

董文, 张青, 王煌平, 等. 长期施用污泥对土壤-萝卜系统重金属积累及土壤养分含量的影响[J]. 农业资源与环境学报, 2021, 38(4): 647–654.

DONG Wen, ZHANG Qing, WANG Huang-ping, et al. Effects of the long-term application of sludge on heavy metal accumulation and soil nutrient content in soil-radish system[J]. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, 2021, 38(4): 647–654.



开放科学 OSID

长期施用污泥对土壤-萝卜系统 重金属积累及土壤养分含量的影响

董文^{1,2}, 张青², 王煌平², 罗涛^{3*}

(1. 福建农林大学资源与环境学院, 福州 350002; 2. 福建省农业科学院土壤肥料研究所/福建省地力培育工程技术研究中心, 福州 350013; 3. 福建省农业科学院农业生态研究所/福建省丘陵地区循环农业工程技术研究中心, 福州 350013)

摘要:为了探究不同用量污泥长期施用后对土壤-萝卜系统中重金属及土壤养分含量的影响,采用长期定位试验,研究连续10年单施化肥(CK)以及施用不同用量(4.5、9、13.5、18 t·hm⁻²)污泥对土壤、萝卜叶(地上部)和萝卜(地下部)中重金属(Pb、Cd、Cr、Ni、Cu、Zn)累积情况及土壤pH、有机质及氮磷钾含量的影响。结果表明:连续施用10年后,单施化肥和不同用量污泥处理对萝卜产量影响不大,土壤、萝卜叶和萝卜中的Pb、Cd、Cr、Ni、Cu和Zn含量均随污泥施用量的增加而增加,且中量和高量污泥处理中重金属的累积量较大,显著或极显著高于对照、低量和中量处理。中量以上污泥处理土壤的Pb、Cr、Ni和Cu超出了土壤环境质量国家标准;除高量污泥处理Pb超标外,其他处理萝卜的各重金属含量均未超过食品安全国家标准。与CK处理相比,长期施用不同用量污泥能提高土壤pH 0.58~0.71个单位,并显著或极显著地提高有机质、全量氮磷以及速效氮磷含量。研究表明,连续10年施用不同用量污泥,土壤和萝卜中Pb、Cd、Cr、Ni、Cu、Zn的含量随污泥用量的增加而增加,其中Pb、Ni、Cr和Cu出现超标现象,萝卜中的重金属含量除高量污泥处理中Pb超标外,其他处理均未超过食品安全国家标准。随着作物产地土壤中污泥施用年限增长或用量增加,食品安全应得到更多的重视。

关键词:长期施用;污泥;土壤重金属;积累;土壤养分;萝卜

中图分类号:X53;S158

文献标志码:A

文章编号:2095-6819(2021)04-0647-08

doi: 10.13254/j.jare.2020.0449

Effects of the long-term application of sludge on heavy metal accumulation and soil nutrient content in soil-radish system

DONG Wen^{1,2}, ZHANG Qing², WANG Huang-ping², LUO Tao^{3*}

(1. College of Resources and Environment, Fujian Agriculture and Forestry University, Fuzhou 350002, China; 2. Institute of Soil Fertilizer, Fujian Academy of Agricultural Sciences / Fujian Provincial Engineering Research Center for Geotechnical Cultivation, Fuzhou 350013, China; 3. Institute of Agricultural Ecology, Fujian Academy of Agricultural Sciences / Fujian Engineering and Technology Research Center for Recycling Agriculture, Fuzhou 350013, China)

Abstract: To explore the effects of the long-term application of different amounts of sludge on soil nutrients and the contents of heavy metals in soils and radishes, a long-term positioning experiment was conducted. The effects of the accumulation of heavy metals, such as lead (Pb), cadmium (Cd), chromium (Cr), nickel (Ni), copper (Cu), and zinc (Zn), in soils and radishes were studied by applying chemical

收稿日期:2020-08-22 录用日期:2020-11-02

作者简介:董文(1995—),女,山西阳泉人,硕士研究生,从事农业废弃物资源化利用研究。E-mail: 1343638289@qq.com

*通信作者:罗涛 E-mail: luotaofjz@188.com

基金项目:福建省科技重大专项(2017NZ0001-1);福建省农业科学院科技创新团队项目(STIT2017-2-10);福建省省属公益类科研院所基本科研专项(2017R1022-1)

Project supported: The Special Fund for Key Program of Science and Technology of Fujian Province, China (2017NZ0001-1); Technical Innovation Team of Fujian Academy of Agricultural Sciences (STIT2017-2-10); The Special Scientific Research Fund of Public Welfare Profession of Fujian Province, China (2017R1022-1)

fertilizer(CK) and different levels of sludge(4.5, 9, 13.5 t·hm⁻², and 18 t·hm⁻²). The pH values, organic matter(OM) content, and the total and available nutrients of nitrogen(N), phosphorus(P), and potassium(K) in soils were also analyzed. The results showed that continuous application of the chemical fertilizer and sludge for 10 years had little impact on the yields of radish, and the contents of Pb, Cd, Cr, Ni, Cu, and Zn in the soils and radishes were increased with the increase of sludge dosages. When compared with the other treatments, the accumulation of heavy metals in treatments of medium-high and high amounts of sludge were significantly or extremely significantly high. However, the contents of Pb, Cr, Ni, and Cu in soils treated with above-medium levels of sludge exceeded the national soil environmental quality standard. Furthermore, most heavy metal contents in radishes were not beyond the national food safety standard, except for the Pb content in radish with a high amount of sludge. The soil pH values, OM content, and the total and available nutrients of N, P, and K were higher than those of the CK treatment. The soil pH values increased from 0.58 to 0.71 units. The contents of OM and nutrients increased significantly and extremely significantly, respectively. Therefore, after 10 years of applying different amounts of sludge, the contents of heavy metals in soils and radishes increased with the increase of the amount of sludge. Among them, Pb, Ni, Cr, and Cu exceeded the soil safety standard but only Pb content in radish in the treatment of high amounts of sludge exceeded the food safety standard. However, with the increase of test years or the amounts of sludge, more attention should be paid to food safety considerations.

