环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第45卷 第4期
2024年4月15日

目　次

第45卷第4期
2024年4月

环 境 科 学
Environmental Science

Vol.45 No.4
Apr., 2024

长期施用有机肥对土壤微塑料赋存及迁移特征的影响

王长远[1,2,3], 马啸驰[1,2], 郭德杰[1,2], 刘新红[1,2], 马艳[1,2,3], 罗佳[1,2,3]*

(1. 江苏省农业科学院农业资源与环境研究所, 南京 210014; 2. 国家农业环境六合观测实验站, 南京 210014; 3. 江苏大学环境与安全工程学院, 镇江 212013)

摘要: 为探明设施土壤中微塑料的赋存特征与施肥模式、种植年限及土壤深度之间的响应关系, 通过现场采样、显微镜观察、傅里叶变换红外光谱(FTIR)和扫描电子显微镜(SEM)等方法, 对长期施用有机肥土壤中微塑料丰度、形状、粒径、颜色、种类和表面形貌特征及有机肥中微塑料的丰度、粒径和种类进行分析. 结果表明, 设施土壤中不同种植年限下(2016 ~ 2021年)表层土壤中微塑料的平均丰度随着种植年限的升高而升高, 化肥(CF)、有机肥(OF)和生物炭+有机肥(BOF)处理中微塑料丰度不同, 其中每年OF处理微塑料的丰度最高, 2021年长期施用OF的表层土壤微塑料丰度最高, 为543.33 $n \cdot kg^{-1}$. 3种施肥处理土壤中微塑料平均年增长速率分别为11.16%、12.61%和9.17%. 微塑料丰度在不同深度土层中表现为随土层深度的增加而显著降低, 且BOF处理中微塑料向深层土壤迁移效率最高. 微塑料形状主要为纤维状、碎片状、颗粒状和薄膜状, 在0 ~ 40 cm深度土壤中, 纤维状微塑料在3种施肥类型土壤中均占主导地位. 在40 ~ 60 cm土壤中CF处理无纤维状和薄膜状微塑料, 颗粒状微塑料占比最高(57.14%); OF处理无薄膜状微塑料, 颗粒状微塑料和纤维状微塑料占比最高(36.00%); BOF处理中占比最高的为颗粒状微塑料(41.18%), 占比最少的为薄膜状微塑料(5.88%). 3种施肥处理土壤中小尺寸(<0.5 mm)微塑料占比最高, 在CF、OF和BOF这3种处理土壤中PE为主要微塑料种类, 且在微塑料表面均呈现多孔、撕裂、裂痕和磨损等特点. 有机肥中微塑料平均丰度高达577.78 $n \cdot kg^{-1}$. 长期施用有机肥的设施土壤中微塑料丰度与有机肥密切相关, 且微塑料迁移也与施用肥料种类密切相关. 研究对于明晰不同长期施肥模式下设施土壤中微塑料的分布特征和迁移具有重要意义.

关键词: 微塑料; 有机肥; 土壤深度; 设施农田; 迁移

中图分类号: X53 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2024)04-2304-09 **DOI:** 10.13227/j.hjkx.202304174

Effects of Long-term Application of Organic Fertilizer on the Occurrence and Migration Characteristics of Soil Microplastics

WANG Chang-yuan[1,2,3], MA Xiao-chi[1,2], GUO De-jie[1,2], LIU Xin-hong[1,2], MA Yan[1,2,3], LUO Jia[1,2,3]*

(1. Institute of Agricultural Resource and Environmental Sciences, Jiangsu Academy of Agricultural Sciences, Nanjing 210014, China; 2. National Agricultural Experiment Station for Agricultural Environment, Luhe, Nanjing 210014, China; 3. School of the Environment and Safety Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China)

Abstract: To explore the response relationship between the occurrence characteristics of microplastics in the facility soil (fertilization mode, planting years, and soil depth), the abundance, shape, particle size, color, type, and surface morphology characteristics of microplastics in the soil with long-term application of organic fertilizer, as well as the abundance, particle size, and type of microplastics in organic fertilizer, were analyzed through on-site sampling, microscopic observation, Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR), and scanning electron microscopy (SEM). The results showed that the average abundance of microplastics in the surface soil under different planting years (2016-2021) increased with the increase in planting years, and the abundance of microplastics in the chemical fertilizer (CF), organic fertilizer (OF), and biochar organic fertilizer (BOF) treatments differed, among which the abundance of microplastics in the OF treatment was the highest per year, and the highest abundance of microplastics in the topsoil with long-term application of OF in 2021 was 543.33 $n \cdot kg^{-1}$. The average annual growth rates of microplastics in the soil treated by the three fertilization treatments were 11.16%, 12.61%, and 9.17%, respectively. The abundance of microplastics decreased significantly with the increase in soil depth in different soil layers, and the migration efficiency of microplastics to deep soils was the highest in the BOF treatment. The shapes of the microplastics were mainly fibrous, fragmentary, particle, and film, and in the soil at a depth of 0-40 cm, fibrous microplastics were dominant in the soil of all three fertilization types. In 40-60 cm soil, CF-treated fibrous and thin-film microplastics were not detected, and particle microplastics accounted for the highest proportion (57.14%). The OF treatment did not have the presence of film microplastics, and particle microplastics and fibrous microplastics accounted for the highest proportion (36.00%). The highest proportion in the BOF treatment was particle microplastics (41.18%), and the lowest proportion was that of film microplastics (5.88%). The proportion of small-size (<0.5 mm) microplastics in the three fertilization-treated soils was the highest, and PE was the main microplastic species in the three treated soils of CF, OF, and BOF; additionally, the characteristics of porous, torn, cracked, and worn on the surface of microplastics were all presented. The average abundance of microplastics in organic fertilizer was as high as 577.78 $n \cdot kg^{-1}$. The abundance of microplastics in the soil of facilities for the long-term application of organic fertilizers was closely related to organic fertilizers, and the migration of microplastics was also closely related to the types of fertilizers applied. It is of great significance to clarify the distribution characteristics and migration of microplastics in facility soils under different long-term fertilization modes.

Key words: microplastics; organic fertilizer; soil depth; facility farmlands; migrate

随着塑料产业的不断发展和塑料产品的大量使用, 环境中使用的塑料产品经过光照、氧化、物理

收稿日期: 2023-04-20; **修订日期:** 2023-07-10
基金项目: 江苏省农业科技自主创新资金项目[CX(21)3006]
作者简介: 王长远(1998 ~),男,硕士研究生,主要研究方向为土壤微塑料污染,E-mail:1171236133@qq.com
* 通信作者,E-mail:luojia@jaas.ac.cn

磨损和生物降解等作用破碎和风化成粒径小于5 mm的颗粒，即形成了微塑料[1]. 微塑料具有比表面积大[2]、体积小[3]、吸附污染物能力强[4]、环境危害性大且不易降解[5]等特点. 这些特点使得微塑料更易在水体、沉积物和土壤等环境介质中赋存，并通过生物摄食在食物链中迁移，进而危害人类健康[6].

