

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第2期

Vol.38 No.2

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

北京大气颗粒物和重金属铅干沉降通量及季节变化	姚利, 刘进, 潘月鹏, 田世丽, 王振波, 韦霞, 张国忠, 周保华, 王跃思 (423)
海西城市群 PM _{2.5} 中重金属元素的污染特征及健康风险评价	陈衍婷, 杜文娇, 陈进生, 徐玲玲 (429)
峨边地区大气 PM _{2.5} 中汞形态污染及其与碳组分的关系	程娜, 钱冠磊, 段炼, 赵梦飞, 修光利 (438)
泰山夏季 PM _{2.5} 中二元羧酸类 SOA 的分子组成及来源	孟静静, 侯战方, 刘晓迪, 邢继钊 (445)
南京北郊大气 BTEX 变化特征和健康风险评估	张玉欣, 安俊琳, 王健宇, 王俊秀, 师远哲, 刘静达, 梁静舒 (453)
长株潭城市群人为源 VOCs 排放清单及其对环境的影响	尤翔宇, 罗达通, 刘湛, 苏艳蓉 (461)
南京城市交通甲烷排放特征	张雪, 胡凝, 刘寿东, 王淑敏, 高韵秋, 赵佳玉, 张圳, 胡勇博, 李旭辉, 张国君 (469)
2003~2014 年东北三省气溶胶光学厚度变化分析	张宸赫, 赵天良, 王富, 徐祥德, 苏航, 程兴宏, 谭成好 (476)
基于增强回归树的 PM _{2.5} 日均值变化分析: 以常州为例	葛跃, 王明新, 孙向武, 齐今笛 (485)
重庆市燃煤电厂汞排放特征及排放量	张成, 张雅惠, 王永敏, 王定勇, 徐凤, 杨熹, 何秀清 (495)
几种可能来源对广东某地空气中二噁英的影响	付建平, 韩静磊, 于晓巍, 杨艳艳, 尹文华, 冯桂贤, 张素坤, 黄锦琼, 任明忠 (502)
养鸡场空气中抗性基因和条件致病菌污染特征	高敏, 仇天雷, 秦玉成, 王旭明 (510)
百年来滇池沉积物中不同形态氮分布及埋藏特征	吴亚林, 李帅东, 江俊武, 沈胤胤, 黄昌春, 黄涛, 杨浩, 余艳红, 罗玉 (517)
岩溶地下河补给的地表溪流溶解无机碳及其稳定同位素组成的时空变化	李丽, 蒲俊兵, 李建鸿, 张陶 (527)
三峡水库大宁河支流浮游植物演变过程及其驱动因素	张佳磊, 郑丙辉, 刘德富, 王丽婧, 谭纤茹 (535)
分层型水库夏季水质对极端厄尔尼诺事件的响应	邱晓鹏, 黄廷林, 曾明正, 史建超, 曹占辉 (547)
淹水-落干与季节性温度升高耦合过程对消落带沉积物氮矿化影响	林俊杰, 刘丹, 张帅, 于志国, 何立平, 余顺慧 (555)
湖泊水体中铁(III)-草酸络合物驱动有机磷光解释放磷酸根	蒋永参, 彭云霄, 刘广龙, 周易勇, 朱端卫 (563)
高效磷吸附剂 Mg/Al-LDO 的制备及除磷机制	王卫东, 郝瑞霞, 张晓娴, 万京京, 钟丽燕 (572)
改性沸石湿地脱氮除磷效能及机制	吴鹏, 陆爽君, 徐乐中, 梁奇奇, 沈耀良 (580)
几种水陆交错带植物对底质氮磷释放的抑制作用	姚程, 胡小贞, 卢少勇, 耿荣妹 (589)
模拟三峡库区消落带优势植物根系低分子量有机酸对土壤中铅的解吸动力学	何沅洁, 刘江, 江韬, 黄京晶, 成晴, 陈宏 (600)
TiO ₂ /膨润土复合材料对 Hg ²⁺ 的吸附性能研究	唐兴萍, 周雄, 张金洋, 张成, 王定勇 (608)
氨氮及 H ₂ O ₂ 对溴酸盐和消毒副产物控制的影响	王永京, 杜旭, 金萌, 冯思捷, 杨凯, 张明露, 于建伟 (616)
配水管网细菌活性影响因素	王晓丹, 赵新华 (622)