Keywords: long-term application; sludge; soil heavy metals; accumulation; soil nutrients; radish

随着我国城市经济的快速发展以及城市人口增长,污水处理量越来越大,污泥的产量也急剧增加。GEP Research发布的《全球及中国污泥处理处置行业发展研究报告(2018)》显示,2018年中国污泥总产量为5 665万t,比2017年增长了3.3%。城市污泥的堆肥利用是目前最有发展前景、最经济有效,符合我国国情的处理方式之一^[1-2],在欧洲,这种污泥堆肥农用的历史已有多年^[3],尽管欧洲各国所采用的污泥处置方法差别很大,但污泥农用还是主要的处理方式之一^[4]。我国城市污水处理厂的污泥含有一定量的有机质和氮磷钾等养分,其中有机物的含量一般为40%~70%,比一般农家肥要高^[5],因此污泥农用能够提高土壤养分,改善土壤结构,提高农作物产量^[6-7]。但是污泥来源于各种生活污水和工业废水,含有各种重金属、有机污染物等有害物质,这些有害物质,尤其是重金属Pb、Cd、Ni、Cu、Zn等造成的环境污染,一直是人们关心的问题^[8]。

污泥中重金属含量是限制污泥农用的重要指标之一^[9-10]。大量研究表明,污泥堆肥农用会使土壤中的重金属含量增加。许晓玲等^[11]研究连续3茬大豆施用污泥发现,土壤中重金属含量随着污泥堆肥用量的增加而增加,施用污泥堆肥显著增加了微量元素

Cu和Zn的含量,对重金属Cd、Cr和Pb含量的影响不大。翟丽梅等^[12]的研究表明,连续5年施用污泥后,90% Hg主要累积在表层土壤,污泥施用量低于18 t·hm⁻²时,土壤中Hg含量未超过土壤环境质量二级标准。

目前对污泥的研究多集中在短期施用对土壤和植物重金属富集的影响,对污泥长期农用地下的土壤养分和重金属累积特征研究较少。鉴于此,本研究探讨连续10年施用不同用量污泥对土壤养分及重金属(Pb、Cd、Cr、Ni、Cu和Zn)含量的影响,旨在为长期合理施用污泥提供理论指导。

1 材料与方法

1.1 供试材料

试验地位于福建省福州市闽侯县白沙镇溪头村福建省农业科学院土壤肥料研究所野外观测红壤肥力与生态环境站,供试土壤为黄泥土,供试污泥来自厦门生活污水处理厂。供试土壤和污泥理化性状及重金属含量见表1和表2。供试蔬菜品种为汉白玉萝卜(*Raphanus sativus* L.),下文表述中“萝卜叶”表示地上部,“萝卜”表示地下部。

1.2 试验方法

试验于2009—2019年进行,每年种植一季,在种

表1 供试土壤和污泥理化性质

Table 1 Basic physical and chemical properties of the soil and sludge

项目 Items	全氮 Total N/ (g·kg ⁻¹)	全磷 Total P/ (g·kg ⁻¹)	全钾 Total K/ (g·kg ⁻¹)	水解性氮 Hydrolysable N/ (mg·kg ⁻¹)	有效磷 Available P/ (mg·kg ⁻¹)	速效钾 Available K/ (mg·kg ⁻¹)	有机质 Organic matter/ (g·kg ⁻¹)	pH
土壤 Soil	1.64	0.39	15.7	83.94	12.60	44.06	20.5	5.09
污泥 Sludge	2.15	2.09	0.83	—	—	—	277	7.85

表2 供试土壤和污泥重金属含量($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)Table 2 Contents of heavy metals in the soil and sludge($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)

项目 Items	Pb	Cd	Cr	Ni	Cu	Zn
土壤 Soil	25.1	0.16	23.3	11.5	11.4	100.0
污泥 Sludge	210.0	0.72	527.8	256.3	327.3	393.0

植前一次性施用污泥和肥料。试验采用田间小区试验,共5个处理:①单施化肥(CK,尿素 $0.31\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 、钙镁磷肥 $0.87\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 、氯化钾 $0.38\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$);②低量污泥(S1, $4.5\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$);③中量污泥(S2, $9\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$);④中高量污泥(S3, $13.5\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$);⑤高量污泥(S4, $18\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$)。每个处理3个重复,小区面积为 9 m^2 ,随机排列。污泥用量以对照处理的N、 P_2O_5 、 K_2O 养分量的70%为标准,不足的养分分别用尿素、过磷酸钙、氯化钾补充,超过不补。本论文中所用数据为最后一季测定结果。

