al. Temporal–spatial characteristics and source apportionment of PM_{2.5} as well as its associated chemical species in the Beijing–Tianjin–Hebei region of China[J]. *Environmental Pollution*, 2018, 233:714–724.

(责任编辑:宋潇)