目前微塑料环境污染研究主要集中在水体环境中，受土壤环境的复杂性和微塑料分析方法的局限性的影响，土壤中微塑料富集、迁移及分布研究相对较少[7]. 微塑料主要通过农用地膜覆盖[8]、污水灌溉[9]、有机肥施用[10]、污泥的土地利用[11]及大气沉降[12]等途径进入农田土壤，逐渐改变土壤结构和质地，对土壤理化和生物性状产生影响，使土壤生态功能被破坏，并且可能在植物中富集，对食品安全产生影响[13]. 微塑料还会通过灌溉、径流、翻耕及生物活动等作用向深层土壤和地下水中迁移[14]. 有研究表明，覆膜土壤中微塑料丰度显著高于未覆膜土壤[15,16]，Zhang等[17]同样报道我国农用地膜会在土壤中残留，且会使作物产量显著下降[18]. 农业灌溉水源以及污泥中同样也检测出大量的微塑料存在[19,20]，这就导致了农田土壤中微塑料的积累. Yang等[21]报道施肥显著增加农田土壤中的微塑料富集量. 但我国肥料施用对农田土壤微塑料影响的研究鲜见报道，因此探明不同肥料施用的影响对避免土壤微塑料污染具有重要意义

设施农业因其种植产量大、经济效益高，在我国乡村振兴建设中有着重要地位[22]. 但设施农业生产中对地膜的需求量大、化学品投入多且肥料施用量大，都会导致微塑料富集的程度增加[23]. 微塑料的富集也会对作物营养元素吸收产生影响，进而影响植物生长[24]. 设施栽培过程中塑料制品的大量应用，以及有机肥的长期施加，极易在土壤中富集，增加微塑料环境污染的风险. 由于有机肥在设施生产中占据重要地位，且有机肥的长期施加对微塑料赋存及迁移影响尚不明确，因此分析设施土壤中长期施用有机肥对土壤微塑料赋存及迁移特征的影响，对了解及控制设施农业微塑料污染具有深远意义.

综上，本文以3种长期施肥（化肥，chemical fertilizer，CF；有机肥，organic fertilizer，OF；生物炭+有机肥，biochar organic fertilizer，BOF）的设施土壤为研究对象，探索微塑料在不同长期施肥土壤中的分布及迁移特征，并探究有机肥中微塑料赋存情况，以期为微塑料的减排处理和农业生产管理管控提供科学依据，并为设施栽培土壤防止微塑料污染提供基础数据.

1 材料与方法

1.1 研究区域概况

本试验地点位于江苏省南京市六合区竹镇镇江苏省农业科学院六合动物科学基地辣椒试验大棚. 该地区气候为温带季风气候，平均年降水量为914.6 mm，平均气温为15.6℃. 试验土壤类型为马肝土（黄棕壤）. 试验地块中使用的农业覆盖膜是由PE制成的黑色膜. 辣椒在每年的3月和8月种植，所有处理均覆盖地膜，持续覆盖完整的生长期，收获后进行人工清理，并在下次种植重新铺设新地膜，同时在生长季进行田间常规化管理.

本试验时间自2016 ~ 2021年，共设3个处理. 处理1：化肥处理（CF），每hm^2施用N、P_2O_5和K_2O的量分别为300、200和350 kg；处理2：有机肥处理（OF）每hm^2施用15 t有机肥（猪粪秸秆有机肥）并施用化肥；处理3：生物炭+有机肥处理（BOF），每hm^2施用9 t生物炭（水稻秸秆）和6 t有机肥并施用化肥. 处理2和处理3化肥施用量一致，除肥料施用外，各处理田间管理一致，每个处理设3个重复小区，每小区排列随机，各个小区长和宽分别为6.3 m和3.3 m，有效面积约为21 m^2.

1.2 样品采集与预处理

本研究采集2016 ~ 2021年秋季种植并收获作物后的0 ~ 20 cm深度土壤样品以及2016年、2019年和2021年的20 ~ 40 cm和40 ~ 60 cm的土壤样品. 采集过程中挑出植物根和砾石. 从每个随机处理小区［长期施用化肥（CF）改良土壤、长期施用有机肥（OF）改良土壤和长期施用生物炭+有机肥（BOF）改良土壤］中分别采集5个不同位置的样品并混匀，送至实验室. 将样品在45 ℃的烘箱中烘干，破碎，过5 mm筛，并用铝箔包好，储存在干燥处，用于微塑料的测定. 在整个过程中避免使用塑料制品，以避免样品污染.

选取2016年、2019年和2021年施用的有机肥，烘干，过5 mm筛，用铝箔包好，保存在干燥处，用于后续微塑料的测定.

1.3 微塑料提取

1.3.1 土壤微塑料的提取

采用密度浮选分离法进行土壤中微塑料的分离[25]. 首先将100 g土壤样品（干重）转移到一个干净的锥形瓶中，加入500 mL饱和氯化钠溶液，磁力搅拌30 min，瓶口用铝箔密封，以防止样品污染，并静置过夜，等待固体和液体分离完全，确保微塑料完全悬浮在上清液中. 随后，将上清液转移至另一个干净的锥形瓶中，并在剩余的沉积物中加入饱和

碘化钠溶液，进行二次浮选.重复上述相同的步骤来分离固体和液体.为避免有机质的干扰，在提取的上清液中加入30%的过氧化氢溶液，然后用铝箔将瓶口密封，在45℃的水浴中加热48 h.待有机质消解后，使用Φ50 mm×0.45 μm醋酸纤维素滤膜对上清液进行真空抽滤，将抽滤好的滤膜置于干净的玻璃培养皿中保存，以备后续对微塑料的观察.

1.3.2 有机肥微塑料的提取

称取15 g(干重)有机肥置于100 mL烧杯中，称量后加入氯化锌溶液(1.7 ~ 1.8 kg·L^{-1})60 mL，充分搅拌(2 min)并静置过夜(12 h).静置完成后，将悬浮液转移到另一个烧杯中并加入60 mL 30%的H_2O_2以去除有机物，充分搅拌后静置24 h，使过氧化氢与有机物充分反应.将过氧化氢处理后的溶液进行真空抽滤，将得到的滤膜浸入乙醇溶液中进行超声处理，使得滤膜上的物质分散在乙醇溶液中.将乙醇溶液中的滤膜取出，并用乙醇多次清洗滤膜.将乙醇溶液浓缩，继而将其滴加在高反玻璃上，待乙醇完全挥发后进行激光红外成像光谱仪(laser direct infrared，LDIR)的测试.LDIR的测试：选择颗粒分析模式，选择微塑料谱库建立方法，设置自动测试方法(匹配度>0.65)，进行测试.有机肥中微塑料测定由上海微谱检测科技集团股份有限公司完成.

1.4 微塑料观察与鉴定

使用金相显微镜(CX40M，Ningbo Sunny，China)在放大50 ~ 100倍下通过软件程序IMSA-2000对干燥滤膜上的微塑料进行观察、拍照和计数.土壤样品中微塑料的丰度用n·kg^{-1}表示，即微塑料的数量与土壤干重之比.

傅里叶变换红外(Fourier transform infrared spectroscopy，FTIR)光谱仪(Nicolet iS50，Thermo，USA)用于验证大于1 mm的可疑微塑料.光谱在反射模式下采集，采集范围为4 000 ~ 400 cm^{-1}，扫描32次.每个样品在不同的点采集两次，以获得更高的光谱和吸收峰匹配结果.与已知的聚合物光谱相比，确定微塑料的聚合物类型，并确定微塑料的类型[26].