施氏矿物的化学合成及其对含 Cr(VI) 地下水吸附修复	朱立超, 刘元元, 李伟民, 牟海燕, 王婉玉, 石德智, 王涛 (629)
臭氧-混凝耦合工艺污水深度处理特性及其机制	侯瑞, 金鑫, 金鹏康, 王晓昌 (640)
单级和多级 A/O 工艺中氮的去除效果及 N ₂ O 的产生特性	郭昌梓, 张凤燕, 刘富宇, 朱超, 裴立影 (647)
有机碳源作用下厌氧氨氧化系统的脱氮效能	管勇杰, 于德爽, 李津, 齐泮晴, 魏思佳 (654)
完全混合式曝气系统运行特性及微生物群落结构解析	王硕, 徐巧, 张光生, 李激 (665)
颗粒+絮体污泥 CANON 工艺的启动与 SRT 影响研究	孙延芳, 韩晓宇, 张树军, 李星, 曹相生 (672)
游离氨调控对污泥高含固厌氧消化反应器性能的影响	戴晓虎, 何进, 严寒, 李宇, 丁月玲, 董滨, 戴翎翎 (679)
利用卷枝毛霉成球特性高效收获微藻	顾琼, 金文标, 陈远清, 郭仕达, 万超凡 (688)
零价铁对污泥高温厌氧消化过程中四环素抗性基因及第一类整合子的消减影响	魏欣, 薛顺利, 杨帆, 李响, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (697)
沈抚新城不同土地利用类型多环芳烃含量、来源及人体健康风险评价	王静, 刘明丽, 张士超, 鲁垠涛, 姚宏 (703)
河南某市驾校地表灰尘多环芳烃组成、来源与健康风险	陈轶楠, 马建华, 段海静, 魏林恒 (711)
外源微生物对植物根系修复十溴联苯醚污染底泥的强化作用	杨雷峰, 尹华, 彭辉, 李跃鹏 (721)
微生物修复油污土壤过程中氮素的变化及菌群生态效应	叶茜琼, 吴蔓莉, 陈凯丽, 李炜, 袁婧 (728)
沼泽红假单胞菌 PSB06 对辣椒根际微生物群落结构的影响	罗路云, 金德才, 左晖, 张卓, 谭新球, 张德咏, 卢向阳, 刘勇 (735)
再生水补水对河道底泥细菌群落组成与功能的影响	邱琰茗, 王广煊, 黄兴如, 郭逍宇 (743)
矿区不同植被复垦模式对土壤细菌群落结构的影响	贺龙, 李艳琴, 李彬春, 李君剑 (752)
稻田土壤固碳功能微生物群落结构和数量特征	刘琼, 魏晓梦, 吴小红, 袁红朝, 王久荣, 李裕元, 葛体达, 吴金水 (760)
不同温度制备的生物炭对土壤有机碳及其组分的影响: 对土壤腐殖物质组成及性质的影响	赵世翔, 于小玲, 李忠徽, 杨艳, 张霞, 王旭东, 张阿凤 (769)
复合菌剂秸秆堆肥对土壤碳氮含量和酶活性的影响	聂文翰, 戚志萍, 冯海玮, 孙玉静, 支月娥, 张进忠, 张丹 (783)
秸秆/生物炭施用对关中地区小麦-玉米轮作系统净增温潜势影响的对比分析	成功, 陈静, 刘晶晶, 张阿凤, 王旭东, 冯浩, 赵英 (792)
1 株氨基高效降解菌的分离鉴定及降解特性	叶杰旭, 林彤晖, 骆煜昊, 陈东之, 陈建孟 (802)
1 株异养反硝化硫细菌的分离鉴定及代谢特性	谭文勃, 马晓丹, 黄聪, 陈川, 王爱杰 (809)
连续施用污泥堆肥土壤剖面中重金属积累迁移特征及对小麦吸收重金属的影响	孙娜, 商和平, 茹淑华, 苏德纯 (815)
施氮对小麦(Ⅵ)吸收、转运和分配的影响	陈玉鹏, 彭琴, 梁东丽, 宋卫卫, 雷凌明, 喻大松 (825)
长期暴露下纳米二氧化钛对典型淡水藻体砷累积与生物转化的影响	李金丽, 王振红, 严雅萌, 黄兵, 罗专溪 (832)
不同热解温度制备的玉米芯生物炭对对硝基苯酚的吸附作用	马锋锋, 赵保卫 (837)
《环境科学》征稿简则(526) 《环境科学》征订启事(720) 信息(678, 696, 844)	