1.3 测定方法

土壤pH采用电位法测定;土壤有机质采用重铬酸钾容量法测定;土壤全氮采用凯氏法测定;土壤碱解氮采用碱解扩散法测定;土壤全磷采用硫酸-高氯酸消煮-钼锑抗比色法测定;土壤有效磷采用碳酸氢钠浸提-钼锑抗比色法测定;土壤全钾采用氢氧化钠熔融-火焰光度计法测定;土壤速效钾采用醋酸铵浸提-火焰光度计法测定;土壤全量重金属Pb、Cd、Cr、Ni和Cu采用微波消解-石墨炉原子吸收光谱法测定(PE900Z);Zn采用微波消解-火焰原子吸收光谱法测定。

1.4 数据处理

采用Microsoft Excel 2013进行数据整理分析及作图,SPSS 17.0进行数据分析。

2 结果与分析

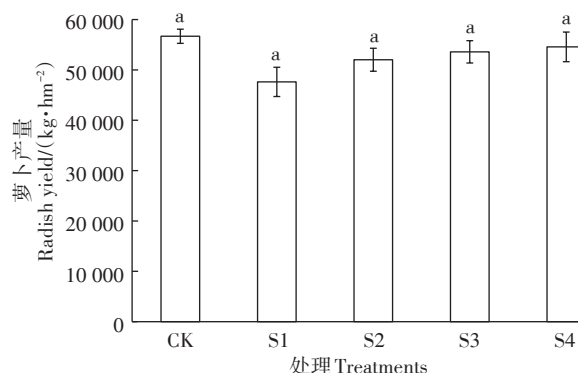
2.1 长期施用不同用量污泥对萝卜产量的影响

随着污泥施用量的增加,萝卜产量呈增加趋势(图1),虽然不同污泥施用量处理比对照降低 $3.72\%\sim 15.99\%$,但处理间差异不显著,这可能由于对照处理所用化肥的养分容易被萝卜直接吸收,而污泥中养分需要慢慢释放才能被萝卜吸收。可见长期施用污泥对萝卜产量影响不大。

2.2 长期施用不同用量污泥对萝卜叶和萝卜重金属含量的影响

2.2.1 不同用量污泥对萝卜叶中重金属含量的影响

由表3可知,连续10年施用污泥后,萝卜叶中重金属含量均随着污泥施用量的增加而增加。其中,各



不同小写字母表示处理间差异显著($P<0.05$)

The different lowercase letters indicate significant differences among treatments($P<0.05$)

图1 不同用量污泥长期施用下萝卜的产量

Figure 1 Yield of radish after long-term application of sludge with different dosages

处理的萝卜叶中Pb含量差异不显著;高量污泥处理萝卜叶中Cd含量与对照处理差异显著,比对照高53.8%,其他处理的萝卜叶中Pb含量差异不显著;对照处理萝卜叶中Cr含量与低量处理无显著差异,但显著低于其他污泥处理,中量、中高量和高量处理分别比对照高21.7%、52.1%和62.6%,且中高量与高量处理萝卜叶的Cr含量显著高于中量和低量处理29.0%~39.4%;中量、中高量和高量处理萝卜叶中Ni含量显著高于对照处理831.5%、695.9%和705.5%,低量处理与对照处理无显著差异,污泥各处理间,高量处理Ni含量显著高于低量与中量处理259.4%和75.7%,但与中高量无显著差异;不同用量污泥处理萝卜叶中Cu含量均显著高于对照处理,比对照提高67.4%~148.7%,中量、中高量和高量处理之间无显著差异,但显著高于低量处理28.1%、43.7%和48.5%;低量污泥处理萝卜叶中Zn含量与对照处理无显著差异,其他用量污泥处理显著高于对照处理74.8%~435.0%,高量污泥处理显著高于其他污泥处理56.5%~206.1%。

2.2.2 不同用量污泥对萝卜重金属含量的影响

由表4可知,连续10年施用污泥后,萝卜中重金属含量都随着污泥施用量的增加而增加。其中,低量和中量污泥处理萝卜中Pb和Cd含量与对照之间无显著差异,但显著低于中高量和高量处理75.0%~240.0%、75.0%~180.0%;中高量和高量处理萝卜中Cr含量显著高于对照处理50.9%和56.0%,但与低量和中量污泥处理无显著差异;不同污泥用量处理萝卜中Ni含量均显著高于对照420.0%~1 841.9%,且各处理

表3 不同用量污泥长期施用下萝卜叶的重金属含量($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)Table 3 Heavy metal content of radish leaves under long-term application of sludge with different dosages($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)

处理 Treatments	Pb	Cd	Cr	Ni	Cu	Zn
CK	0.008±0.003a	0.013±0.004b	0.198±0.033c	0.146±0.089d	0.298±0.008c	3.05±0.36d
S1	0.010±0.005a	0.014±0.003ab	0.231±0.014bc	0.665±0.325cd	0.499±0.068b	5.32±1.34cd
S2	0.011±0.003a	0.014±0.006ab	0.241±0.009b	1.360±0.246bc	0.639±0.105a	7.63±0.53bc
S3	0.012±0.004a	0.020±0.002a	0.311±0.015a	1.681±0.396ab	0.717±0.059a	10.41±0.61b
S4	0.013±0.004a	0.020±0.002a	0.322±0.019a	2.390±0.721a	0.741±0.063a	16.30±3.75a

注:同列不同小写字母代表不同处理之间的显著性差异($P<0.05$)。下同。

Note: Different lowercase letters in a column represent significant differences among different treatments($P<0.05$). The same below.