利用扫描电子显微镜(scanning electron microscope，SEM)对土壤微塑料样品表面进行观察，以了解土壤中微塑料的表面形貌特征.用FTIR分析对微塑料进行鉴定后，样品涂上铂薄膜，用10 kV可变真空钨丝扫描电子显微镜(EVO-LS10，蔡司，德国)观察.由于微塑料表面的侵蚀程度不同，在不同的表面位置和粗糙度下至少进行3次可视化分析.

1.5 数据计算与分析

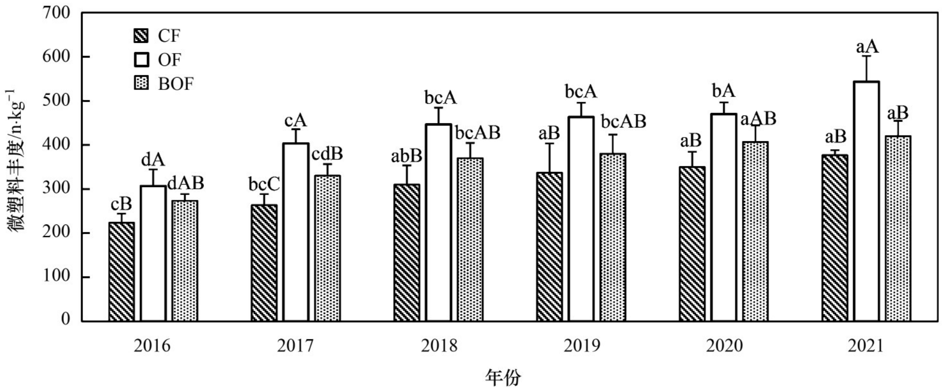
使用Origin 2022b和WPS对图表进行绘制，使用SPSS v. 27(IBM公司，Armonk，NY，USA)进行双因素方差分析检验，来确定$P<0.05$时种植年限和施肥类型、土壤深度和施肥类型是否具有统计学意义，使用单因素方差分析用于评估不同施肥类型之间的显著性差异.

2 结果与分析

2.1 不同种植年限及施肥模式对土壤中微塑料的影响

通过检测，所有土壤样品中均检测出微塑料存在，表层土壤微塑料丰度见图1.随着种植年限的增加微塑料的丰度呈上升趋势，其中所有土壤样品在2016 ~ 2021年的微塑料平均丰度分别为：267.78、332.22、375.56、393.33、408.89和446.67 n·kg^{-1}，其中2021年长期施用OF的土壤微塑料丰度最大，丰度为543.33 n·kg^{-1}.

不同施肥处理不同土层中微塑料丰度见图2，不同土层微塑料丰度的方差分析结果显示，3种施肥处理在不同土层的微塑料丰度存在显著差异($P<0.001$).3种处理中0 ~ 20、20 ~ 40和40 ~ 60 cm土层中微塑料丰度均呈现递减的趋势，且CF处理中0 ~ 20 cm土层微塑料向20 ~ 40 cm土层的



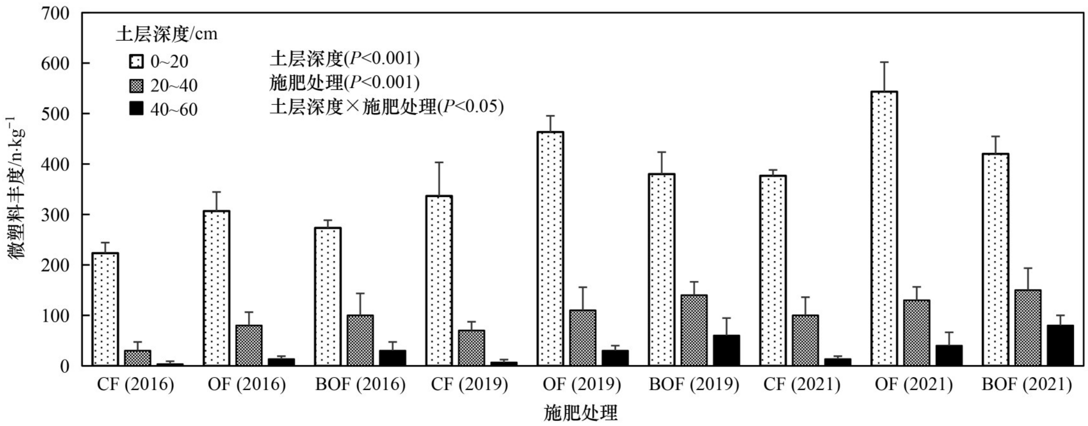
不同大写字母表示同年份不同施肥间土壤微塑料显著性差异，不同小写字母表示同施肥不同年份间土壤微塑料显著性差异

图1 不同种植年限表层土壤中微塑料丰度

Fig. 1 Abundance of microplastics in surface soil with different planting years

迁移效率为17.70%，向40 ~ 60 cm土层的迁移效率为2.45%；OF处理中0 ~ 20 cm土层微塑料向20 ~ 40 cm土层的迁移效率为19.75%，向40 ~ 60 cm土层的迁移效率为6.02%；BOF处理中0 ~ 20 cm土层微塑料向20 ~ 40 cm土层的迁移效率为26.71%，向40 ~ 60 cm土层的迁移效率为13.71%，BOF处理迁移效率最高.

3种施肥处理微塑料丰度除不同土层差异，在微塑料增长程度上也存在差异.在0 ~ 20 cm土层下微塑料的年平均增长速率存在差异，但差异不显著.CF、OF和BOF处理中微塑料的平均年增长速率分别为11.16%、12.61%和9.17%.



括号内的数字为土壤采集年份

图2　不同深度土层微塑料丰度

Fig. 2　Abundance of microplastics in soil layers at different depths

2.2　土壤中微塑料的形状及粒径分布特征

图3结果表明，在土壤样品中发现了4种主要形状的微塑料(纤维、碎片、颗粒和薄膜)，微塑料的形状占比如图4(a)所示.在0 ~ 20 cm范围内，CF处理中4种类型微塑料占比分别为38.33%、21.60%、16.30%和23.77%，OF处理中4种类型微塑料占比分别为40.86%、22.84%、21.57%和14.72%，BOF处理中4种类型微塑料占比分别为40.37%、15.84%、19.57%和24.22%. 20 ~ 40 cm范围内，CF处理中纤维状微塑料占比为60.00%，其次是颗粒状微塑料(25.00%)，碎片状(10.00%)和薄膜状(5.00%)占比较少，OF处理中纤维状微塑料占比为59.38%，其次是碎片状微塑料(21.88%)，颗粒状(15.63%)和薄膜状(3.13%)占比较少，BOF处理中纤维状微塑料占比为66.67%，其次是颗粒状微塑料(12.82%)，碎片状(10.26%)和薄膜状(10.26%)占比较少.在40 ~ 60 cm深度土层中，CF处理中仅存在颗粒状微塑料(57.14%)和碎片状微塑料(42.86%)，OF处理中纤维状微塑料和颗粒状微塑料占比均为36.00%，碎片状微塑料占比为28.00%，BOF处理中颗粒状微塑料占比为41.18%，其次是碎片状微塑料(35.29%)，纤维状微塑料(17.65%)和薄膜状微塑料(5.88%)占比较少.