连续施用污泥堆肥土壤剖面中重金属积累迁移特征及对小麦吸收重金属的影响

孙娜¹, 商和平¹, 茹淑华², 苏德纯^{1*}

(1. 中国农业大学资源与环境学院, 北京 100193; 2. 河北省农林科学院农业资源环境研究所, 石家庄 050051)

摘要: 通过大田试验, 定量研究连续施用污泥堆肥后土壤剖面中不同重金属积累迁移和对小麦吸收重金属的影响, 为科学确定农田土壤重金属环境容量和农田土壤重金属污染防治提供依据。结果表明, 连续 4 a 施用污泥堆肥农田耕层土壤(0 ~ 15 cm)中 Cu、Zn 含量随污泥施用时间和施用量增加而显著增加, 污泥施用带入的 Cu、Zn 在耕层土壤中积累率最高分别可达到 75.3% 和 85.9%; 污泥施用量较高时, Cu、Zn 向土壤深层迁移, 本试验条件下 Cu 可迁移至 15 ~ 30 cm 土层, Zn 可迁移至 60 ~ 90 cm 土层; 连续施用污泥堆肥 4 a 后, 0 ~ 15 cm 土层中 Cd、Pb 含量显著增加, 与对照相比增幅分别是 57.2% ~ 165.2%、13% ~ 34%, 60 ~ 90 cm 土层中 Cr、As、Pb 含量也显著高于对照; 连续施用污泥堆肥小麦籽粒中 Zn 含量显著增加, 增幅为 13.3% ~ 47.9%。部分污泥处理小麦籽粒中的 Cr、Pb 含量超出国家食品卫生标准(GB 2762-2012); 4 a 小麦收获对各重金属累计携出率均低于 10%, 小麦籽粒对 Cu、Zn 的累计携出量大于秸秆, 而对 Cr、As、Cd、Pb 的累计携出量小于秸秆。随污泥施用量的增加, 小麦收获对各重金属累计携出率降低。确定农田土壤重金属环境容量时要考虑重金属在土壤剖面中的向下迁移量。

关键词: 污泥堆肥; 土壤剖面; 重金属; 迁移; 小麦

中图分类号: X171; X53 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)02-0815-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201608031

Effects of Continuous Application of Sewage Sludge Compost on Heavy Metals Accumulation and Mobility Characteristics in Soil Profile and on Heavy Metals Uptake of Wheat

SUN Na¹, SHANG He-ping¹, RU Shu-hua², SU De-chun^{1*}

(1. College of Resource and Environment Sciences, China Agricultural University, Beijing 100193, China; 2. Institute of Agro-resource and Environment, Hebei Academy of Agriculture and Forestry Sciences, Shijiazhuang 050051, China)

