

# 华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤重金属积累特征研究

董同喜, 杨海雪, 李花粉, 乔玉辉, 苏德纯\*

(中国农业大学资源与环境学院, 北京 100193)

**摘要:**通过文献查阅和采样分析,建立华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤重金属输入、输出数据库,分析不同重金属输入源所占比例;通过模型计算不同情景下土壤中不同重金属元素累积速率和累积速率的频率分布,分析土壤不同重金属的积累特征。结果表明,本轮作体系和条件下,Cu、Zn、Cd、Ni、Pb、Cr 6种重金属元素的主要输入源为畜禽粪便有机肥,其占总输入量的比例分别是:86.1%、83.8%、76.6%、72.5%、64.3%和46.3%;Hg、As的主要输入源为磷肥,其分别占总输入量的比例是52.6%和49.5%;大气沉降也是农田土壤中Hg的重要输入源之一。华北农田小麦-玉米轮作体系秸秆还田和地下水灌溉条件下土壤重金属元素累积速率的中位值分别为: Cd 0.002 38 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, As 0.029 8 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Hg 0.001 09 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Pb 0.050 7 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Cr 0.050 2 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Cu 0.110 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Zn 0.348 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Ni 0.039 3 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>。根据我国土壤环境质量 II 级标准(GB 15618—1995),本体系和条件下土壤中 Cd、Cr、Ni 最易超标,在农田土壤重金属污染防治中应重点关注。

**关键词:**农田土壤;重金属;累积速率;频率分布

中图分类号:X53

文献标志码:A

文章编号:2095-6819(2014)04-0355-11

doi: 10.13254/j.jare.2014.0131

## Accumulation Characteristics of Heavy Metals in the Soil with Wheat-corn Rotation System in North China

DONG Tong-xi, YANG Hai-xue, LI Hua-fen, QIAO Yu-hui, SU De-chun\*

(College of Resources and Environmental Sciences, China Agricultural University, Beijing 100193, China)

**Abstract:** Through literatures review and samplings analysis, the database of heavy metal in wheat-corn field system of north China was built and the percentage of different sources was analysed. The accumulation rate and frequency distribution of accumulation rate of heavy metals in different situations were counted by modeling, and accumulation characteristics of different elements were analysed. The result showed that the manure was the main source of Cu, Zn, Cd, Ni, Pb, Cr in wheat-corn field system of north China farmland, with the percentage of 86.1%, 83.8%, 76.6%, 72.5%, 64.3% and 46.3%, respectively; Phosphate fertilizer was the main source of Hg and As, the percentage of them were 52.6% and 49.5%, respectively; Besides, atmospheric deposition was also one of the main sources of Hg in the farmland soil. According to the accumulation rate frequency distribution, accumulation rate of each elements was Cd 0.002 38 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, As 0.029 8 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Hg 0.001 09 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Pb 0.050 7 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Cr 0.050 2 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Cu 0.110 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Zn 0.348 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, Ni 0.039 3 mg·kg<sup>-1</sup>·a<sup>-1</sup>, respectively. According to the soil environmental quality secondary standards, Cd, Cr, Ni was most likely to exceed the standard, so these three elements should be caused more concern.

**Keywords:** farmland soil; heavy metal; accumulation rate; distribution frequency

农田土壤重金属污染直接危及到生态安全、食品安全和人体健康<sup>[1-2]</sup>。农田土壤重金属输入源有多个,

不同区域和不同种植体系存在明显差异。研究表明,英格兰和威尔士农田土壤重金属输入源包括大气沉降、污泥、畜禽粪、无机肥、农药、灌溉水、工业废弃物以及固废堆肥,大气沉降对重金属贡献率占总输入量的25%~85%之间,畜禽粪对Zn的贡献率达37%~40%<sup>[3]</sup>。对我国农田中重金属来源的总体研究表明,As、Cr、Hg、Ni和Pb的总输入量中,大气沉降贡献率占43%~85%;对于Cd、Cu、Zn,畜禽粪贡献率分别

收稿日期:2014-05-14

基金项目:公益性行业(农业)科研专项(200903015);国家自然科学基金项目(41271488)

作者简介:董同喜(1991—),女,河北衡水人,硕士研究生,主要从事土壤重金属污染的研究。E-mail: dongtongxi@cau.edu.cn

\*通信作者:苏德纯 E-mail: dcsu@cau.edu.cn

约为 55%、69%、51%<sup>[4]</sup>。

目前国内外关于土壤中重金属积累的研究很多,但多是基于某一特定输入情景下的结果,缺乏综合各输入输出情景下的研究结果。华北平原是我国的小麦、玉米重要主产区之一,2013 年,华北地区粮食产量约占全国粮食总产量的 12.83%<sup>[5]</sup>,其在我国粮食生产和农产品质量安全方面占有举足轻重的地位。冬小麦-夏玉米轮作体系是华北平原主要的粮食作物轮作方式。保障我国华北农田生态安全和农业可持续发展,对我国粮食安全和农产品质量安全非常重要。但目前关于土壤重金属污染研究以针对我国南方稻田较多,对于我国华北农田土壤重金属的输入格局以及基于此特定区域的输入、输出预测本区域土壤重金属累积速率特征的研究还不够。因此,本文通过文献查阅和实地采样分析,建立针对我国华北农田土壤重金属输入、输出数据库,分析研究华北农田土壤不同重金属的输入源及比例,通过平衡模型计算不同情景下土壤不同重金属累积速率并分析其积累特征,以求了解本区域农田土壤不同重金属积累特征,为该区域农业可持续发展制定合理的农田土壤重金属污染源头控制技术措施提供依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 华北农田土壤重金属输入、输出数据库建立的条件和方法

华北农田小麦-玉米轮作体系下,土壤重金属输入源主要包括:大气沉降、畜禽粪便有机肥、磷肥和灌溉水。输出源包括:玉米和小麦的收获。本研究体系不包含污灌区、工矿区周围农田和施用污泥等固废的特殊区域农田。另外,由于小麦-玉米轮作体系下农药用量相对较少,输入源中忽略农药对土壤重金属的输入。

数据库的建立是通过 2 种方法:一是查阅文献,文献来源是以中国知网文献数据库为主,以万方数据库为辅,文献数据时间点为近 10 年的数据;二是通过实地采样分析获得。对于经由文献获得的数据,在数据统计过程中,以文献中的一个取样点为一个样本,如果文献中为统计结果且未列出样本量的均按一个样本进行统计;对于实地调查采样获得的数据,在数据统计过程中,以一个取样点为一个样本。文献筛选的原则是采样点为非工矿企业等污染源周围,无污水灌溉,不使用污泥等固废。

有机肥在我国传统农业中是极为重要的一个环节,2001—2007 年间,中国农科院农业资源与农业区

划研究所在东北、华北地区作了大量农户调查,结果显示有机肥在一季作物或一个小麦-玉米轮作周期中一次性基施现象比较普遍<sup>[6]</sup>。有机肥的种类很多,其中最大项是畜禽粪尿和作物秸秆<sup>[7]</sup>。畜禽粪便有机肥中重金属含量数据库包含 2000 年后的文献数据和采样数据,采样的范围包括我国山东、河北、北京、河南等省(市),畜禽粪便有机肥采样数为 125 个,华北区施用的畜禽粪便主要是猪粪和鸡粪;磷肥中重金属元素含量数据库为本课题组采集的 159 个含磷肥料样品,采集的肥料样品均为市售且使用普遍的品种,包括国产和进口;大气沉降数据为 Luo 等<sup>[4]</sup>的大气沉降输入重金属的文献数据,8 种重金属的样本量均为大样本;华北地区灌溉用水约有 64%以上来自地下水<sup>[8]</sup>,本文以地下水作为农田灌溉水的主要来源。地下水重金属含量数据库、小麦和玉米子粒中重金属含量数据库均从文献中获得。磷肥、有机肥的施用量参照文献[9]数据、灌水量参照文献[10]数据,小麦和玉米的产量依据文献[11]统计数据。具体数据见表 1 中土壤重金属输入输出源的用量或产量。