通过显微镜观察微塑料粒径并计数，将粒径分为<0.5、0.5 ~ 1、1 ~ 3和3 ~ 5 mm共4个范围，如图4(b)所示，土壤中微塑料丰度均随粒径增大而减小.表层土壤中，CF、OF和BOF这3个处理中微塑料的粒径主要分布在< 0.5 mm范围，其中粒径<0.5 mm的微塑料占比分别为55.52%、53.55%和61.18%，0.5 ~ 1 mm范围的微塑料占比分别为27.05%、27.41%和26.40%，1 ~ 3 mm范围的微塑料占比分别为9.96%、10.91%和6.52%，3 ~ 5 mm范围的微塑料占比分别为7.47%、8.12%和5.90%.随着土壤深度的增加，CF和OF处理大尺寸微塑料占比逐渐减少，而BOF处理中<0.5 mm微塑料占比为33.33%，0.5 ~ 1 mm微塑料占比为25.64%，1 ~ 3 mm微塑料占比为23.08%，3 ~ 5 mm微塑料占比为17.95%，大尺寸微塑料占比增多.在40 ~ 60 cm土壤深度时CF和OF处理中微塑料粒径均<1 mm，BOF处理中<1 mm微塑料占比为94.12%，1 ~ 3 mm微塑料占比为5.88%.

2.3　微塑料的聚合物类型及表面形貌特征

微塑料聚合物类型是确定其来源的主要方法.通过傅里叶红外光谱，对微塑料聚合物的红外吸收特征进行分析，发现研究区域主要有5种微塑料类型(图5)，分别为：聚乙烯(polyethylene，PE)、聚氯乙烯(polyvinyl chloride，PVC)、聚丙烯(polypropylene，PP)、聚对苯二甲酸乙二醇酯(polyethylene terephthalate，PET)和聚苯乙烯(polystyrene，PS).在CF、OF和BOF这3个处理中PE(52.14%、49.24%和55.96%)均占主要地位，其次是PVC(16.04%、14.50%、11.93%)、PP(12.83%、

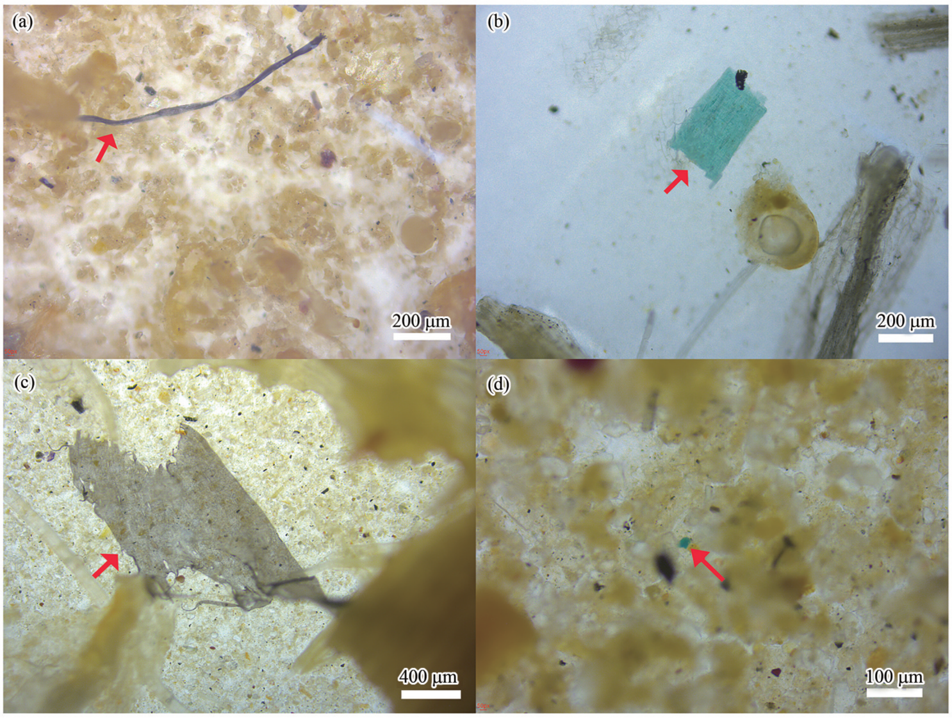


图 3 不同形状微塑料显微照片

Fig. 3 Micrographs of microplastics of different shapes

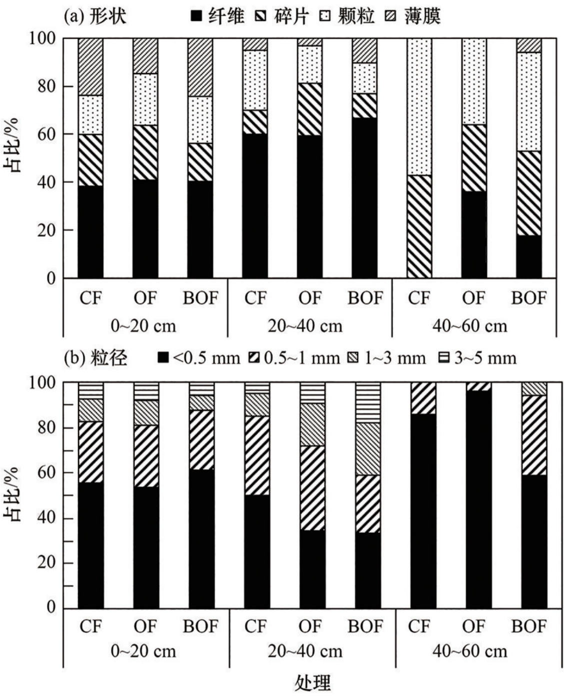


图 4 不同深度及不同施肥土壤微塑料占比

Fig. 4 Proportions of microplastics in the soil with different depths and different fertilization treatments

13.74%、 11.01%) 和 PET (13.37%、 10.31%、 11.93%), 占比最少的为 PS(5.35%、12.21% 和 9.17%).

通过扫描电子显微镜(SEM)图像显示(图 6),因农事操作及时间因素,微塑料经历了不同程度的侵蚀和风化,其表面特征表现为多孔、撕裂、裂缝和磨损等特点.

2.4 有机肥中微塑料种类及丰度

进一步探讨施用有机肥对土壤中微塑料的贡献,所有检测的有机肥样品中均发现微塑料(表 1).在有机肥中检测出 4 种类型微塑料:PE、PET、PP 和 PVC,与土壤中微塑料类型相同.有机肥中微塑料平均丰度为 577.78 $n\cdot kg^{-1}$. 2016 年施用的有机肥中微塑料平均丰度为 333.33 $n\cdot kg^{-1}$, 2019 年施用的有机肥中微塑料的平均丰度为 733.33 $n\cdot kg^{-1}$, 2021 年施用的有机肥中微塑料的平均丰度为 666.67 $n\cdot kg^{-1}$. 其中 2016 年和 2019 年有机肥中 PET 占比最高,分别为 60.00% 和 72.73%, 在 2016 年有机肥中,其次是 PP(20.00%) 和 PE(20.00%); 在 2019 年有机肥中,位居第二的是 PVC(18.18%) 和 PP(9.09%). 2021 年有机肥中 PVC 占比最高(50.00%), 位居第二的是 PP (20.00%)、PET(20.00%) 和 PE(10.00%). 有机肥中微塑料存在两种粒径, 2016 年微塑料粒径< 0.1 mm 的占比为 80.00%, 0.1 ~ 0.5 mm 微塑料占比为 20.00%; 在 2019 年和 2021 年施用的有机肥中仅存在< 0.1 mm 的微塑料.