Abstract: The use of sewage sludge compost (SSC) as fertilizer may cause increased leaching due to its high content of heavy metals and thus pose a threat to groundwater quality. The effect of SSC application on heavy metals leaching in calcareous soils has been studied in field trials, which provides basis for determining heavy metals environmental capacity and preventing metal pollution in farmland soil scientifically. The results indicated that the contents of Cu, Zn elevated obviously with the increase of the age and the dosage of SSC utilization in the topsoil (0-15 cm) under 4-year continuous application of SSC. Under higher levels of the compost treatment, the heavy metals Cu and Zn were found to migrate into the 15-30 cm soil and 60-90 cm soil under the experimental condition. Nevertheless, the majority of Cu and Zn from SSC accumulated in topsoil and the highest accumulation rates could reach 75.3% for Cu and 85.9% for Zn. The contents of Cd, Pb increased significantly in topsoil after 4-year continuous application of SSC, and their increases could reach 57.2%-165.2% for Cd and 13%-34% for Pb compared with CK. At 60-90 cm soil, the contents of Cr, As and Pb were also significantly higher than those in CK treatment. Application of SSC not only caused accumulation of some heavy metals in topsoil but also leached heavy metals located in the subsurface soil down in this experiment. Continuous utilization of SSC increased Zn concentration of wheat grain, and the increase could reach 13.3%-47.9%. For the concentrations of Cr and Pb in wheat grain, the values exceeded the national food and healthy standards value (GB 2762-2012) in part of compost treatments. The cumulative ratio of heavy metals carried out by wheat were all below 10% after 4-year experiment, wheat grain carried much more Cu, Zn out than wheat straw, but it was opposite for Cr, As, Cd, Pb. The cumulative ratio of heavy metals carried by wheat decreased with the increasing level of SSC utilization. The amounts of heavy metals migrated to deeper soil should be considered when determining the environmental capacity of heavy metals in farmland soil.

Key words: sewage sludge compost; soil profile; heavy metals; mobility; wheat

收稿日期: 2016-08-04; 修订日期: 2016-09-05

基金项目: 国家自然科学基金项目(41271488); 河北省自然科学基金项目(C2013301066)

作者简介: 孙娜(1991~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为土壤重金属污染控制与修复, E-mail: sns1203@163.com

* 通信作者, E-mail: dcsu@cau.edu.cn

农田土壤重金属污染越来越受到人们的关注^[1]. 农田土壤重金属的来源有多种途径,包括化肥有机肥的施用、污水灌溉、农用物资投入和大气沉降等^[2],其中有机肥的施用是农田土壤重金属的重要来源之一^[3~5]. 有研究发现,英格兰和威尔士的农田土壤 Cu 总输入的 37%~40%、Zn 总输入的 8%~17% 来自于畜禽粪便和污泥施用^[6],我国农田土壤重金属的主要来源之一也是污泥和有机肥的施用^[7],在华北小麦-玉米轮作体系农田土壤中的 Cu、Zn、Cd、Ni 通过有机肥输入量占总输入量的比例均大于 70%^[8]. 很多研究表明进入农田土壤的重金属一般积累在土壤表层^[9,10],向下迁移的量很少,在土壤剖面中,重金属的含量随着土壤深度的增加而降低^[11~14]. Sloan 等^[15]研究了污泥土地利用多年后重金属的质量平衡发现,Cd、Cr、Cu、Ni、Pb 和 Zn 在 0~30 cm 的土层中的回收率接近或达到 100%,迁移至土壤 30~45 cm 深度的量很小. 付克强等^[16]研究也发现,污泥施用后重金属 Cd、Pb 仅累积在土壤耕层,很难向下迁移. 以往研究农田土壤重金属负荷时主要考虑农田土壤耕层的重金属环境容量^[17~19],但也有研究发现,长期施用污泥,土壤中 15~35 cm 土层的 Zn、Pb、Cr、Cu 含量相比于不施污泥处理也会显著增加,其中 Pb、Cu 在 55~105 cm 土层的含量也明显高于不施污泥处理^[20]; Camphell 等^[21]发现,在污泥施用 7a 后易溶态的 Cu、Zn、Cd 含量在土壤的 40~60 cm 高于对照,表明污泥的施用在一定条件下也存在重金属向土壤深层迁移的风险. 表层土壤中重金属向土壤深层迁移受土壤 pH、有机质、氧化还原电位和 CEC 等多种因素影响^[22].