表 1 华北农田小麦-玉米轮作体系施肥量、灌溉用水量 and 作物产量(kg·hm<sup>-2</sup>·a<sup>-1</sup>)

Table 1 The application amount of fertilizer and the yield of wheat and corn (kg·hm<sup>-2</sup>·a<sup>-1</sup>)

项目	用量或产量(均值)
磷肥(P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 计,小麦)	100 <sup>[9]</sup>
磷肥(P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 计,玉米)	100 <sup>[9]</sup>
畜禽粪有机肥	3 000 <sup>[9]</sup>
旱作灌溉水 /m <sup>3</sup> ·hm <sup>-2</sup> ·a <sup>-1</sup>	4 500 <sup>[10]</sup>
小麦子粒	5 376 <sup>[11]</sup>
玉米子粒	5 564 <sup>[11]</sup>

### 1.2 土壤重金属输入源比例计算

华北农田土壤重金属主要来源包括四部分:畜禽粪便、磷肥、灌溉水和大气沉降。对数据库中不同来源数据统计分析内容包括:样本数,数据分布类型,重金属含量的 5%、10%、25%、50%、75%、90%、95%的分位值。在计算土壤重金属各来源输入量和比例时,根据数据的分布用均值或中位值。如果数据服从正态分布,则采用算数平均值;如果数据服从对数正态分布,则采用几何平均值;如果数据统计结果既不服从正态分布也不服从对数正态分布(即偏态分布),则采用中位值(50%分位值)。目前农田土壤重金属大气沉降通量的数据较少,而对城郊或者城市重金属大气沉降通

量研究较多,而 Luo 等<sup>[4]</sup>的重金属大气沉降通量数据多来源于城郊或者城市,通过对比 Luo 等<sup>[4]</sup>的数据与其他文献中的重金属大气沉降通量,在计算我国华北小麦-玉米轮作体系农田土壤重金属累积速率时,大气沉降带入重金属量使用该数据库中的最小值。通过各输入源中的重金属含量、用量或是沉降量计算各输入源向华北农田土壤中输入的重金属总量及不同源占总输入量的百分比。

### 1.3 土壤重金属累积速率的计算方法

土壤重金属的累积量=输入总量-输出总量,重金属元素每年向土壤中的净输入量用  $A$  表示,输入总量用  $I_{Total}$  表示,输出总量用  $O_{Total}$  表示,三者的单位均为  $g \cdot hm^{-2} \cdot a^{-1}$ 。

$$在公式 A=I_{Total}-O_{Total} 中, \quad (1)$$

$$I_{Total}=I_a+I_m+I_f+I_w \quad (2)$$

$$O_{Total}=O_i+O_z \quad (3)$$

式中, $I_a$  为大气沉降带入量; $I_m$  为畜禽粪带入量; $I_f$  为磷肥带入量; $I_w$  为灌溉水带入量; $O_i$  为小麦子粒带出量; $O_z$  为玉米子粒带出量。

上述 6 项的单位均为  $g \cdot hm^{-2} \cdot a^{-1}$ 。

土壤中重金属的累积速率用  $a$  表示,

$$a=A/2\ 300 \quad (4)$$

式中, $A$  为每公顷土壤重金属元素的年净累积量( $g \cdot hm^{-2} \cdot a^{-1}$ )。

具体计算如下:

按照农田耕层厚度为 20 cm,土壤容重为  $1.15 g \cdot cm^{-3}$ ,则:

$$a=(A \times 10^3)mg / (10^4 \times 10\ 000\ cm^2 \times 20\ cm \times 1.15\ g \cdot cm^{-3} \div 10^3) kg \cdot a^{-1}$$

因此简要表示为: $a=A/2\ 300$ 。

畜禽粪有机肥、磷肥和灌溉水是农田土壤重金属主要输入源,但不同田块所用畜禽粪有机肥、磷

肥和灌溉水中重金属含量存在差异,不论是输入源用数据库中的中位值还是均值都不足以代表所有可能出现的情况,因此本文在计算农田土壤重金属输入量时,计算各种可能出现的情景,即有机肥、磷肥和灌溉水 3 种输入源重金属含量不同分位值下的各种组合( $7 \times 7 \times 7=343$  个组合)与大气沉降共同作为输入;输出项相对变幅较小,计算时用华北农田小麦和玉米子粒重金属含量的中位值,产量依据《中国农业统计年鉴》(2006—2010 年)统计数据均值。华北小麦-玉米主产区秸秆直接还田是主要方式,预计到 2010 年,秸秆还田达到 70% 以上<sup>[12]</sup>,本研究设定秸秆全部还田。依据输入、输出计算出华北农田土壤不同投入情景下重金属累积速率,然后依据各种情景下土壤不同重金属累积速率作出频率分布图。累积速率频率分布图的横坐标代表重金属元素的累积速率  $a$ ,纵坐标代表不同累积速率出现的频率,用土壤重金属累积速率的频率分布图表征华北农田土壤重金属积累特征。

## 2 结果与分析

### 2.1 华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤重金属输入输出数据库特征

华北平原是我国的小麦、玉米主产区,农作物多为一年两熟,以华北平原农田为研究对象,研究华北平原农田土壤重金属输入输出所用到的主要参数为大气重金属沉降量、畜禽粪有机肥中重金属含量、磷肥中重金属含量、华北地下水重金属含量、华北小麦子粒重金属含量、华北玉米子粒重金属含量。通过文献查阅和实地采样,建立的该区域畜禽粪有机肥、磷肥和灌溉水中重金属含量数据库及对数据库中心数据的统计分析分别见表 2~表 4。

从表 2~表 4 中可以看出,本区域畜禽粪有机肥、磷肥和灌溉水中重金属含量变化范围较大,且数

表 2 华北农田所用畜禽粪有机肥中重金属含量百分位数表( $mg \cdot kg^{-1}$ )  
Table 2 Concentration distribution of heavy metals in livestock manure ( $mg \cdot kg^{-1}$ )

元素	样本组数	分布类型	5%值	10%值	25%值	50%值	75%值	90%值	95%值
Cd	292	偏态分布	0.100	0.160	0.598	1.25	2.32	4.97	14.5
Pb	291	偏态分布	1.87	3.10	7.42	13.6	23.8	33.9	44.7
As	265	偏态分布	0.014 2	0.109	0.838	2.50	7.01	19.0	41.0
Cr	201	偏态分布	3.33	4.38	6.13	12.0	22.6	93.1	185
Hg	235	偏态分布	0.011 8	0.021 3	0.034 0	0.060 0	0.090	0.167	0.333
Cu	328	偏态分布	16.0	19.6	28.5	53.0	196	698	885
Zn	322	偏态分布	50.1	64.6	106	238	507	827	1 217
Ni	212	偏态分布	5.62	7.15	11.0	17.6	24.4	30.6	34.9

表 3 华北农田所用磷肥(以 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 计)中重金属含量百分位数表(mg·kg<sup>-1</sup>)

Table 3 Concentration distribution of heavy metals in phosphorus fertilizer (P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, mg·kg<sup>-1</sup>)

元素	样本组数	分布类型	5%值	10%值	25%值	50%值	75%值	90%值	95%值
Cd	159	偏态分布	0.210	0.260	0.610	1.48	3.87	8.37	15.4
As	159	偏态分布	20.2	37.8	60.2	94.5	130	178	222
Hg	159	偏态分布	0.00	0.050 0	0.380	2.42	11.9	21.8	99.0
Pb	159	偏态分布	1.68	4.57	9.13	42.9	132	818	818
Cr	159	偏态分布	19.9	25.7	45.8	84.5	142	429	947
Cu	159	偏态分布	0.00	9.78	35.5	99.8	226	577	1 072
Zn	159	偏态分布	31.4	70.8	142	341	774	1 210	3 537
Ni	159	偏态分布	8.44	14.0	24.6	47.8	91.4	209	589

表 4 华北地下水中重金属含量百分位数表(μg·L<sup>-1</sup>)

Table 4 Concentration distribution of heavy metals in irrigation water of north China (μg·L<sup>-1</sup>)