3 讨论

3.1 长期施用有机肥对土壤微塑料丰度影响

虽然微塑料在农田土壤中有一定的积累和降解趋势,但由于其持久性强,导致它们在环境中持续积累[24,27],使得土壤中微塑料随着种植年限的增加其丰度不断上升.且通过对比其他农业土壤微塑料

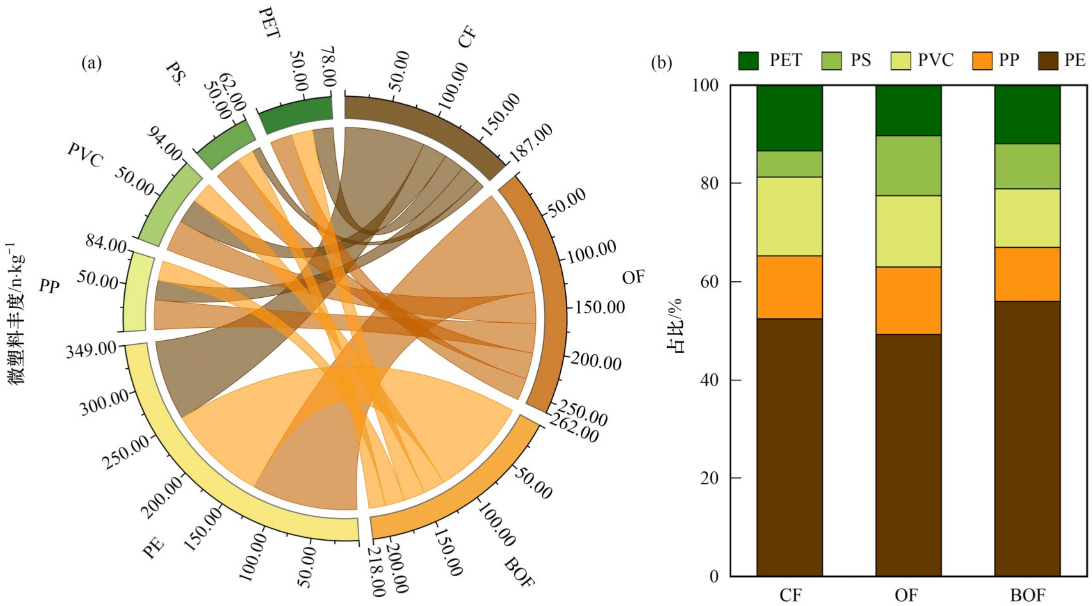


图 5　表层土壤微塑料聚合物类型

Fig. 5　Types of microplastic polymers in surface soil

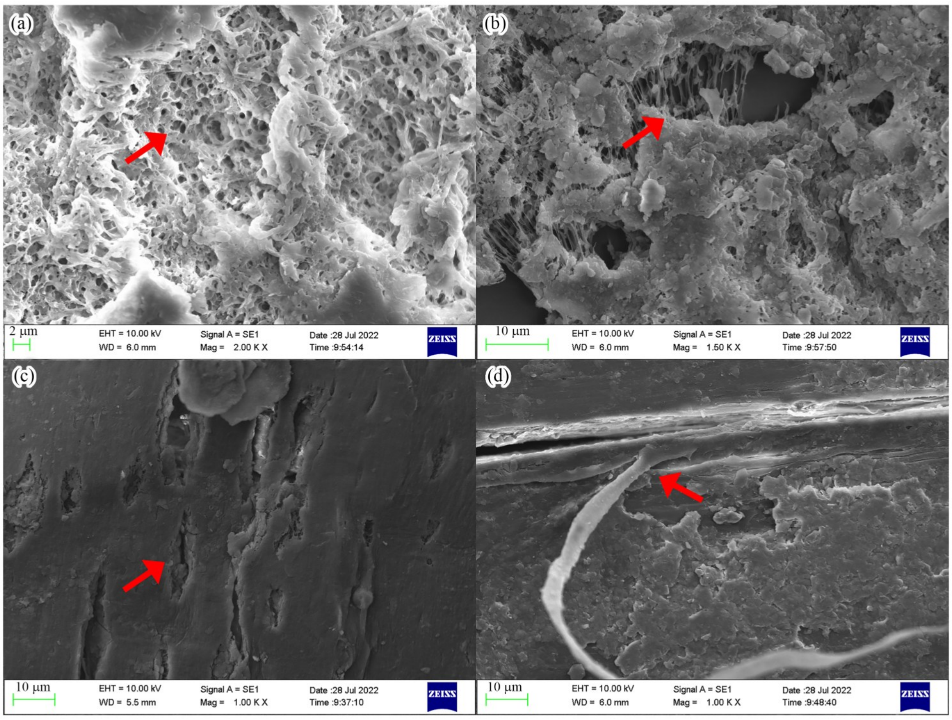


图 6　微塑料表面形貌特征

Fig. 6　Surface morphological characteristics of microplastics

表 1　不同年份有机肥中微塑料种类和粒径丰度/n·kg^{-1}

Table 1　Species and particle size abundance of microplastics in organic fertilizers in different years/n·kg^{-1}

有机肥年份	微塑料种类					微塑料粒径/mm	
	PS	PE	PET	PP	PVC	<0.1	0.1 ~ 0.5
2016	0	66.67	200	66.67	0	266.67	66.67
2019	0	0	533.33	66.67	133.33	733.33	0
2021	0	66.67	133.33	133.33	333.33	666.67	0

丰度发现，本研究结果远低于陕西省农业土壤中微塑料的丰度(1 430 ~ 3 410 $n \cdot kg^{-1}$)[28]和中国西南部土壤微塑料丰度(7 100 ~ 42 960 $n \cdot kg^{-1}$)[29]；高于青藏高原东北设施农业土壤中微塑料丰度(20 ~ 110 $n \cdot kg^{-1}$)[30]；本研究农业土壤微塑料丰度与杭州湾沿海平原农业土壤中微塑料丰度(503.3 $n \cdot kg^{-1}$)[31]相近.

长期施用3种肥料土壤中微塑料向下迁移效率不同，这可能是因为微塑料主要在土壤表层产生，仅有少部分可以通过土壤生物、土壤水分迁移和翻耕等过程迁移至深层土壤[32]，微塑料的大量残留可能会影响植物种子和根系的生长发育[33].并且在3种处理中，施加生物炭的土壤微塑料向下迁移效率最高，可能由于生物炭的施加使土壤容重降低，含水率增加[34]，使微塑料更易向下迁移.