有机肥带入土壤的重金属有其特殊性,有机肥施入土壤后是一个有机质组成动态变化过程,随有

机肥腐解进行,部分有机物分解,产生小分子的有机物,另一方面,小分子的有机物也会聚合或缩合成结构更复杂更稳定的大分子腐殖物质^[23,24],小分子的有机质与重金属络合后可以增加重金属的溶解性和在土壤中的移动性,土壤中水溶性有机物(DOM)在重金属的迁移中起了结合载体的功能. DOM 还能降低土壤对重金属的吸附,提高其在土壤中的移动性. 污泥农用是一项废物资源化的重要途径,但是污泥有机肥中通常含有大量的重金属,确定污泥安全施用量和重金属负荷是预防土壤重金属污染的首要任务,研究田间连续施用不同量污泥堆肥后重金属在土壤剖面中的分布和迁移特征,对科学确定农田耕层土壤的重金属负荷,确保农产品安全生产具有重要意义. 本文通过大田试验,量化研究连续施用不同量污泥堆肥土壤剖面中重金属积累迁移和小麦吸收重金属数量,以期科学确定农田土壤重金属负荷和污泥安全农用提供可靠的理论依据.

1 材料与方法

1.1 供试土壤与污泥

田间试验地位于河北省农林科学院大河试验站,其地理位置为北纬 38°07'32",东经 114°23'00",海拔 94.2 m. 土壤母质为洪冲积物,土壤类型为黏壤质洪冲积石灰性褐土. 土壤基本理化性质: pH 7.93、有机质 1.81%、全氮 1.11 g·kg⁻¹、土壤硝态氮 25.8 mg·kg⁻¹、全磷 0.08%、有效磷 14.5 mg·kg⁻¹、全钾 1.79%、速效钾 96.3 mg·kg⁻¹. 在此处选取的试验田土壤中重金属含量均低于土壤环境质量一级标准值(GB 15618-1995). 供试污泥选自某污水处理厂,并将污泥和作物秸秆按 2:1 的体积比发酵后制成污泥堆肥,污泥堆肥有机质含量为 34.6%. 试验地土壤和污泥堆肥中重金属含量见表 1.

表 1 基础土壤和污泥堆肥中的重金属含量/mg·kg⁻¹
Table 1 Heavy metals concentrations in basic soil and sewage sludge compost/mg·kg⁻¹

项目	土壤重金属含量							
	Cu	Zn	Pb	Cd	Cr	Ni	Hg	As
土壤	22.9	68.0	30.0	0.150	67.4	29.3	0.067	10.5
污泥堆肥	162	4216	77.3	3.32	188	41.3	4.56	12.3

1.2 试验设计

本试验共设 5 个处理,包括 1 个常规对照处理(CK)和 4 个污泥用量梯度处理(W1、W2、W3、W4),各处理的肥料用量见表 2. 每个处理设置 3 个重复,共 15 个试验小区,每个试验小区面积为 12 m²(长 3 m,宽 4 m),各小区均随机排列,小区南北向

用田埂隔开,东西向用塑料板隔开. 田间管理方式参照当地. 为了控制施肥方式一致,所有污泥堆肥和氮、磷、钾均采用小麦播种前一次性基肥施用,施肥后与耕层土壤(0~15 cm)用小型悬耕机充分混匀. 试验期 4 a,每年均按表 2 施用污泥堆肥并种植小麦,小麦一年一熟,收获后不再种植其他作物.

表 2 田间试验肥料用量

Table 2 Amount of fertilizer application								
处理代号	试验处理	污泥堆肥及化肥用量/ $\text{t}\cdot\text{hm}^{-2}$				养分含量/ $\text{t}\cdot\text{hm}^{-2}$		
		污泥有机肥 ¹⁾	尿素 ²⁾	低镉磷肥 ²⁾	氯化钾 ²⁾	N	P ₂ O ₅	K ₂ O
1	CK	0	0.65	0.33	0.15	0.30	0.15	0.09
2	W1	15	0.14	0	0.05	0.30	0.26	0.09
3	W2	30	0	0	0	0.47	0.53	0.13
4	W3	45	0	0	0	0.71	0.79	0.19
5	W4	60	0	0	0	0.94	1.05	0.25