元素	样本数	分布类型	5%值	10%值	25%值	50%值	75%值	90%值	95%值
Cd	57	偏态分布	0.016 9	0.045 8	0.050 0	0.100	0.100	0.200	0.430
As	60	对数正态分布	0.301	0.503	1.02	2.98	5.37	17.9	23.6
Hg	54	偏态分布	0.003 00	0.004 50	0.009 00	0.012 5	0.020 0	0.075 0	0.550
Pb	54	偏态分布	0.500	1.51	2.00	2.00	2.00	7.70	19.8
Cr	52	偏态分布	0.330	1.23	3.00	3.00	3.00	3.70	7.80
Cu	50	偏态分布	0.076 5	0.111	0.263	0.755	1.71	4.74	40.8
Zn	59	偏态分布	1.40	2.94	4.60	9.10	31.0	80.6	123
Ni	51	偏态分布	0.160	0.222	0.500	0.900	1.40	4.00	7.02

据分布较为分散,大多数数据呈偏态分布。对比我国农业行业标准中有机肥料的标准(NY 525—2012),本区域畜禽粪便有机肥中重金属含量数据库(表 2)中 As、Cd 的 90%分位值和 Cr 的 95%分位值超过了 NY 525—2012 标准中的限值,这表明本区域只有 10%左右的畜禽粪便有机肥 As、Cd 超标。表 3 是本区域所用磷肥(以 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 计)中重金属含量数据库,比照肥料中重金属含量国家标准 GB/T 23349—2009,换算成标准中以磷肥计的重金属含量,本区域 98%的磷肥重金属含量都不超标。由此可见,我国华北农田施用的有机肥和磷肥大部分符合国家或行业标准。表 4 为华北地下水中重金属含量数据库,从表 4 中可以看出,不同重金属含量 95%分位值全部符合我国农田灌溉水质标准(GB 5084—2005)中的限值,表明本区域地下水 95%以上都符合我国农田灌溉水质标准要求。

本区域大气沉降输入<sup>[4]</sup>和作物输出的小麦、玉米子粒中重金属含量数据库分别见表 5、表 6。计算本区域农田土壤重金属累积速率时用到的变量包括农田中施用畜禽粪便、磷肥以及灌溉水的用量,华北农田小麦和玉米的产量,数据见表 1。

## 2.2 华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤重金属不同输入源所占比例

表 7 是由各输入源中重金属含量的均值或中位值和肥料年施用量计算出的华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤中各输入源输入的重金属年输入量和所占总输入量的比例。从表 7 中可以看出,华北农田小麦-玉米轮作体系下,土壤重金属的主要输入途径为畜禽粪便有机肥和磷肥的施用,其次是大气沉降和灌

表 5 华北农田土壤重金属大气沉降输入数据库表(g·hm<sup>-2</sup>·a<sup>-1</sup>)

Table 5 Deposition input of heavy metals in farmland of north China (g·hm<sup>-2</sup>·a<sup>-1</sup>)

元素	样本量	最小值	最大值	中位值
Cd	118	0.400	25.0	4.00
As	76	0.400	117	28.0
Hg	80	0.200	5.00	1.40
Pb	148	5.10	756	202
Cr	72	11.1	178	61.0
Cu	148	2.30	409	108
Zn	148	29.1	1 484	647
Ni	76	6.30	138	58.0

表6 华北农田小麦和玉米子粒输出重金属数据库表( $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ )

作物	元素	样本量	最小值	最大值	中位值
小麦子粒 <sup>[13-40]</sup>	Cd	86	0.000 900	0.275	0.020 0
	As	34	0.010 0	0.240	0.080 5
	Hg	38	0.001 00	0.170	0.020 0
	Pb	86	0.001 00	0.862	0.100
	Cr	58	0.010 0	1.220	0.125
	Cu	166	2.88	9.20	5.53
玉米子粒 <sup>[28,35,39,41-56]</sup>	Zn	145	14.2	60.8	36.6
	Ni	6	0.110	0.500	0.209
	Cd	194	0.000 800	0.176	0.029 0
	As	117	0.007 50	0.312	0.054 0
	Hg	92	0.000 220	0.016 0	0.006 73
	Pb	158	0.000 035 6	0.430	0.090 0
	Cr	84	0.003 10	1.55	0.337
	Cu	122	0.793	8.28	3.69
	Zn	128	9.00	48.6	24.6
	Ni	85	0.088 0	3.28	0.296

表7 不同来源输入重金属所占比例

输入源	大气沉降	灌溉水	畜禽粪便	磷肥	总计	
Cd	输入量/ $\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$	0.400	0.450	3.74	0.296	4.89
	所占比例/%	8.19	9.21	76.6	6.06	100
As	输入量/ $\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$	0.400	11.4	7.50	18.9	38.2
	所占比例/%	1.05	29.8	19.6	49.5	100
Hg	输入量/ $\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$	0.200	0.056 3	0.180	0.484	0.920
	所占比例/%	21.7	6.12	19.6	52.6	100
Pb	输入量/ $\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$	5.10	9.00	40.8	8.58	63.5
	所占比例/%	8.03	14.2	64.3	13.5	100
Cr	输入量/ $\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$	11.1	13.5	35.8	16.9	77.3
	所占比例/%	14.4	17.5	46.3	21.9	100
Cu	输入量/ $\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$	2.30	3.40	159	20.0	185
	所占比例/%	1.25	1.84	86.1	10.8	100
Zn	输入量/ $\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$	29.1	41.0	712	68.2	851
	所占比例/%	3.42	4.81	83.8	8.02	100
Ni	输入量/ $\text{g}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$	6.30	4.05	52.6	9.56	72.5
	所占比例/%	8.69	5.59	72.5	13.2	100

溉水,不同重金属元素4种输入途径的贡献比例差异较大。土壤Cu、Zn、Cd、Ni、Pb、Cr 6种重金属元素的主要输入源为畜禽粪便有机肥的施用,其占该元素总输入量的比例分别为86.1%、83.8%、76.6%、72.5%、64.3%和46.3%;土壤Hg、As的主要输入源为磷肥,其占总输入量的比例分别是52.6%和49.5%。大气沉

降输入到土壤中的Hg占总输入量的21.7%,灌溉水输入到土壤中As占土壤总输入比例为29.8%。这表明本体系和生产条件下,畜禽粪便和磷肥的施用是我国华北农田土壤中重金属主要输入源。比较同一输入源不同重金属元素的绝对输入量可以看出,各输入源中Zn的年绝对输入量都是最高的。

### 2.3 华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤不同重金属累积速率

华北农田小麦-玉米轮作体系下,依据土壤重金属主要输入项磷肥、畜禽粪便有机肥和灌溉水重金属含量不同分位值组合计算的土壤中重金属累积速率频率分布见图1。畜禽粪便有机肥、磷肥和灌溉水重金属含量不同分位值的组合每个元素共有343个组合,累积分布频率表示横坐标各累积速率下的累积频率。

由图1a看出,我国华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤Cd累积速率的中位值是 $0.002\ 38\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,其累积速率集中分布在2个范围,即 $0.000\ 246\sim 0.008\ 73\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 和 $0.019\ 0\sim 0.212\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。由此可知,华北平原50%的农田土壤中Cd的累积速率低于 $0.002\ 38\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,80%的农田土壤中Cd的累积速率低于 $0.008\ 73\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,95%的农田土壤中Cd的累积速率低于 $0.019\ 8\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

由图1b看出,我国华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤As累积速率的中位值是 $0.029\ 8\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,其累积速率分散分布在 $0.002\ 24\sim 0.119\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 范围内,低于90%部分分布较均匀,高于90%分位部分分布较分散。华北平原50%农田土壤中As的累积速率低于 $0.029\ 8\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,80%的农田土壤中As的累积速率低于 $0.060\ 6\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,95%的农田土壤中As的累积速率低于 $0.082\ 1\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