先前研究表明，微塑料广泛存在于农业土壤中[35].以上研究的异质性较高的可能原因是取样方法、施肥类型和施肥方法、农业土壤用途和栽培过程中的人类活动等均存在差异[36].在本试验于2016年、2019年和2021年施用的有机肥中检测出微塑料平均丰度分别为333.33、733.33和666.67 $n \cdot kg^{-1}$，且在有机废弃物的消化过程中，有机肥中微塑料的丰度为14 ~ 895 $n \cdot kg^{-1}$[10]，在猪粪中也检测出微塑料[37].由此发现，微塑料不仅会在堆肥过程中进入有机肥，养殖生产过程中也会存在一定的微塑料迁移至猪粪中.所以随着肥料的长期施用，种植年限的升高，覆膜时间的增加，导致大量地膜风化残留、降解后变为微塑料，逐渐积累于农田土壤中，且因长期得不到治理，导致种植的时间越久，微塑料的积累程度越高[38].

3.2 长期施用有机肥对土壤微塑料形状和粒径的影响

目前，相关研究中不同土层微塑料丰度的垂直分布并不一致[39]，研究结果的不一致受多种因素影响，如生物干扰、机械干扰、径流、渗透、作物轮作和施肥等.在0 ~ 20 cm耕作层的CF和BOF处理中纤维状微塑料和薄膜状微塑料占比较多，可能主要来源于农用地膜的破碎[40]，且CF和BOF处理土壤的理化性质可能易使农用地膜的破碎.而OF处理中薄膜状微塑料占比较少，可能因有机肥中带入部分微塑料造成.且由于地膜的不易降解性，使得农田土壤中纤维状微塑料和薄膜状微塑料占比较大.在20 ~ 40 cm土层中3种处理中均为纤维状微塑料占比最高，这可能由于种植时土壤翻动、耕作等原因使得薄膜状微塑料碎裂为纤维状微塑料，向下层土壤迁移.在40 ~ 60 cm土层中CF处理仅存在碎片状微塑料和颗粒状微塑料，OF处理中无薄膜状微塑料，只有BOF处理中存在少量的薄膜状微塑料，可能因为薄膜状微塑料不易向下层土壤迁移，但是BOF处理中生物炭对土壤孔隙度的增大作用[41]使得薄膜状微塑料向下迁移.同时，生物炭也会影响土壤的物理、化学和生物性质，进而影响土壤水分和养分保持、微生物活性和作物生长，从而也会影响土壤中微塑料的丰度[42,43].

以往的研究证实，云南高原耕地和瑞士泛滥平原等土壤中也以小尺寸微塑料为主[44,45].微塑料主要通过机械、化学和生物手段形成小颗粒，微塑料的小颗粒容易被生物吸收[46,47].因此，小体积的微塑料对生态系统和人类健康的危害更大.并且通过分析40 ~ 60 cm土壤深度微塑料的形状和粒径占比，发现CF和OF处理中不存在薄膜状微塑料和大尺寸微塑料，BOF处理由于生物炭会增大土壤孔隙度，土壤更松散，使得更丰富的微塑料向下迁移，长期施用会对环境带来更大的风险.

本研究中有机肥微塑料粒径也存在差异，且每年施用的有机肥中微塑料以小尺寸为主.Yang等[48]调查了猪粪中微塑料，发现猪粪中微塑料的年平均丰度是(1 250 ± 640) $n \cdot kg^{-1}$，在施用猪粪土壤中微塑料明显高于不施用猪粪的土壤[7].刘淑丽等[49]在鸟类粪便中也检测到微塑料[(4.93±4.25) $n \cdot g^{-1}$].另一项研究发现，鸡粪中存在高达(129.8 ± 82.3) $n \cdot g^{-1}$的微塑料颗粒[38].粪便中微塑料的存在表明，它们已经进入了动物和人类，可能是来自受到污染的水、空气和食物中[50,51].因此，不同施肥处理中微塑料粒径的差异可能是肥料来源不同造成的，有机肥成分相对复杂造成有机肥中小尺寸微塑料的丰度增加，使得土壤中微塑料的丰度增加，且这些小尺寸微塑料还会使土壤风险升高.

3.3 长期施用有机肥对土壤微塑料聚合物类型及表面形态的影响

对研究区域中土壤微塑料污染现状调查，发现研究区的主要塑料制品有农用地膜(PP和PVC)、塑料捆扎绳和编织袋(PP)、塑料袋(PE)、塑料包装瓶(PET)和泡沫包装(PS)等，与检测出微塑料类型相同.相关研究表明PE(20.90%)和PA(0.30%)是中国5省农田中含量最高的微塑料[52]，在特定的区域中微塑料类型与微塑料的来源密切相关[53].不同施肥处理影响微塑料类型，本研究结果表明有机肥处理土壤中微塑料各聚合物类型更为丰富，且在本研究中的有机肥中也检测出多种微塑料类型，除PE和PVC类型微塑料外，其他类型微塑料占比较高，这可能与有机肥的来源复杂有关.Zhang等[54]发现施用有机肥的土壤比施用其他肥料的土壤中微塑料更多样且

更丰富，这表明有机肥向土壤中输入了额外的微塑料，这与本研究的结果一致．因此，肥料、农药和农膜等投入品及包装物不能有效处理或作为废物丢弃可能会增加土壤中微塑料的丰度[31]．Corcoran 等[55]认为微塑料表面的纹理特征与线性裂纹平行的边缘具有易被氧化的特点，故微塑料被氧化后的表面特征使得微塑料比表面积增大，增加了对污染物的吸附，使得微塑料对环境的风险增大．

4　结论

(1)通过对长期定位试验小区土壤检测发现，2021 年长期施用 OF 的土壤微塑料的丰度最高（543.33 $n\cdot kg^{-1}$），且设施土壤中微塑料丰度随种植年限的上升而升高，CF、OF 和 BOF 处理中微塑料的年平均增长速率分别为 11.16%、12.61% 和 9.17%．

(2)不同施肥处理对微塑料丰度存在影响，其中 OF 微塑料丰度最高，且有机肥会向土壤中带入大量微塑料．

(3)微塑料在不同深度土层中表现为随土层深度的增加，微塑料丰度逐渐减少，且 BOF 处理中微塑料向深层土壤迁移效率最高．

(4)长期施肥设施土壤中发现纤维、碎片、颗粒和薄膜微塑料这 4 种形态微塑料．纤维状微塑料在 0 ~ 40 cm 土壤中占比最高，在 40 ~ 60 cm 土壤中 CF 处理颗粒状微塑料占比最高(57.14%)，OF 处理颗粒状微塑料和纤维状微塑料占比最高(36.00%)，BOF 处理中颗粒状微塑料占比最高(41.18%)．

(5)在各土层的 3 种施肥处理土壤中微塑料均以小尺寸(<0.5 mm)为主，且在 CF、OF 和 BOF 3 种施肥类型土壤中 PE 微塑料占主导地位，占比分别为 52.14%、49.24% 和 55.96%

(6)长期施肥的设施土壤中检测出的微塑料表面均呈现多孔、撕裂、裂痕和磨损等特点．

参考文献：

[1] Van Cauwenberghe L, Devriese L, Galgani F, *et al*. Microplastics in sediments: a review of techniques, occurrence and effects[J]. Marine Environmental Research, 2015, **111**: 5-17.