1) 污泥堆肥的 N、P₂O₅、K₂O 养分含量按 2.24%、2.50%、0.42% 计算; 2) 为使各小区产量基本保持一致, 有机肥中的 N 和 P 按相当于化肥 70% 折算, N、P₂O₅、K₂O 分别补足 0.3、0.15、0.09 $\text{t}\cdot\text{hm}^{-2}$, 用尿素/低镉磷肥(三料)/氯化钾补充, 超过不补

1.3 样品采集

2011~2014 年的田间试验期间, 在每年 6 月小麦成熟期采集土壤样品. 采样方法为“S”型多点采样法. 每个小区土壤采样深度分别为 0~15、15~30、30~60 和 60~90 cm 的 4 个土层, 每层取多个样点混匀为 1 个土壤样品. 土样经自然风干后研磨先过 1 mm 尼龙筛, 再取部分土样过 0.149 mm 尼龙筛, 备用.

小麦成熟期采集小麦秸秆与籽粒样. 采样方法为棋盘法, 每个小区取 10 株小麦样品, 混匀为 1 个植物样品. 小麦生物量和产量样采用样方法, 每小区采集 $1\times 2\text{ m}^2$ 样方两个. 样品经自来水和去离子水洗净后, 放入烘箱 70℃ 烘干, 烘干后分别称重秸秆和小麦子粒, 秸秆剪碎并用不锈钢粉碎机粉碎, 籽粒使用高速粉碎机粉碎, 并过 1 mm 尼龙筛, 备用.

1.4 pH 测定方法

称取过 1 mm 筛的风干土壤样品 10.0 g, 在水土比 2.5:1 下, 使用 pH 计常规方法测定.

1.5 土壤重金属全量的测定

称取过 0.149 mm 筛的土壤样品约 0.25 g 于消解罐中, 加入 8 mL 优级纯王水浸泡过夜, 第 2 d 使用微波消解仪(美国 CEM 公司, MARS5)消解, 用电感耦合等离子体质谱仪(安捷伦 ICP-MS7700)测定 Cr、As、Cd、Pb 含量, 用等离子发射光谱(ICP-AES)测定 Cu、Zn 含量.

1.6 小麦样品重金属的测定

分别称取秸秆和籽粒样品约 0.25 g 于消解罐中, 加入 8 mL 优级纯 HNO₃ 浸泡过夜, 第 2 d 使用微波消解仪(美国 CEM 公司, MARS5)消解小麦样品, 用电感耦合等离子体质谱仪(安捷伦 ICP-MS7700)测定 Cr、As、Cd、Pb 含量, 用等离子发射光谱(ICP-AES)测定 Cu、Zn 含量.

1.7 质量控制与数据处理

每一批样品均加入相应土壤或植株标样

(GSBZ50014-88、GSBZ51001-94、GBW10046)做质量控制, 在标样符合推荐值范围内, 其结果可采用.

本试验使用 Microsoft Office Excel 2010 软件数据和绘制图表, 使用 SPSS 20.0 软件, 在 $P<0.05$ 水平下对数据进行显著性分析.

2 结果与讨论

2.1 连续施用污泥堆肥后耕层土壤 pH 变化

土壤 pH 是影响重金属在土壤中迁移和重金属生物有效性的重要因素. 连续 4 a 施用污泥堆肥(污泥)后, 耕层土壤(0~15 cm)的 pH 随污泥施用量的增加显著下降, 在每年 15、30、45、60 $\text{t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 污泥施用量条件下, 耕层土壤 pH 分别为 7.80 ± 0.056 、 7.77 ± 0.044 、 7.59 ± 0.023 、 7.57 ± 0.114 , 与对照处理(CK)相比(pH 为 7.93 ± 0.075), 分别下降了 0.13、0.16、0.34、0.36 个单位. pH 降低会提高某些重金属的生物有效性和在土壤剖面中的迁移能力, 常同举等^[25]研究发现, 在水稻土上土壤 pH 能显著影响土壤重金属的有效态含量进而影响水稻对重金属的吸收.