由图1c看出,我国华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤Hg累积速率的中位值是 $0.001\ 09\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,其累积速率集中分布在2个范围: $0.000\ 046\sim 0.003\ 4\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ , $0.008\ 65\sim 0.010\ 1\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。华北平原50%的农田土壤中Hg的累积速率低于 $0.001\ 09\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,80%的农田土壤中Hg的累积速率低于 $0.002\ 18\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,95%的农田土壤中Hg的累积速率低于 $0.008\ 87\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

由图1d看出,我国华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤Pb累积速率的中位值是 $0.050\ 7\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,其累积速率分散分布在 $0.005\ 33\sim 0.170\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 范围内,在高于90%分位的部分分布较稀疏。华北平原50%的农田土壤中Pb的累积速率低于 $0.050\ 7\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

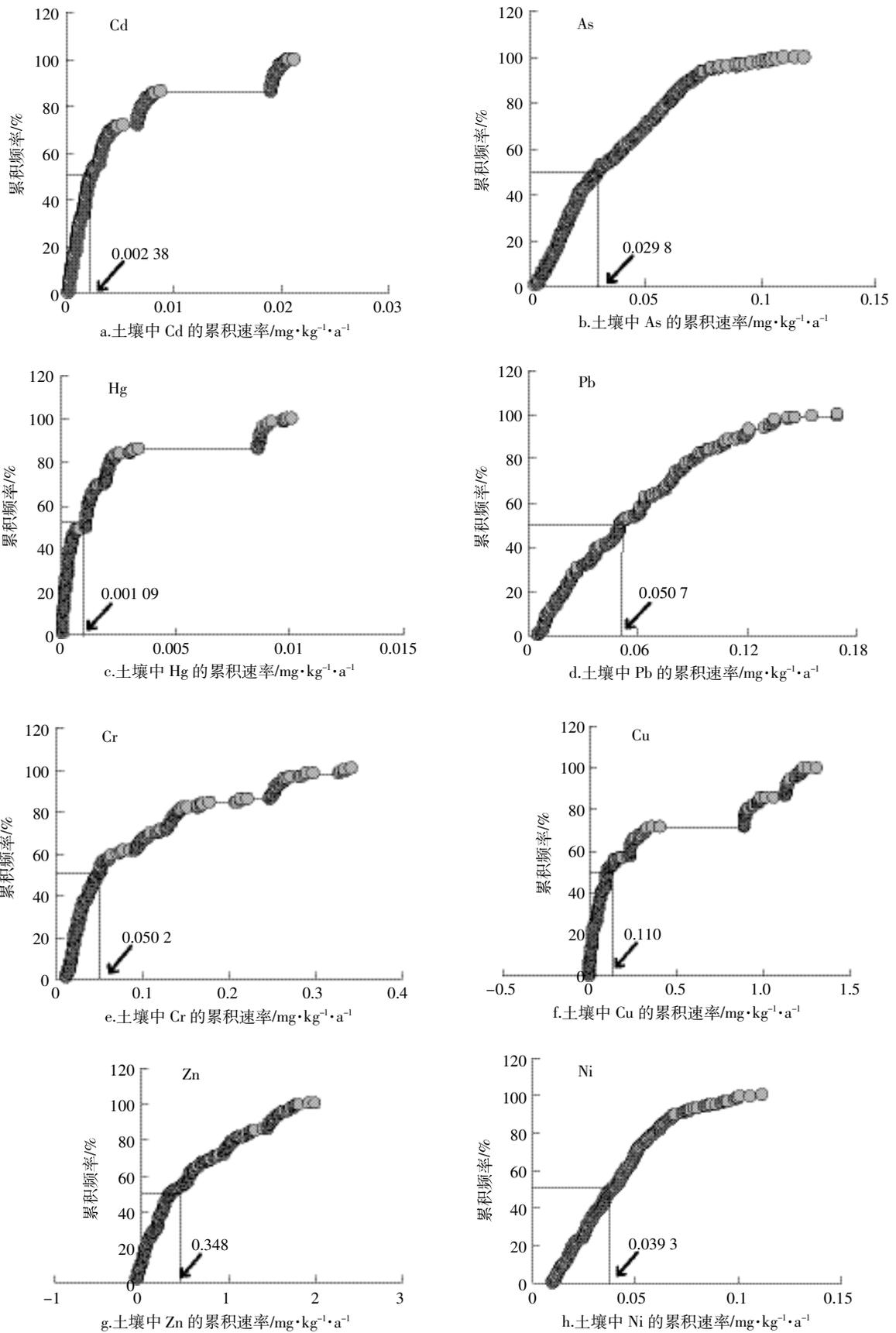


图 1 我国华北小麦-玉米轮作体系农田土壤中重金属累积速率的累积频率分析

Figure 1 Frequency distribution of annual accumulation of heavy metals in wheat-corn field system of north China

$\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,80%的农田土壤中 Pb 的累积速率低于  $0.092\ 0\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,95%的农田土壤中 Pb 的累积速率低于  $0.132\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

由图 1e 看出,我国华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤 Cr 累积速率的中位值是  $0.050\ 2\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,其累积速率分散分布在  $0.010\ 4\sim 0.343\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$  范围内。华北平原 50%的农田土壤中 Cr 的累积速率低于  $0.050\ 2\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,80%的农田土壤中 Cr 的累积速率低于  $0.091\ 8\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,95%的农田土壤中 Cr 的累积速率低于  $0.264\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

由图 1f 看出,我国华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤 Cu 累积速率的中位值是  $0.110\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,集中分布在 2 个范围: $0\sim 0.408\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,  $0.889\sim 1.31\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。华北平原 50%的土壤中 Cu 的累积速率低于  $0.110\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,80%的农田土壤中 Cu 的累积速率低于  $0.918\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,95%的农田土壤中 Cu 的累积速率低于  $1.18\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

由图 1g 看出,我国华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤 Zn 累积速率的中位值是  $0.348\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,其累积速率分散分布在  $0\sim 2.00\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$  的范围内。可知华北平原 50%的土壤中 Zn 的累积速率低于  $0.348\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,80%的农田土壤中 Zn 的累积速率低于  $1.11\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,95%的农田土壤中 Zn 的累积速率低于  $1.62\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

由图 1h 看出,我国华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤 Ni 累积速率的中位值是  $0.039\ 3\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,其累积速率分散分布在  $0.009\ 81\sim 0.112\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$  的范围内。华北平原 50%的土壤中 Ni 的累积速率低于  $0.039\ 3\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,80%的农田土壤中 Ni 的累积速率低于  $0.060\ 3\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ ,95%的农田土壤中 Ni 的累积速率低于  $0.087\ 2\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

### 3 讨论

农田土壤重金属被植物吸收后沿食物链进入人体,威胁人类健康。同时,重金属污染还会导致土壤肥力下降、农产品产量降低和作物品质下降<sup>[57]</sup>。由于土壤重金属污染有蓄积性、隐蔽性、不可逆性和长期性,并且重金属在土壤中的迁移性差,土壤一旦被重金属污染就会十分难治理,因此,了解我国不同区域农田土壤不同种植体系下重金属输入的主要途径,通过技术措施从源头上控制和减少重金属进入农田生态系统,保护农产品的质量和农产品产地安全是非常重要的手段。