[2] 简敏菲，周隆胤，余厚平，等．鄱阳湖-饶河入湖段湿地底泥中微塑料的分离及其表面形貌特征[J]．环境科学学报，2018，**38**(2)：579-586.
Jian M F, Zhou L Y, Yu H P, *et al*. Separation and microscopic study of microplastics from the sediments of the wetland in the estuary of Raohe River of Poyang Lake[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, **38**(2): 579-586.

[3] Besseling E, Quik J T K, Sun M Z, *et al*. Fate of nano-and microplastic in freshwater systems: a modeling study[J]. Environmental Pollution, 2017, **220**: 540-548.

[4] Wu W M, Yang J, Criddle C S. Microplastics pollution and reduction strategies[J]. Frontiers of Environmental Science & Engineering, 2017, **11**(1), doi: 10.1007/s11783-017-0897-7.

[5] Cózar A, Echevarría F, González-Gordillo J I, *et al*. Plastic debris in the open ocean[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2014, **111**(28): 10239-10244.

[6] Prata J C. Airborne microplastics: consequences to human health?[J]. Environmental Pollution, 2018, **234**: 115-126.

[7] Ng E L, Lwanga E H, Eldridge S M, *et al*. An overview of microplastic and nanoplastic pollution in agroecosystems[J]. Science of the Total Environment, 2018, **627**: 1377-1388.

[8] Huang Y, Liu Q, Jia W Q, *et al*. Agricultural plastic mulching as a source of microplastics in the terrestrial environment[J]. Environmental Pollution, 2020, **260**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.114096.

[9] Mahon A M, O'Connell B, Healy M G, *et al*. Microplastics in sewage sludge: effects of treatment[J]. Environmental Science & Technology, 2017, **51**(2): 810-818.

[10] Weithmann N, Möller J N, Löder M G J, *et al*. Organic fertilizer as a vehicle for the entry of microplastic into the environment[J]. Science Advances, 2018, **4**(4), doi: 10.1126/sciadv.aap8060.

[11] Mohajerani A, Karabatak B. Microplastics and pollutants in biosolids have contaminated agricultural soils: an analytical study and a proposal to cease the use of biosolids in farmlands and utilise them in sustainable bricks[J]. Waste Management, 2020, **107**: 252-265.

[12] Dris R, Gasperi J, Saad M, *et al*. Synthetic fibers in atmospheric fallout: a source of microplastics in the environment?[J]. Marine Pollution Bulletin, 2016, **104**(1-2): 290-293.

[13] 刘鑫蓓，董旭晟，解志红，等．土壤中微塑料的生态效应与生物降解[J]．土壤学报，2022，**59**(2)：349-363.
Liu X B, Dong X S, Xie Z H, *et al*. Ecological effects and biodegradation of microplastics in soils[J]. Acta Pedologica Sinica, 2022, **59**(2): 349-363.

[14] Shu X H, Xu L Z, Yang M H, *et al*. Spatial distribution characteristics and migration of microplastics in surface water, groundwater and sediment in karst areas: the case of Yulong River in Guilin, Southwest China[J]. Science of the Total Environment, 2023, **868**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2023.161578.

[15] Li Q L, Zeng A R, Jiang X, *et al*. Are microplastics correlated to phthalates in facility agriculture soil?[J]. Journal of Hazardous Materials, 2021, **412**, doi: 10.1016/j.jhazmat.2021.125164.

[16] Kim S K, Kim J S, Lee H, *et al*. Abundance and characteristics of microplastics in soils with different agricultural practices: Importance of sources with internal origin and environmental fate[J]. Journal of Hazardous Materials, 2021, **403**, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.123997.

[17] Zhang Q Q, Ma Z R, Cai Y Y, *et al*. Agricultural plastic pollution in China: generation of plastic debris and emission of phthalic acid esters from agricultural films[J]. Environmental Science & Technology, 2021, **55**(18): 12459-12470.

[18] Gao H H, Yan C R, Liu Q, *et al*. Effects of plastic mulching and plastic residue on agricultural production: a meta-analysis[J]. Science of the Total Environment, 2019, **651**: 484-492.

[19] 薄录吉，李冰，张凯，等．农田土壤微塑料分布、来源和行为特征[J]．环境科学，2023，**44**(4)：2375-2383.
Bo L J, Li B, Zhang K, *et al*. Distribution, sources, and behavioral characteristics of microplastics in farmland soil[J]. Environmental Science, 2023, **44**(4): 2375-2383.

[20] Mintenig S M, Int-Veen I, Löder M G J, *et al*. Identification of microplastic in effluents of waste water treatment plants using focal plane array-based micro-Fourier-transform infrared imaging[J]. Water Research, 2017, **108**: 365-372.

[21] Yang W W, Cheng P, Adams C A, *et al*. Effects of microplastics on plant growth and arbuscular mycorrhizal fungal communities in a soil spiked with ZnO nanoparticles[J]. Soil Biology and Biochemistry, 2021, **155**, doi: 10.1016/j.soilbio.2021.108179.

[22] 李嘉，喻雨霏，崔敏．生物炭对设施土壤中聚氯乙烯微塑料植物毒性的影响研究[J]．生态与农村环境学报，2023，**39**(5)：617-624.
Li J, Yu Y F, Cui M. Effects of biochar on the phytotoxicity of polyvinyl chloride microplastics in greenhouse soil[J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2023, **39**(5): 617-624.

[23] 吴亚梅，王育鹏，田佳宇，等．北京市设施农业土壤微塑料的污染特征及潜在来源[J]．生态毒理学报，2022，**17**(4)：333-344.

Wu Y M, Wang Y P, Tian J Y, *et al*. Pollution characteristics and potential sources of microplastics in facility agricultural soil in Beijing [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2022, **17** (4): 333-344.

[24] de Souza Machado A A, Kloas W, Zarfl C, *et al*. Microplastics as an emerging threat to terrestrial ecosystems [J]. Global Change Biology, 2018, **24**(4): 1405-1416.

[25] Prata J C, da Costa J P, Duarte A C, *et al*. Methods for sampling and detection of microplastics in water and sediment: a critical review [J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2019, **110**: 150-159.

[26] Wang J D, Peng J P, Tan Z, *et al*. Microplastics in the surface sediments from the Beijiang River littoral zone: composition, abundance, surface textures and interaction with heavy metals [J]. Chemosphere, 2017, **171**: 248-258.

[27] Barnes D K A, Galgani F, Thompson R C, *et al*. Accumulation and fragmentation of plastic debris in global environments [J]. Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences, 2009, **364**(1526): 1985-1998.

[28] Ding L, Zhang S Y, Wang X Y, *et al*. The occurrence and distribution characteristics of microplastics in the agricultural soils of Shaanxi Province, in north-western China [J]. Science of the Total Environment, 2020, **720**, doi: 10.1016/j. scitotenv. 2020. 137525.

[29] Zhang G S, Liu Y F. The distribution of microplastics in soil aggregate fractions in southwestern China [J]. Science of the Total Environment, 2018, **642**: 12-20.

[30] Feng S S, Lu H W, Tian P P, *et al*. Analysis of microplastics in a remote region of the Tibetan Plateau: implications for natural environmental response to human activities [J]. Science of the Total Environment, 2020, **739**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140087.

[31] Zhou B Y, Wang J Q, Zhang H B, *et al*. Microplastics in agricultural soils on the coastal plain of Hangzhou Bay, east China: multiple sources other than plastic mulching film [J]. Journal of Hazardous Materials, 2020, **388**, doi: 10.1016/j. jhazmat. 2019. 121814.