表4 不同用量污泥长期施用下萝卜中重金属含量($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)Table 4 Heavy metal content in radish under long-term application of different sludge dosages($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)

处理 Treatments	Pb	Cd	Cr	Ni	Cu	Zn
CK	0.024±0.004b	0.008±0.000c	0.116±0.004b	0.105±0.040e	0.235±0.07d	1.47±0.45d
S1	0.035±0.003b	0.010±0.000c	0.146±0.004ab	0.546±0.204d	0.399±0.12cd	2.12±0.42cd
S2	0.052±0.002b	0.012±0.001c	0.150±0.003ab	1.122±0.146c	0.603±0.08bc	2.93±0.57bc
S3	0.091±0.015a	0.021±0.004b	0.175±0.022a	1.652±0.061b	0.709±0.03b	3.45±0.04b
S4	0.119±0.025a	0.028±0.005a	0.181±0.037a	2.039±0.260a	1.525±0.261a	4.56±0.86a

之间均差异显著;除低量污泥处理萝卜中Cu、Zn含量与对照无显著差异外,其余污泥处理均显著高于对照处理156.6%~548.9%、99.3%~210.2%,高量污泥处理均显著高于其他处理115.1%~548.9%、32.2%~210.2%。高量污泥处理萝卜Pb、Cd和Cr的含量最高,分别为0.119、0.028 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和0.181 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,除高量处理Pb超标外,其余均未超过《食品安全国家标准食品中污染物限量》(GB 2762—2017)的限量指标(Pb≤0.1

$\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、Cd≤0.1 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、Cr≤0.5 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)。可见连续施用10年污泥后,萝卜中重金属含量有所增加,但除了高量污泥处理Pb超标外,其他处理都还在安全食用范围之内。

相关性分析(表5)表明,在长期施用污泥的条件下,污泥用量与萝卜叶中Pb含量的相关性不显著,但与其他重金属呈极显著正相关,相关系数达到0.690(Cd)、0.916(Cr)、0.914(Ni)、0.900(Cu)、0.927(Zn);

表5 污泥用量与萝卜叶和萝卜重金属含量之间的相关关系

Table 5 Correlation between sludge contents and heavy metal contents in leaf and radish

重金属 Heavy metal	部位 Position	污泥用量与重金属含量方程式 Sludge contents and heavy metal contents equation	相关系数 r
Pb	萝卜叶 Leaf	$y=0.000\ 2x+0.008\ 4$	0.452
	萝卜 Radish	$y=0.005\ 4x+0.015\ 4$	0.923**
Cd	萝卜叶 Leaf	$y=0.000\ 5x+0.011\ 9$	0.690**
	萝卜 Radish	$y=0.001\ 1x+0.005\ 5$	0.921**
Cr	萝卜叶 Leaf	$y=0.007\ 3x+0.195\ 2$	0.916**
	萝卜 Radish	$y=0.003\ 6x+0.121\ 3$	0.805**
Ni	萝卜叶 Leaf	$y=0.122\ 3x+0.147\ 4$	0.914**
	萝卜 Radish	$y=0.110\ 6x+0.097\ 7$	0.980**
Cu	萝卜叶 Leaf	$y=0.024\ 5x+0.358\ 2$	0.900**
	萝卜 Radish	$y=0.064\ 2x+0.115\ 9$	0.886**
Zn	萝卜叶 Leaf	$y=0.702\ 1x+2.224\ 8$	0.927**
	萝卜 Radish	$y=0.167\ 0x+1.403\ 0$	0.919**

注:*代表5%显著水平($P<0.05$),**代表1%极显著水平($P<0.01$)。n=15。下同。

Note:* represents the significant level of 5%($P<0.05$), and ** represents the extremely significant level of 1%($P<0.01$). n=15. The same below.

污泥用量与萝卜中重金属Pb、Cd、Cr、Ni、Cu和Zn都呈极显著正相关,相关系数分别达到0.923、0.921、0.805、0.980、0.886、0.919,说明长期施用污泥下,污泥施用量对萝卜重金属含量的影响较大。

2.3 长期施用不同用量污泥对土壤重金属含量的影响

2.3.1 不同用量污泥对土壤重金属含量的影响

由表6可知,土壤中各重金属(Pb、Cd、Cr、Ni、Cu、Zn)的含量随污泥用量的增加而增加。其中,中高量和高量污泥处理土壤中Cd含量显著高于对照和低量处理,比对照提高31.7%和48.1%,比低量处理提高26.8%和42.7%,低量和中低量污泥处理土壤中Cd含量与对照无显著差异。不同污泥用量处理土壤中Cr含量均显著高于对照处理,比对照提高115.1%~536.1%,且各处理间差异显著;中高量和高量处理Ni含量显著高于对照处理,比对照分别提高46.1%和72.7%,而低量和中量处理与对照无显著差异。对照处理土壤中Cu含量与低量污泥处理相比,无显著差异,但中量、中高量和高量处理显著高于对照84.5%~265.2%,且不同污泥用量处理之间土壤Cu含量差异显著。各处理间土壤Pb含量无显著差异。对照处理土壤中Zn含量与低量和中量处理无显著差异,与中高量和高量污泥处理差异显著,分别比对照提高52.3%和65.3%,中量处理土壤Zn含量与低量处理无显著差异,中高量和高量处理Zn含量比低量处理显著提高37.4%和49.1%。可见,中高量和高量污泥连续施用10年能显著提高土壤中Cd、Cr、Ni、Cu、Zn的含量。