#### 3.1 华北农田土壤重金属来源比例

本文通过数据库计算的华北农田土壤重金属的输入贡献顺序为:畜禽粪便>磷肥>灌溉水>大气沉降,其中 Cu、Zn、Cd 的来源比例与 Yang 等<sup>[58]</sup>对我国东部地区部分温室蔬菜种植土壤的研究结果相似,即畜禽粪便有机肥的施用是这 3 种重金属元素的最大来源,占总输入的 50%以上。统计结果也表明,自然界和人类活动向大气中排放 Hg 逐年增加,对人类健康造成威胁,大气沉降也成为土壤中 Hg 的重要来源,这与本文计算所得结论也相符合<sup>[59-60]</sup>;由于大气污染的日益严峻,大气沉降也成为土壤中重金属的重要来源,本文计算得出大气沉降对土壤 Hg、Cr、Ni、Pb、Cd 总输入的贡献率在 8%~22%范围内,输入元素种类与 Luo 等<sup>[6]</sup>对我国农田总体状况的研究结果基本一致,但贡献率有所差异。另外,在化肥与灌溉水 2 个来源对土壤中重金属的相对贡献率大小上,本文与章明奎等<sup>[61]</sup>对绍兴平原的研究结果存在一定差异,这可能是由于南北方施肥方式的差异以及环境质量的差异所致。在现代畜禽集约化养殖业中,含重金属的饲料添加剂广泛使用<sup>[62-63]</sup>,由于金属元素吸收比例低,大部分重金属元素动物直接排出体内,导致重金属元素在动物粪便中的含量提高,Kornegaye 等<sup>[64]</sup>研究发现,进入畜禽体内 90%的 Cu 元素将从粪便中排出。我国每年使用重金属元素饲料添加剂为  $1.5\times 10^5\sim 1.8\times 10^5\ \text{t}$ ,由于其生物利用率低,大约有  $10\times 10^5\ \text{t}$  未被利用而随粪尿排出<sup>[65-70]</sup>。本文的数据结果表明,畜禽粪便对所研究 8 种重金属的输入总量占农田重金属总输入量的 19.6%~86.1%。磷肥的施用也是农田重金属的一个重要来源,我国磷肥消费量居世界首位,约占世界磷肥消费量的 25%。2000—2005 年,磷肥产量年均递增 11.2%,表观消费量年均递增 7.0%<sup>[71]</sup>,华北地区重金属输入源中磷肥的贡献率仅次于畜禽粪便为 6.06%~52.6%。华北地区主要用地下水灌溉,地下水虽然比较洁净,但是也含有一定量的重金属元素,本文数据中灌溉水对土壤 8 种重金属的贡献率范围为 1.84%~29.8%,由于北方旱作灌溉水量大,其向农田中带入的重金属也不容忽视。许多工业发达国家,大气沉降对土壤系统中重金属累积贡献率在各种外源输入因子中排在首位<sup>[72]</sup>,大气污染越严重的地区由大气沉降输入土壤的重金属累积量越多。而本文的数据结果表明,大气沉降对所研究 8 种重金属的贡献率范围为 1.05%~21.7%,这是由于我国小麦-玉米轮作体系农田与蔬菜地不同,一般相对离城市较远,其大气沉降

量占的比例相对较少。华北农田土壤重金属主要来源于畜禽粪便和磷肥的施用,因此源头控制的有效措施是合理施用肥料和严格控制肥料中重金属含量。

### 3.2 关于华北农田土壤重金属累积速率

畜禽粪便和磷肥中重金属含量数据库表明,我国华北农田施用的畜禽粪便有机肥和磷肥中重金属的含量绝大部分没有超过国家标准的限定值,但若长期大量施用导致的土壤中重金属不断累积仍然会对人类健康造成很大威胁。本文中计算的各元素累积速率大小(中位值)的顺序为:Zn>Cu>Pb>Cr>Ni>As>Cd>Hg。Hu等<sup>[73]</sup>通过元素平衡法对南京郊区蔬菜地重金属的来源比例与累积速率的研究也得到相似结论,长期大量的施用有机肥是土壤表层重金属累积的主要原因,Cu、Zn的累积量大于Cd、Pb。但是由于不同元素的危害程度有所差异,评价各元素的潜在危害应参照我国土壤环境质量标准。如果依然延续现在的种植体系和施肥方式,按照各重金属元素累积速率的中位值计算可知,华北农田土壤中的重金属元素中容易超标的是Cd、Cr、Ni,其中Cd最易超标,按此累积速率42年后就会超过土壤环境质量Ⅱ级标准(pH 6.5~7.5)的限值,经过168年的累积会超过土壤环境质量Ⅱ级标准(pH>7.5)的限值;Cr含量经过220年就会超过土壤环境质量Ⅱ级标准(pH 6.5~7.5)的限值,经过319年的累积会超过土壤环境质量Ⅱ级标准(pH>7.5)的限值;Ni含量经过255年就会超过土壤环境质量Ⅱ级标准(pH 6.5~7.5)的限值,经过509年的累积会超过土壤环境质量Ⅱ级标准(pH>7.5)的限值。而土壤中Pb最不容易超过土壤环境质量Ⅱ级标准。根据本文统计的数据显示,Cd、Cr、Ni的最大输入源均为畜禽粪便有机肥的施用。因此,控制农田土壤污染的关键是畜禽粪便有机肥的合理施用和严格控制所施用的畜禽粪便有机肥中的重金属含量。

## 4 结论

(1)我国华北农田小麦-玉米轮作体系,地下水灌溉和秸秆还田条件下,土壤Cu、Zn、Cd、Ni、Pb、Cr 6种重金属元素的主要输入源为畜禽粪便有机肥,其占该元素总输入量的比例分别是86.1%、83.8%、76.6%、72.5%、64.3%和46.3%;土壤Hg、As的主要输入源为磷肥,其占总输入量的比例分别是52.6%和49.5%。灌溉水也是As的重要输入源,占总输入量的29.8%,大气沉降占Hg总输入量的21.7%。

(2)我国华北农田小麦-玉米轮作体系,地下水灌

溉和秸秆还田条件下,土壤各重金属元素的累积速率的中位值分别为: Cd  $0.002\ 38\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ , As  $0.029\ 8\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ , Hg  $0.001\ 09\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ , Pb  $0.050\ 7\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ , Cr  $0.050\ 2\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ , Cu  $0.110\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ , Zn  $0.348\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ , Ni  $0.039\ 3\ \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$ 。在这8种元素中,相对我国土壤环境质量标准限值,Cd、Cr、Ni最容易超标,在土壤重金属污染防治中应重点关注。

### 参考文献:

- [1] Khan S, Cao Q, Zheng Y M, et al. Health risks of heavy metals in contaminated soils and food crops irrigated with wastewater in Beijing, China[J]. *Environmental Pollution*, 2008, 152(3): 686-692.
- [2] Mansour S A, Gad M F. Risk assessment of pesticides and heavy metals contaminants in vegetables: a novel bioassay method using *Daphnia Magna* Straus[J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2010, 48(1): 377-389.
- [3] 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(1): 205-219.
- [4] Luo L, Ma Y B, Zhang S Z, et al. An inventory of trace element inputs to agricultural soils in China[J]. *Environmental Management*, 2009, 90(8): 2524-2530.
- [5] 国家统计局. 国家统计局关于2013年粮食产量的公告[EB/OL]. [http://www.stats.gov.cn/tjsj/zxfb/201311/t20131129\\_475486.html](http://www.stats.gov.cn/tjsj/zxfb/201311/t20131129_475486.html), 2013-11-29.  
NBS. An announcement regarding 2013 grain production published by NBS[EB/OL]. [http://www.stats.gov.cn/tjsj/zxfb/201311/t20131129\\_475486.html](http://www.stats.gov.cn/tjsj/zxfb/201311/t20131129_475486.html), 2013-11-29. (in Chinese)
- [6] 岳现录. 华北平原小麦-玉米轮作中有机肥氮素利用与去向研究[D]. 北京: 中国农业科学院, 2009.  
YUE Xian-lu. Study on nitrogen fate and efficiency of organic manure in wheat-maize rotation in north China plain[D]. Beijing: Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2009. (in Chinese)
- [7] 黄鸿翔, 李书田, 李向林, 等. 我国有机肥的现状与发展前景分析[J]. *土壤肥料*, 2006(1): 3-8.  
HUANG Hong-xiang, LI Shu-tian, LI Xiang-lin, et al. Analysis on the status of organic fertilizer and its development strategies in China[J]. *Soil and Fertilizer*, 2006(1): 3-8. (in Chinese)
- [8] 王淑芬, 张喜英, 裴冬. 不同供水条件对冬小麦根系分布、产量及水分利用效率的影响[J]. *农业工程学报*, 2006, 22(2): 27-32.  
WANG Shu-fen, ZHANG Xi-ying, PEI Dong. Impacts of different water supplied conditions on root distribution, yield and water utilization efficiency of winter wheat[J]. *Transactions of the CSAE*, 2006, 22(2): 27-32. (in Chinese)
- [9] 张福锁, 陈新平, 陈清, 等. 中国主要作物施肥指南[M]. 北京: 中国农业出版社, 2009: 10-15.  
ZHANG Fu-suo, CHEN Xin-ping, CHEN Qing, et al. Fertilization guide of main crops in China[M]. Beijing: China Agricultural University Press, 2009: 10-15. (in Chinese)
- [10] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. GB 5084—2005. 农田灌溉水质标准[S]. 北京: 中国标准出版社, 2005.