[32] 宋佃星, 马莉, 王全九. 宝鸡地区典型农田土壤中微塑料赋存特征及其环境效应研究[J]. 干旱区资源与环境, 2021, **35**(2): 170-175.
Song D X, Ma L, Wang Q J. Occurrence characteristics and environmental effects of microplastics in typical farmland soils in Baoji area [J]. Journal of Arid Land Resources and Environment, 2021, **35**(2): 170-175.

[33] 郝永丽, 胡亚鲜, 白晓雄, 等. 黄土高原土地利用方式对微塑料丰度和形态分布的影响[J]. 环境科学, 2022, **43**(9): 4748-4755.
Hao Y L, Hu Y X, Bai X X, *et al*. Abundances and morphology patterns of microplastics under different land use types on the Loess Plateau [J]. Environmental Science, 2022, **43**(9): 4748-4755.

[34] 王毅, 张俊清, 况帅, 等. 施用小麦秸秆或其生物炭对烟田土壤理化特性及有机碳组分的影响[J]. 植物营养与肥料学报, 2020, **26**(2): 285-294.
Wang Y, Zhang J Q, Kuang S, *et al*. Effects of wheat straw and its biochar application on soil physiochemical properties and organic carbon fractions in flue-cured tobacco field [J]. Journal of Plant Nutrition and Fertilizers, 2020, **26**(2): 285-294.

[35] 吴为, 张敏, 缪明, 等. 土壤环境中微塑料的发生、来源及影响研究进展[J]. 湖南生态科学学报, 2021, **8**(3): 90-98.
Wu W, Zhang M, Miao M, *et al*. Microplastics in soil environment: occurrences, sources and impact [J]. Journal of Hunan Ecological Science, 2021, **8**(3): 90-98.

[36] Ya H B, Jiang B, Xing Y, *et al*. Recent advances on ecological effects of microplastics on soil environment [J]. Science of the Total Environment, 2021, **798**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.149338.

[37] Wu R T, Cai Y F, Chen Y X, *et al*. Occurrence of microplastic in livestock and poultry manure in South China [J]. Environmental Pollution, 2021, **277**, doi:10.1016/j.envpol.2021.116790.

[38] 王志超, 孟青, 于玲红, 等. 内蒙古河套灌区农田土壤中微塑料的赋存特征[J]. 农业工程学报, 2020, **36**(3): 204-209.
Wang Z C, Meng Q, Yu L H, *et al*. Occurrence characteristics of microplastics in farmland soil of Hetao Irrigation District, Inner Mongolia [J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering, 2020, **36**(3): 204-209.

[39] Huerta Lwanga E, Mendoza Vega J, Ku Quej V, *et al*. Field evidence for transfer of plastic debris along a terrestrial food chain [J]. Scientific Reports, 2017, **7**(1), doi: 10.1038/s41598-017-14588-2.

[40] Beriot N, Peek J, Zornoza R, *et al*. Low density-microplastics detected in sheep faeces and soil: a case study from the intensive vegetable farming in Southeast Spain [J]. Science of the Total Environment, 2021, **755**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.142653.

[41] 孟艳, 沈亚文, 孟维伟, 等. 生物炭施用对农田土壤团聚体及有机碳影响的整合分析[J]. 环境科学, 2023, **44**(12): 6847-6856.
Meng Y, Shen Y W, Meng W W, *et al*. Effect of biochar on agricultural soil aggregates and organic carbon: a meta-analysis [J]. Environmental Science, 2023, **44**(12): 6847-6856.

[42] Hussain R, Ravi K. Investigating biochar-amended soil as a potential lightweight material for embankments [J]. Ecological Engineering, 2022, **180**, doi: 10.1016/j.ecoleng.2022.106645.

[43] Wang X F, Li Y, Wang H R, *et al*. Targeted biochar application alters physical, chemical, hydrological and thermal properties of salt-affected soils under cotton-sugarbeet intercropping [J]. CATENA, 2022, **216**, doi: 10.1016/j.catena.2022.106414.

[44] Palansooriya K N, Sang M K, Igalavithana A D, *et al*. Biochar alters chemical and microbial properties of microplastic-contaminated soil [J]. Environmental Research, 2022, **209**, doi: 10.1016/j.envres.2022.112807.

[45] Huang B, Sun L Y, Liu M R, *et al*. Abundance and distribution characteristics of microplastic in plateau cultivated land of Yunnan Province, China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2021, **28**(2): 1675-1688.

[46] Scheurer M, Bigalke M. Microplastics in Swiss floodplain soils [J]. Environmental Science & Technology, 2018, **52**(6): 3591-3598.

[47] Huerta Lwanga E, Gertsen H, Gooren H, *et al*. Microplastics in the terrestrial ecosystem: implications for *Lumbricus terrestris* (Oligochaeta, Lumbricidae) [J]. Environmental Science & Technology, 2016, **50**(5): 2685-2691.

[48] Yang J, Li R J, Zhou Q, *et al*. Abundance and morphology of microplastics in an agricultural soil following long-term repeated application of pig manure [J]. Environmental Pollution, 2021, **272**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.116028.

[49] 刘淑丽, 简敏菲, 周隆胤, 等. 鄱阳湖湿地候鸟栖息地微塑料污染特征[J]. 环境科学, 2019, **40**(6): 2639-2646.
Liu S L, Jian M F, Zhou L Y, *et al*. Pollution characteristics of microplastics in migratory bird habitats located within Poyang Lake wetlands [J]. Environmental Science, 2019, **40**(6): 2639-2646.

[50] Yan Z H, Zhao H J, Zhao Y P, *et al*. An efficient method for extracting microplastics from feces of different species [J]. Journal of Hazardous Materials, 2020, 384, doi: 10.1016/j.jhazmat.2019. 121489.

[51] Enyoh C E, Verla A W, Verla E N, *et al*. Airborne microplastics: a review study on method for analysis, occurrence, movement and risks [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2019, **191**(11), doi: 10.1007/s10661-019-7842-0.

[52] Wang J, Li J Y, Liu S T, *et al*. Distinct microplastic distributions in soils of different land-use types: a case study of Chinese farmlands [J]. Environmental Pollution, 2021, **269**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.116199.

[53] 马贵, 丁家富, 周悦, 等. 固原市农田土壤微塑料的分布特征及风险评估[J]. 环境科学, 2023, **44**(9): 5055-5062.
Ma G, Ding J F, Zhou Y, *et al*. Distribution characteristics and risk assessment of microplastic in farmland soil in Guyuan [J]. Environmental Science 2023, **44**(9): 5055-5062.

[54] Zhang S W, Li Y X, Chen X C, *et al*. Occurrence and distribution of microplastics in organic fertilizers in China [J]. Science of the Total Environment, 2022, **844**, doi: 10.1016/j. scitotenv. 2022. 157061.

[55] Corcoran P L, Biesinger M C, Grifi M. Plastics and beaches: a degrading relationship [J]. Marine Pollution Bulletin, 2009, **58**(1): 80-84.

HUANJING KEXUE Vol. 45 No. 4
Environmental Science (monthly) Apr. 15, 2024

CONTENTS