连续10年施用污泥后,4个污泥处理的6种重金属含量都随用量的增加而增加,其中,Pb、Cd、Cr、Ni、Cu和Zn含量分别比基础土壤增加37.85~49.02、0.12~0.20、91.14~282.48、32.18~56.79、37.07~123.65 mg·kg⁻¹和53.43~110.08 mg·kg⁻¹。各处理土壤中Cd和Zn含量并未超过《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准》(GB 15618—2018);中高量和高量污泥处理土壤中Pb含量超标(Pb≤70 mg·kg⁻¹),中量、中高量、高量污泥处理土壤中Cr和Cu含量超标(Cr≤150

mg·kg⁻¹、Cu≤50 mg·kg⁻¹);高量污泥处理土壤中Ni含量超标(Ni≤60 mg·kg⁻¹),对照与低量污泥处理各重金属含量均未超标。

2.3.2 污泥用量与土壤重金属含量的相关性

污泥施用量与土壤各重金属含量均呈正相关(表7),并达到显著或极显著水平。污泥用量与土壤中Pb、Cd、Cr、Ni、Cu、Zn含量相关系数分别为0.639、0.861、0.975、0.839、0.960、0.808,除了与重金属Pb含量呈显著相关($P<0.05$)外,与其他重金属均达到极显著相关水平($P<0.01$),表明污泥施用量对土壤中重金属累积影响较大。

表7 污泥用量与土壤重金属含量之间的相关关系
Table 7 Correlation between sludge contents and soil heavy metal contents

土壤重金属 Soil heavy metals	污泥用量与重金属含量方程式 Sludge content and heavy metal content equations	相关系数r
Pb	$y=1.086\ 4x+56.757$	0.639*
Cd	$y=0.004\ 6x+0.16$	0.861**
Cr	$y=13.610x+42.382$	0.975**
Ni	$y=1.525\ 8x+33.939$	0.839**
Cu	$y=5.234\ 5x+22.917$	0.960**
Zn	$y=3.980\ 1x+100.15$	0.808**

2.4 长期施用不同用量污泥对土壤pH、有机质及氮磷钾的影响

2.4.1 不同用量污泥对土壤pH和有机质含量的影响

长期施用不同用量污泥均能显著提高土壤pH(表8),且随着污泥施用量的增加,土壤pH有逐渐升高的趋势,污泥处理比对照提高了0.58~0.71个单位。污泥各用量对土壤pH的影响差异不显著,表明长期污泥施用量在4.5~18 t·hm⁻²之间时对土壤pH无显著影响。与基础土壤相比,长期施用污泥的土壤pH提高了0.23~0.36个单位,而长期单施化肥的对照处理,其土壤pH下降了0.35个单位,说明长期单施化肥会降低土壤pH。

表6 不同用量污泥长期施用下土壤重金属含量(mg·kg⁻¹)

Table 6 Soil heavy metal contents under long-term application of sludge with different dosage (mg·kg⁻¹)

处理 Treatments	Cd	Cr	Ni	Cu	Pb	Zn
CK	0.168 3±0.016 4c	45.45±23.91e	37.08±5.25c	33.86±9.39d	54.93±6.55a	104.09±14.21c
S1	0.174 7±0.022 4c	97.75±7.48d	39.41±3.01c	37.08±2.09d	62.95±4.99a	115.43±12.39c
S2	0.190 9±0.007 0bc	169.15±16.32c	43.67±4.88bc	62.49±2.38c	67.20±14.29a	129.73±16.67bc
S3	0.221 6±0.021 4ab	222.90±38.61b	54.17±4.97ab	93.05±4.91b	73.47±10.93a	158.55±29.63ab
S4	0.249 3±0.024 7a	289.09±19.50a	64.02±12.63a	123.66±11.06a	74.12±10.29a	172.08±30.44a

表8 不同用量污泥长期施用下土壤pH、有机质及氮磷钾含量

Table 8 Soil pH, contents of organic matter and NPK under long-term application of sludge with different dosages

处理 Treatments	pH	有机质 Organic matter/ (g·kg ⁻¹)	全氮 Total N/ (g·kg ⁻¹)	全磷 Total P/ (g·kg ⁻¹)	全钾 Total K/ (g·kg ⁻¹)	碱解氮 Hydrolysable N/ (mg·kg ⁻¹)	有效磷 Available P/ (mg·kg ⁻¹)	速效钾 Available K/ (mg·kg ⁻¹)
CK	4.74±0.14b	20.48±1.85b	1.30±0.01b	0.60±0.01c	17.60±0.43a	82.19±16.04b	50.98±12.02c	70.03±6.73a
S1	5.32±0.17a	20.67±2.27b	1.40±0.01a	0.80±0.04bc	21.00±0.17a	99.45±6.36ab	51.19±5.92c	109.30±20.56a
S2	5.32±0.05a	21.65±0.94b	1.40±0.00a	0.80±0.01abc	21.00±0.16a	95.04±4.45ab	80.91±2.59b	98.08±27.20a
S3	5.42±0.07a	23.23±0.70ab	1.50±0.01a	0.90±0.01ab	20.60±0.19a	102.74±19.39ab	107.96±8.00a	98.56±21.80a
S4	5.45±0.04a	24.60±1.15a	1.50±0.00a	1.10±0.01a	19.10±0.21a	118.15±8.90a	121.41±26.78a	105.10±42.08a

从表8可以看出,长期施用不同用量污泥均能提高土壤有机质含量,且有机质含量随着污泥施用量的增加而增加。中高量、中量和低量污泥处理的土壤有机质含量与对照处理无显著差异,高量污泥处理土壤有机质含量显著高于对照处理,高量污泥处理土壤有机质含量达24.60 g·kg⁻¹,显著高于对照、低量和中量处理,与中高量污泥处理差异不显著,分别比对照、低量、中量及中高量处理提高20.1%、19.2%、13.6%和5.9%。