- AQSIQ, SAC. GB 5084—2005. Standards for irrigation water quality [S]. Beijing: Standards Press of China, 2005. (in Chinese)
- [11] 中华人民共和国统计局. 2006—2010 中国农业统计年鉴[M]. 北京: 中国统计出版社.  
National Bureau of Statistics of the People's Republic of China. 2006—2010 China agriculture yearbook[M]. Beijing: China Statistics Press. (in Chinese)
- [12] 张福锁. 我国肥料产业与科学施肥战略研究报告[M]. 北京: 中国农业大学出版社, 2008: 61—71.  
ZHANG Fu-suo. A strategic research report on fertilizer industry and scientific fertilization in China[M]. Beijing: China Agricultural University Press, 2008: 61—71. (in Chinese)
- [13] 李晓燕, 陈同斌, 谭勇壁, 等. 北京市小麦籽粒的重金属含量及其健康风险分析[J]. 地理研究, 2008, 27(6): 1340—1346.  
LI Xiao-yan, CHEN Tong-bin, TAN Yong-bi, et al. Concentrations and risk of heavy metals in grain of wheat grown in Beijing[J]. *Geographical Research*, 2008, 27(6): 1340—1346. (in Chinese)
- [14] 何凤, 李瑞敏, 王轶, 等. 河南黄淮平原土壤-小麦系统中重金属 Cr 响应关系研究[J]. 地球与环境, 2008, 36(4): 309—314.  
HE Feng, LI Rui-min, WANG Yi, et al. The study and application of the response relation about chromium in the soil-wheat system in Huanghuai plain, Henan province, China[J]. *Earth and Environment*, 2008, 36(4): 309—314. (in Chinese)
- [15] 刘昉, 李瑞敏, 刘永生, 等. 基于土壤-小麦系统的河南黄淮平原 As 生态安全评价[J]. 地质通报, 2009, 28(4): 523—530.  
LIU Yun, LI Rui-min, LIU Yong-sheng, et al. Ecological safety evaluation based on soil-wheat system for arsenic in Huanghuai plain, Henan province, China[J]. *Geological Bulletin of China*, 2009, 28(4): 523—530. (in Chinese)
- [16] 刘建武, 李树人, 阎志平, 等. 郑州市郊不同灌溉区小麦籽粒重金属污染现状评价[J]. 河南农业大学学报, 2002, 36(1): 67—69.  
LIU Jian-wu, LI Shu-ren, YAN Zhi-ping, et al. Assessment of pollution of heavy metals on wheat irrigated by the different water in Zhengzhou suburbs[J]. *Journal of Henan Agricultural University*, 2002, 36(1): 67—69. (in Chinese)
- [17] 姜丽娜, 蒿宝珍, 张黛静, 等. 小麦籽粒 Zn、Fe、Mn、Cu 含量的基因型和环境差异及与产量关系的研究[J]. 中国生态农业学报, 2010, 18(5): 982—987.  
JIANG Li-na, HAO Bao-zhen, ZHANG Dai-jing, et al. Genotypic and environmental differences in grain contents of Zn, Fe, Mn and Cu and how they relate to wheat yield[J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2010, 18(5): 982—987. (in Chinese)
- [18] 张勇, 王德森, 张艳, 等. 北方冬麦区小麦品种籽粒主要矿物质元素含量分布及其相关性分析[J]. 中国农业科学, 2007, 40(9): 1871—1876.  
ZHANG Yong, WANG De-sen, ZHANG Yan, et al. Variation of major mineral elements concentration and their relationships in grain of Chinese wheat[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2007, 40(9): 1871—1876. (in Chinese)
- [19] 邵云, 李春喜, 李向力, 等. 土壤-小麦系统中 5 种重金属含量的相关分析[J]. 河南农业科学, 2007(5): 25—28.  
SHAO Yun, LI Chun-xi, LI Xiang-li, et al. Correlation analysis among the contents of five heavy metals in soil-wheat system[J]. *Journal of Henan Agricultural Sciences*, 2007(5): 25—28. (in Chinese)
- [20] 夏来坤, 郭天财, 王晨阳, 等. Cu、Pb、Cd 在冬小麦植株体内积累规律的初步研究[J]. 西北农业学报, 2005, 14(5): 10—13.  
XIA Lai-kun, GUO Tian-cai, WANG Chen-yang, et al. Preliminary study on accumulation of Cu, Pb and Cd in winter wheat plants[J]. *Acta Agriculturae Boreali-occidentalis Sinica*, 2005, 14(5): 10—13. (in Chinese)
- [21] 郝志, 田纪春, 孙玉, 等. 不同粒色小麦籽粒中铁锌铜锰含量及其与种皮色素的相关分析[J]. 中国粮油学报, 2008, 23(3): 12—16.  
HAO Zhi, TIAN Ji-chun, SUN Yu, et al. Correlation analysis between contents of Cu, Fe, Zn, Mn and pigmentation of testa in different color wheat[J]. *Journal of the Chinese Cereals and Oils Association*, 2008, 23(3): 12—16. (in Chinese)
- [22] 黄萍霞. 不同小麦品种对 Cd、Pb 的响应和机理研究[D]. 扬州: 扬州大学, 2007.  
HUANG Ping-xia. Response and mechanism on different wheat varieties to lead and cadmium[D]. Yangzhou: Yangzhou University, 2007. (in Chinese)
- [23] 张黛静, 姜丽娜, 张志娟, 等. ICP-MS/ICP-AES 测定小麦穗离体培养籽粒营养元素及重金属含量[J]. 光谱学与光谱分析, 2011, 31(7): 1935—1938.  
ZHANG Dai-jing, JIANG Li-na, ZHANG Zhi-juan, et al. Application of ICP-MS/ICP-AES to detecting nutrition and heavy metal contents in grain of detached wheat spikes in vitro culture[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2011, 31(7): 1935—1938. (in Chinese)
- [24] 郝志, 田纪春, 姜小琴. 小麦主要亲缘种籽粒的 Fe、Zn、Cu、Mn 含量及其聚类分析[J]. 作物学报, 2007, 33(11): 1834—1839.  
HAO Zhi, TIAN Ji-chun, JIANG Xiao-ling. Analyses of Fe, Zn, Cu, and Mn contents in grains and grouping based on the contents for main kindred germplasm of common wheat[J]. *Acta Agronomica Sinica*, 2007, 33(11): 1834—1839. (in Chinese)
- [25] 王晓瑞, 周生路, 吴绍华. 长江三角洲地区小麦植株的重金属分布及其相关性——以昆山市为例[J]. 地理科学, 2011, 31(2): 226—230.  
WANG Xiao-rui, ZHOU Sheng-lu, WU Shao-hua. Distribution and relationship of heavy metals in wheat in the Changjiang River Delta—A case study of kunshan[J]. *Scientia Geographica Sinica*, 2011, 31(2): 226—230. (in Chinese)
- [26] 郭凤台, 张航, 杨庆娥, 等. 污水灌溉对小麦和玉米的重金属积累和分布的影响[J]. 节水灌溉, 2008(2): 14—16.  
GUO Feng-tai, ZHANG Hang, YANG Qing-e, et al. Affection of heavy metals accumulation and distribution in plant under sewage irrigation[J]. *Water Saving Irrigation*, 2008(2): 14—16. (in Chinese)
- [27] 王云霞, 杨连新, Walter J H. 重金属复合处理对小麦锌铜镍镉积累和分布的影响[J]. 农业环境科学学报, 2011, 30(11): 2145—2151.  
WANG Yun-xia, YANG Lian-xin, Walter J H. The accumulation pattern of Zn, Cu, Ni, Cd in wheat grown in heavy-metal enriched substrate[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2011, 30(11): 2145—2151. (in Chinese)
- [28] 王蔚华. 小麦金属元素吸收分配特性及胁迫生理效应研究[D]. 扬州: 扬州大学, 2004.  
WANG Wei-hua. Metal elements absorption and distribution characteristics and stress physiology in wheat[D]. Yangzhou: Yangzhou University, 2004. (in Chinese)
- [29] 张睿, 郭月霞, 南春芹. 不同施肥水平下小麦籽粒中部分微量元素含量的研究[J]. 西北植物学报, 2004(1): 125—129.

- ZHANG Rui, GUO Yue-xia, NAN Chun-qin. Study on trace elements of wheat grain in different fertilizer treatments[J]. *Acta Botanica Boreali-occidentalia Sinica*, 2004(1): 125-129.(in Chinese)
- [30] 姜丽娜, 郑冬云, 蒿宝珍, 等. 氮肥对小麦不同品种籽粒微量元素含量的影响[J]. 西北农业学报, 2009, 18(6): 97-102.  
JIANG Li-na, ZHENG Dong-yun, HAO Bao-zhen, et al. Effects of nitrogen on micronutrient concentration and accumulation in grains of wheat[J]. *Acta Agriculturae Boreali-occidentalis Sinica*, 2009, 18(6): 97-102.(in Chinese)
- [31] 李峰, 田霄鸿, 陈玲, 等. 栽培模式、施氮量和播种密度对小麦子粒中锌、铁、锰、铜含量和携出量的影响[J]. 土壤肥料, 2006(2): 42-46.  
LI Feng, TIAN Xiao-hong, CHEN Ling, et al. Effect of planting model, N fertilization and planting density on concentration and uptake of Zn, Fe, Mn and Cu in grains of winter wheat[J]. *Soil and Fertilizer*, 2006(2): 42-46.(in Chinese)
- [32] 郭明慧, 裴自友, 温辉芹, 等. 普通小麦品种籽粒矿质元素含量分析[J]. 中国农学通报, 2011, 27(18): 41-44.  
GUO Ming-hui, PEI Zi-you, WEN Hui-qin, et al. Mineral elements concentration analysis on major wheat cultivars[J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2011, 27(18): 41-44.(in Chinese)
- [33] 王爱芹, 王明森, 辛宏杰, 等. 再生水灌溉条件对小麦品质、产量及重金属影响的试验研究[J]. 节水灌溉, 2012(1): 18-21.  
WANG Ai-qin, WANG Ming-sen, XIN Hong-jie, et al. Study on quality, yield and heavy metal content of wheat irrigation by reclaimed water[J]. *Water Saving Irrigation*, 2012(1): 18-21.(in Chinese)
- [34] 刘树堂, 赵永厚, 孙玉林, 等. 25 年长期定位施肥对非石灰性潮土重金属状况的影响[J]. 水土保持学报, 2005, 19(1): 164-167.  
LIU Shu-tang, ZHAO Yong-hou, SUN Yu-lin, et al. Effects of 25 years long-term located fertilization on status of heavy metals in non-calcareous fluoro-aquic soil[J]. *Journal of Soil and Water Conservation*, 2005, 19(1): 164-167.(in Chinese)
- [35] 严连香. 不同工业企业周围土壤-作物系统重金属空间变异及其迁移转化规律研究[D]. 南京: 南京农业大学, 2007.  
YAN Lian-xiang. Accumulation and transfer of heavy metal in the soil-crop systems around different point sources[D]. Nanjing: Nanjing Agricultural University, 2007.(in Chinese)
- [36] 刘帆, 程波, 张志敏, 等. 城市再生水灌溉区作物重金属的健康风险研究[J]. 中国农学通报, 2008, 24(4): 445-449.  
LIU Fan, CHENG Bo, ZHANG Zhi-min, et al. The research on health risks of heavy metal in farmland from the city epigenetic irrigated area[J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2008, 24(4): 445-449.(in Chinese)
- [37] 付克强, 李占雷, 王殿武, 等. 湖泊底泥与无机肥配施对土壤化学性质和冬小麦籽粒重金属 Cd 的影响[J]. 水土保持学报, 2007, 21(1): 68-71.  
FU Ke-qiang, LI Zhan-lei, WANG Dian-wu, et al. Effects of lake sediment and inorganic fertilizer combined application on soil chemical properties and heavy metal (Cd) of winter wheat seed[J]. *Journal of Soil and Water Conservation*, 2007, 21(1): 68-71.(in Chinese)
- [38] 徐友宁, 张江华, 刘瑞平, 等. 金矿区农田土壤重金属污染的环境效应分析[J]. 中国地质, 2007, 34(4): 716-722.  
XU You-ning, ZHANG Jiang-hua, LIU Rui-ping, et al. Environmental effects of heavy metal pollution of farmland soils in gold mining areas[J]. *Geology in China*, 2007, 34(4): 716-722.(in Chinese)
- [39] 刘建武. 郑州市郊区不同灌区土壤-作物系统有害元素富集规律研究[D]. 郑州: 河南农业大学, 2000.  
LIU Jian-wu. Study on regulations that harmful elements are absorbed in soil-crop (rice, wheat) system in the four sorts of irrigation fields in the suburb of Zhengzhou city[D]. Zhengzhou: Henan Agricultural University, 2000.(in Chinese)
- [40] 李宗梅. 天津市污灌区土壤-小麦系统重金属污染评价及相关分析[D]. 天津: 天津师范大学, 2006.  
LI Zong-mei. Assessment and correlation analysis of heavy metals pollution in soil-wheat system of Tianjin sewage farm[D]. Tianjin: Tianjin Normal University, 2006.(in Chinese)
- [41] 冯绍元, 齐志明, 黄冠华, 等. 重金属在夏玉米作物体中残留特征的田间试验研究[J]. 灌溉排水学报, 2003, 22(6): 9-13.  
FENG Shao-yuan, QI Zhi-ming, HUANG Guan-hua, et al. Field experimental study on the residue of heavy metal in summer corn[J]. *Journal of Irrigation and Drainage*, 2003, 22(6): 9-13.(in Chinese)
- [42] 王新, 周启星, 贾永锋. Cd 和 Cu 在草甸棕壤-植物系统中行为特性的研究[J]. 生态环境, 2005, 14(6): 838-842.  
WANG Xin, ZHOU Qi-xing, JIA Yong-feng. Behavioral characteristics of Cd and Cu in meadow brown soil-plant system[J]. *Ecology and Environment*, 2005, 14(6): 838-842.(in Chinese)
- [43] 刘玉荣. 不同农田生态系统土壤汞的初步研究[D]. 武汉: 华中农业大学, 2007.  
LIU Yu-rong. A primary study on mercury in soil of different agricultural ecosystems[D]. Wuhan: Huazhong Agricultural University, 2007.(in Chinese)
- [44] 王玉芳. 不同阴离子形态锌化合物胁迫下玉米的生理生态特征研究[D]. 济南: 山东大学, 2008.  
WANG Yu-fang. The eco-physiological study of corn under various anionic zinc stress has important theoretical and practical meaning[D]. Jinan: Shandong University, 2008.(in Chinese)
- [45] 吴传星. 不同玉米品种对重金属吸收累积特性研究[D]. 雅安: 四川农业大学, 2010.  
WU Chuan-xing. Study on characteristics of heavy metal absorption and accumulation in the different maize varieties[D]. Yaan: Sichuan Agricultural University, 2010.(in Chinese)
- [46] 魏明. 城市污水回灌农田中重金属安全性评价[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2006.  
WEI Ming. The assessment of heavy metal safety of urban sewage irrigated farmlands[D]. Qingdao: Ocean University of China, 2006.(in Chinese)
- [47] 周永锋, 刘兴成, 周艳琳. 肥料中重金属含量及其对于旱灌溉农区玉米吸收累积的影响[J]. 农业环境科学学报, 2006(9): 503-506.  
ZHOU Yong-feng, LIU Xing-cheng, ZHOU Yan-lin. Contents of heavy metals in fertilizers and their accumulation corn under arid agriculture with irrigation[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2006(9): 503-506.(in Chinese)
- [48] 黄占斌, 苗战霞, 侯利伟, 等. 再生水灌溉时期和方式对作物生长及品质的影响[J]. 农业环境科学学报, 2007, 26(6): 2257-2261.  
HUANG Zhan-bin, MIAO Zhan-xia, HOU Li-wei, et al. Effect of irrigation time and mode with reclaimed water on growth and quality of crop[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2007, 26(6): 2257-2261.(in Chinese)