2.4.2 不同用量污泥对土壤氮磷钾含量的影响

与对照相比,长期施用不同用量的污泥均能增加土壤全量氮磷钾和速效氮磷钾含量,且总体上养分含量呈现随污泥施用量增加而增加的趋势(表8)。其中污泥处理的土壤全氮含量显著高于对照处理,比对照提高7.7%~15.4%,污泥各处理之间无显著差异。高量污泥处理的土壤全磷含量最高,中高量和高量污泥处理土壤全磷显著高于对照50.0%和83.3%,低量和中量处理与对照之间无显著差异,高量处理与中量和中高量处理之间无显著差异,但高量处理全磷含量显著高于低量处理。各处理间土壤全钾含量无显著差异,表明长期施用污泥对土壤全钾影响不大。

高量污泥处理碱解氮含量显著高于对照处理,其他污泥处理与对照并无显著差异,各污泥处理之间的碱解氮含量无显著差异。低量污泥处理有效磷含量稍高于对照,但与对照无显著差异,而其他污泥处理有效磷含量显著高于对照处理,比对照提高58.7%~138.2%,低量处理有效磷显著低于其他污泥处理,高量与中高量处理的有效磷含量无显著差异,但显著高于中量及低量污泥处理,说明施用高量污泥能显著提高土壤有效磷含量。各处理之间速效钾含量无显著差异。

3 讨论

3.1 长期施用污泥对土壤pH和养分含量的影响

我国的农田土壤酸化日趋严重^[13],土壤酸化不仅

会严重危害农业生产,还会提升土壤中重金属活性,加重重金属污染危害程度^[14]。王伯仁等^[15]的研究发现,在18年间施用化学氮磷钾肥料导致土壤pH值下降了1.1个单位,造成了土壤酸化。本研究结果显示,连续10年单施化肥处理的土壤pH比基础土壤下降了0.35个单位,施用污泥比单施化肥的土壤pH值提高了0.58~0.71个单位,且污泥施用量与土壤pH呈极显著正相关,表明长期施用污泥可提高土壤pH值,缓解土壤酸化。这是由于污泥偏碱性且施用后增加了土壤中有机的含量,从而提高了土壤的酸碱缓冲性能^[16],有利于提高土壤pH。

研究发现施用污泥可提高土壤有机质、全量养分及有效养分含量^[17-19]。Veiga等^[20]在葡萄牙中部地区的Baixo Mondego研究城市污水处理厂的堆肥污泥对玉米种植田土壤的长期影响,结果表明,与密集施用化肥相比,堆肥污泥提高了土壤有机质(由1.2%升至2.2%)、总磷(由1 134 mg·kg⁻¹升至2 747 mg·kg⁻¹)和有效磷(由98.44 mg·kg⁻¹升至821.85 mg·kg⁻¹)含量。康少杰^[21]通过3年试验研究发现,污泥处理下的土壤全氮和有机质含量逐年变化不明显,但均高于化肥和对照处理,土壤有效磷和速效钾含量明显提高。然而,本研究发现,长期施用污泥后土壤全量氮磷钾、速效氮磷钾含量都呈增加的趋势。

3.2 长期施用污泥对土壤重金属含量的影响

重金属在土壤中迁移性很小,不能被微生物降解,在土壤中累积、被植物吸收富集后,会通过食物链进入人体,具有潜在危害。研究结果显示,长期施用污泥后土壤中重金属Pb、Cd、Cr、Ni、Cu和Zn含量均高于对照,而且随着污泥施用量的增加,土壤中的重金属含量也逐渐增加,相关性分析表明,污泥施用量与土壤全量重金属Cd、Cr、Ni、Cu和Zn含量呈极显著正相关($P<0.01$),表明污泥施用量对土壤全量重金属的影响很大,这与大多数研究者认为有机肥会增加农

田重金属污染风险的观点一致。朱秀红等^[22]研究施用不同比例(0、5%、10%、15%、20%)的城市污泥堆肥对土壤重金属含量的影响,结果表明,土壤中的重金属Cu、Zn、Pb、Cr、Cd等含量均随污泥施用比例的增加逐渐升高,但均不超过污泥农用泥质B级标准。杨国航等^[23]的研究表明,长期(8年)污泥农用显著增加了土壤中Pb、Cd、Cu和Zn元素的总量,而对Ni元素的总量影响不显著。这主要与污泥来源不同且污泥中重金属含量差异较大有关。Veiga等^[20]的研究发现,长期(5年)施用城市污水处理厂的堆肥污泥的农田土壤中Cu、Zn、Cd、Cr等重金属含量明显高于施用化肥的土壤,对土壤具有长期风险。

3.3 污泥长期施用下的土壤安全和作物安全

由于不同地区的土壤重金属环境容量不同,即使施用符合标准《城镇污水处理厂污泥处置农用泥质》(CJ/T 309—2009)的污泥,各地施用年限的差异也很大。李桃等^[24]以年施入污泥量 $7.5\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 计算,对山西省不同地市污泥的施用年限进行估算,研究结果显示,晋北地区大同市约为117年,朔州市约为217年,忻州市约为133年,晋中地区太谷县约为6年,晋东南地区晋城市约为163年,长治市约为29年。不考虑土壤重金属元素的输出及其他途径的输入,马闯等^[25]按中国城市污泥重金属平均含量估算的结果表明,酸性和中性土壤上污泥土地利用安全施用年限为34年,碱性土壤上为66年。因此,在污泥长期农用时,首先要选用符合标准的污泥,其次在施用污泥提高土壤肥力的同时应兼顾施用污泥带来的土壤中重金属含量增加的风险,科学控制污泥的施用量。

本研究结果表明,连续10年施用不同用量污泥后,土壤中各重金属(Pb、Cd、Cr、Ni、Cu、Zn)的含量随污泥用量的增加而增加,Pb、Cr、Ni和Cu在中量、中高量和(或)高量处理中超过国家土壤环境质量标准,其他重金属尚未超标,这可能与污泥本身的重金属含量、形态以及本试验用量不高有关。虽然土壤含有不同量的重金属,甚至Pb、Cr、Ni和Cu超标,但萝卜可食部位中的重金属含量,除高量污泥处理Pb超标外,其他处理均未超过食品安全国家标准。说明在本试验用量范围($4.5\sim 18\text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$)内连续施用污泥10年后,除高量污泥处理中萝卜Pb超标外,其他处理的萝卜都是安全的,但土壤中已有4种重金属显示超标,随着污泥施用年限增长,种植于其中的作物食品安全还应予以充分重视。

4 结论

(1)长期施用污泥条件下,土壤重金属含量随污泥施用量的增加而增加,且中高量和高量污泥施用后土壤重金属的累积量增大,显著或极显著高于对照、低量和中量处理,其中,Pb、Cr、Ni和Cu在中量、中高量(或)高量处理中超过国家土壤环境质量标准。

(2)长期施用污泥条件下,萝卜、萝卜叶中重金属含量均随污泥施用量的增加而增加,但除高量污泥处理Pb超标外,其他所有处理萝卜中的各重金属含量均未超过食品安全国家标准。

(3)长期施用污泥能提高土壤pH、有机质、全量氮磷钾以及速效氮磷钾含量,其中施用不同用量污泥的处理土壤pH比单施化肥处理提高了0.58~0.71个单位。

参考文献:

- [1] 刘恒嘉,刘永丽,张宏忠,等.城市污泥堆肥土地利用及环境风险综述[J].江苏农业科学,2014,42(2):324-326. LIU Huan-jia, LIU Yong-li, ZHANG Hong-zhong, et al. On land application and environmental risk of sewage sludge compost in cities: A review[J]. *Jiangsu Agricultural Sciences*, 2014, 42(2):324-326.
- [2] 张练,魏海浪,张惠芳,等.城市污泥堆肥土地修复利用研究进展[J].环境卫生工程,2013,21(6):7-9. ZHANG Lian, WEI Hai-lang, ZHANG Hui-fang, et al. Research progress of land restoration and utilization by using municipal sludge compost[J]. *Environmental Sanitation Engineering*, 2013, 21(6):7-9.
- [3] Fytli D, Zabaniotou A. Utilization of sewage sludge in EU application of old and new methods: A review[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2008, 12(1):116-140.
- [4] 路文圣,李俊生,蒋宝军.发达国家污泥处理处置方法[J].中国资源综合利用,2016,34(3):27-29. LU Wen-sheng, LI Jun-sheng, JIANG Bao-jun. Sludge treatment and disposal methods in developed countries[J]. *China Resources Comprehensive Utilization*, 2016, 34(3):27-29.
- [5] 崔伟莎,曹秀芹.我国城镇污水处理厂污泥农用的发展潜力分析[J].绿色科技,2013(8):223-227. CUI Wei-sha, CAO Xiu-qin. Potential analysis of sludge agricultural application of municipal wastewater treatment plant in China[J]. *Journal of Green Science and Technology*, 2013(8):223-227.
- [6] Singh R P, Agrawal M. Variations in heavy metal accumulation, growth and yield of rice plants grown at different sewage sludge amendment rates[J]. *Ecotoxicology & Environmental Safety*, 2010, 73(4):632-641.
- [7] Latore A M, Kumar O, Singh S K, et al. Direct and residual effect of sewage sludge on yield, heavy metals content and soil fertility under rice-wheat system[J]. *Ecological Engineering*, 2014, 69:17-24.
- [8] 刘梦娇,夏少攀,王峻,等.城市污泥农用对植物-土壤系统的影响[J].应用生态学报,2017,28(12):4134-4142. LIU Meng-jiao, XIA Shao-pan, WANG Jun, et al. Effect of agricultural application of mu-