- [49] 王守忠, 王宇, 张晓萍, 等. 规模养殖场周边土壤谷物重金属污染现状的调查[J]. 现代畜牧兽医, 2012(4): 56-58.  
WANG Shou-zhong, WANG Yu, ZHANG Xiao-ping, et al. Heavy metal pollution survey of soil and grain around breeding farms[J]. *Modern Journal of Animal Husbandry and Veterinary Medicine*, 2012(4): 56-58. (in Chinese)
- [50] 张丽红, 徐慧珍, 于青春, 等. 河北清苑县及周边农田土壤及农作物中重金属污染状况与分析评价[J]. 农业环境科学学报, 2010, 29(11): 2139-2146.  
ZHANG Li-hong, XU Hui-zhen, YU Qing-chun, et al. The investigation and evaluation of the heavy metal pollution in farmland soil and crop in the Qingyuan of Hebei, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2010, 29(11): 2139-2146. (in Chinese)
- [51] 李红英. 作物中 Cd 和 Zn 的含量与土壤性质及土壤中 Cd, Zn 总含量的关系[J]. 宁夏工程技术, 2002, 1(3): 221-223.  
LI Hong-ying. The relationship between the heavy metals Cd, Zn in crop and soil properties, the total content of Cd and Zn[J]. *Ningxia Engineering Technology*, 2002, 1(3): 221-223. (in Chinese)
- [52] 乌爱军, 陈跃月, 凌爽, 等. 铁岭地区主要作物重金属元素地球化学特征[J]. 地质与资源, 2008, 17(4): 302-306.  
WU Ai-jun, CHEN Yue-yue, LING Shuang, et al. Geochemical characteristics of heavy metal elements in paddy and corn from Tieling, Liaoning province[J]. *Geology and Resources*, 2008, 17(4): 302-306. (in Chinese)
- [53] 梁丽娜, 黄雅曦, 杨合法, 等. 污泥农用对土壤和作物重金属累积及作物产量的影响[J]. 农业工程学报, 2009(6): 81-86.  
LIANG Li-na, HUANG Ya-xi, YANG He-fa, et al. Effects of farmland application of sewage sludge on crop yields and heavy metal accumulation in soil and crop[J]. *Transactions of the CSAE*, 2009(6): 81-86. (in Chinese)
- [54] 张翔, 毛家伟, 孙春河, 等. 污泥在玉米上的施用效果初探[J]. 河南农业科学, 2006(9): 87-89.  
ZHANG Xiang, MAO Jia-wei, SUN Chun-he, et al. Effects of sludge on maize[J]. *Journal of Henan Agricultural Sciences*, 2006(9): 87-89. (in Chinese)
- [55] 王宇, 李业东, 曹国军, 等. 长春地区土壤中重金属含量及其在玉米子粒中的积累规律[J]. 玉米科学, 2008, 16(2): 80-82.  
WANG Yu, LI Ye-dong, CAO Guo-jun, et al. Content of heavy metals in soil and accumulation rule on maize grain in Changchun area[J]. *Journal of Maize Sciences*, 2008, 16(2): 80-82. (in Chinese)
- [56] 毛岭峰, 彭培好, 陈文德. 重庆地区主要作物重金属富集特征[J]. 生态学杂志, 2009(6): 1117-1122.  
MAO Ling-feng, PENG Pei-hao, CHEN Wen-de. Enrichment characteristics of heavy metals in main crops in Chongqing[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2009(6): 1117-1122. (in Chinese)
- [57] Kloke A D R, Saverback. Changing metal cycles and human health[M]. Berlin: Springer-Verilog, 1984: 113-141.
- [58] Yang L, Huang B, Hu W, et al. Assessment and source identification of trace metals in the soils of greenhouse vegetable production in eastern China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, 97: 204-209.
- [59] Wu Y, Wang S, Streets D G, et al. Trends in anthropogenic mercury emissions in China from 1995 to 2003[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(17): 5312-5318.
- [60] Pacyna E G, Pacyna J M, Sundseth K, et al. Global emission of mercury to the atmosphere from anthropogenic sources in 2005 and projections to 2020[J]. *Atmospheric Environment*, 2010, 44(20): 2487-2499.
- [61] 章明奎, 杨东伟. 绍兴平原二种典型农田系统中重金属流及其平衡分析[J]. 生态环境学报, 2010, 19(2): 320-324.  
ZHANG Ming-kui, YANG Dong-wei. Flows and mass balance of heavy metals in two typical farming systems in Shaoxing plain, Zhejiang province, China[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2010, 19(2): 320-324. (in Chinese)
- [62] Chen Y S, Zhang H B, Luo Y M, et al. Occurrence and assessment of veterinary antibiotics in swine manures: A case study in east China[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2012, 57(6): 606-614.
- [63] Chen Y S, Zhang H B, Luo Y M, et al. Occurrence and dissipation of veterinary antibiotics in two typical swine waste water treatment systems in east China[J]. *Environ Monit Assess*, 2012, 184(4): 2205-2217.
- [64] Kornegaye E T, Hedges J D, Martens D C, et al. Effect on soil and plant mineral levels following application of manures of different copper contents[J]. *Plant and Soil*, 1976, 45(1): 151-162.
- [65] Bound J P, Voulvoulis N. Pharmaceuticals in the aquatic environment—a comparison of risk assessment strategies[J]. *Chemosphere*, 2004, 56(11): 1143-1155.
- [66] Sarmah A K, Meyer M T, Boxall A. A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment[J]. *Chemosphere*, 2006, 65(5): 725-759.
- [67] Zhou Q X, Zhang Q R, Sun T H. Technical innovation of land treatment systems for municipal wastewater in north east China[J]. *Pedosphere*, 2006, 16(3): 297-303.
- [68] 贾秀英, 罗安程, 李喜梅. 高铜高锌猪粪对蚯蚓的急性毒性效应研究[J]. 应用生态学报, 2005, 16(8): 1527-1530.  
JIA Xiu-ying, LUO An-cheng, LI Xi-mei. Acute toxicological effects of excessive Cu and Zn-containing in pig manure on earthworm[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2005, 16(8): 1527-1530. (in Chinese)
- [69] Long C, Wang Y J, Zhou D M, et al. Heavy metals pollution in poultry and livestock feeds and manures under intensive farming in Jiangsu province, China[J]. *Environmental Sciences*, 2004, 16(3): 371-374.
- [70] Li Y X, Chen T B. Concentrations of additive arsenic in Beijing pig feeds and the residues in pig manure[J]. *Resources, Conservation and Recycling*, 2005, 45(4): 356-367.
- [71] 武雪梅. “十五”期间我国磷肥、硫酸行业生产和消费概述[J]. 磷肥与复肥, 2006, 21(4): 1-4.  
WU Xue-mei. The production and consumption of domestic phosphate fertilizer and sulfuric acid during the period of the Tenth Five Year Plan[J]. *Phosphate & Compound Fertilizer*, 2006, 21(4): 1-4. (in Chinese)
- [72] 和莉莉, 李冬梅, 吴钢. 我国城市土壤重金属污染研究现状和展望[J]. 土壤通报, 2008, 39(5): 1210-1216.  
HE Li-li, LI Dong-mei, WU Gang. Heavy metal contamination of urban soils in China: state and prospect[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2008, 39(5): 1210-1216. (in Chinese)
- [73] Hu W Y, Huang B, Shi X Z, 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.