- municipal sewage sludge on plant-soil system: A review[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2017, 28(12):4134-4142.
- [9] 李金辉, 吴汉福, 翁贵英, 等. 贵州六盘水城市污泥中重金属的形态特征及其农用生态风险评价[J]. 江苏农业科学, 2019, 47(1):304-308. LI Jin-hui, WU Han-fu, WEN Gui-ying, et al. Morphological characteristics and agro-ecological risk assessment of heavy metals from municipal sludge in Liupanshui, Guizhou Province[J]. *Jiangsu Agricultural Sciences*, 2019, 47(1):304-308.
- [10] 李印霞, 刘碧波, 曹志林, 等. 酸去除剩余活性污泥重金属效果及农用安全性[J]. 安全与环境学报, 2020, 20(1):271-276. LI Yin-xia, LIU Bi-bo, CAO Zhi-lin, et al. Approach to the heavy metal contaminants removal from the residual activated sludge by acid and its agricultural application safety[J]. *Journal of Safety and Environment*, 2020, 20(1):271-276.
- [11] 许晓玲, 呼世斌, 刘晋波, 等. 施用污泥堆肥对土壤中重金属累积和大豆产量的影响[J]. 环境工程, 2018, 36(3):108-111. XU Xiao-ling, HU Shi-bin, LIU Jin-bo, et al. Effect of sewage sludge compost on soybean: Heavy metal accumulation and yield[J]. *Environmental Engineering*, 2018, 36(3):108-111.
- [12] 翟丽梅, 习斌, 刘宏斌, 等. 城市生活污水污泥农用对作物和土壤中汞的影响[J]. 中国环境科学, 2013, 33(11):2035-2039. ZHAI Li-mei, XI Bin, LIU Hong-bin, et al. Effects of domestic sewage sludge on the accumulation and transfer of mercury in crop-soil system[J]. *China Environmental Science*, 2013, 33(11):2035-2039.
- [13] Guo J H, Liu X J, Zhang Y, et al. Significant acidification in major Chinese croplands[J]. *Science*, 2010, 327(5968):1008-1010.
- [14] 徐仁扣, 李九玉, 周世伟, 等. 我国农田土壤酸化调控的科学问题与技术措施[J]. 中国科学院院刊, 2018, 33(2):160-167. XU Ren-kou, LI Jiu-yu, ZHOU Shi-wei, et al. Scientific issues and controlling strategies of soil acidification of croplands in China[J]. *Bulletin of the Chinese Academy of Sciences*, 2018, 33(2):160-167.
- [15] 王伯仁, 蔡泽江, 李冬初. 长期不同施肥对红壤旱地肥力的影响[J]. 水土保持学报, 2010, 24(3):85-88. WANG Bo-ren, CAI Ze-jiang, LI Dong-chu. Effect of different long-term fertilization on the fertility of red upland soil[J]. *Journal of Soil and Water Conservation*, 2010, 24(3):85-88.
- [16] 吴霄霄, 曹榕彬, 米长虹, 等. 重金属污染农田原位钝化修复材料研究进展[J]. 农业资源与环境学报, 2019, 36(3):253-263. WU Xiao-xiao, CAO Rong-bin, MI Chang-hong, et al. Research progress of in-situ passivated remedial materials for heavy metal contaminated soil[J]. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, 2019, 36(3):253-263.
- [17] 黄林, 乔俊辉, 郭康莉, 等. 连续施用无害化污泥对沙质潮土土壤肥力和微生物学性质的影响[J]. 中国土壤与肥料, 2017(5):80-86. HUANG Lin, QIAO Jun-hui, GUO Kang-li, et al. Effect of consecutive application of sewage sludge on soil fertility and soil microbial properties of sandy fluvo-aquic soil[J]. *Soils and Fertilizers Sciences in China*, 2017(5):80-86.
- [18] 欧阳喜辉, 崔晶, 佟庆. 长期施用污泥对农田土壤和农作物影响的研究[J]. 农业环境保护, 1994(6):271-274. OUYANG Xi-hui, CUI Jing, TONG Qing. Effects of long-term application of sludge on farmland soil and crops[J]. *Agro-Environmental Protection*, 1994(6):271-274.
- [19] 胡学峰, 卜玉山. 施用城市生活污泥对土壤肥力长期效应的影响[J]. 山西农业科学, 2009, 37(6):50-53. HU Xue-feng, BU Yu-shan. The long-term effects of sewage sludge to two types of soil fertility[J]. *Journal of Shanxi Agricultural Sciences*, 2009, 37(6):50-53.
- [20] Veiga A, Ferreira C, Pinto L, et al. Long term impact of sludge application in maize farm[J]. *Proceedings*, 2020, 5(30):74.
- [21] 康少杰. 污泥农用对作物生长和土壤重金属累积影响的研究[D]. 泰安: 山东农业大学, 2011. KANG Shao-jie. Effects of sludge farming on crop growth and soil heavy metal accumulation[D]. Tai'an: Shandong Agricultural University, 2011.
- [22] 朱秀红, 温道远, 韩晓雪, 等. 施用污泥堆肥对龙葵生长及富集重金属的影响[J]. 甘肃农业科技, 2020(4):17-23. ZHU Xiu-hong, WEN Dao-yuan, HAN Xiao-xue, et al. Effect of municipal sludge compost on growth and heavy metals of *Solanum nigrum* L.[J]. *Gansu Agricultural Science and Technology*, 2020(4):17-23.
- [23] 杨国航, 李合莲, 李菊梅, 等. 污泥农用对碱性土壤重金属元素形态分布的影响[J]. 济南大学学报(自然科学版), 2018, 32(2):124-133. YANG Guo-hang, LI He-lian, LI Ju-mei, et al. Effect of agricultural application of sludge on forms of heavy metal elements in alkaline soil[J]. *Journal of University of Jinan (Science and Technology)*, 2018, 32(2):124-133.
- [24] 李桃, 李伟, 李筱梅, 等. 山西省城市污泥农用潜力与安全施用[J]. 环境工程学报, 2015, 9(7):3455-3460. LI Tao, LI Wei, LI Xiao-mei, et al. Agricultural potential and security application of sewage sludge in Shanxi Province[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2015, 9(7):3455-3460.
- [25] 马闯, 赵继红, 张宏忠, 等. 城市污泥土地利用安全施用年限估算[J]. 环境工程, 2014, 32(6):102-104. MA Chuang, ZHAO Ji-hong, ZHANG Hong-zhong, et al. Estimate of safety land application years of municipal sewage sludge[J]. *Environmental Engineering*, 2014, 32(6):102-104.