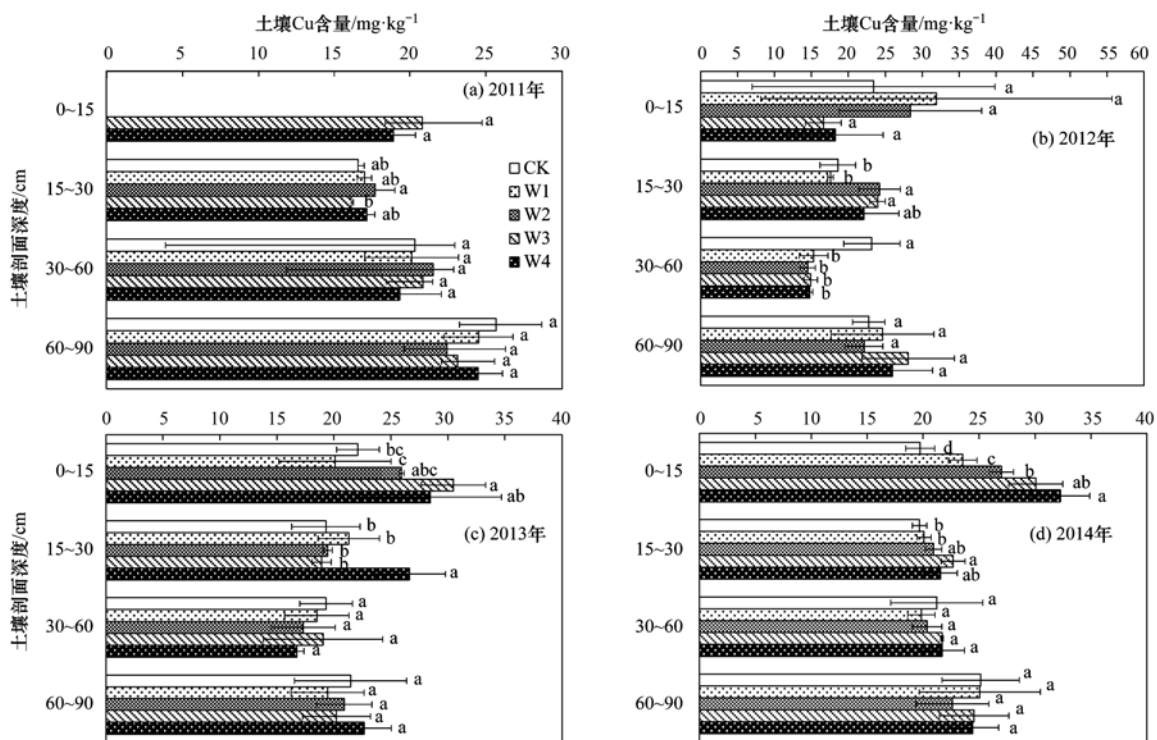
2.2 土壤剖面中重金属的积累和迁移特征

从图 1 可以看出, 在华北麦田土壤上, 每年施用污泥 15、30、45、60 $\text{t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 条件下, 连续施用 2 a 后耕层土壤(0~15 cm)中 Cu 含量没有明显增加, 但是随着污泥施用时间的增加, 与对照(CK)处理相比, 耕层土壤中的 Cu 含量随污泥用量增加而显著增加, 污泥施用第 3 a, 30、45、60 $\text{t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 污泥用量处理下耕层土壤 Cu 含量达到 25.9、30.5、28.5 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 相比于 CK 分别增加了 17%、38%、29%, 污泥施用第 4 a, 15、30、45、60 $\text{t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 污泥用量下, 耕层土壤中 Cu 含量为 23.5、27.0、30.1、32.3 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 相比于 CK 分别增加了 19%、37%、52%、64%, 随着污泥施用时间增加 Cu 在表层土壤中积累越来越显著(图 1). 在 15~30 cm

土层中,污泥施用第1 a,各污泥处理下 Cu 含量范围在 $16.1 \sim 17.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,变幅不大;污泥施用第2 a,各处理下土壤中 Cu 含量范围在 $17.6 \sim 24.2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,相比于污泥施用第1 a 土壤 Cu 含量增加,其中 $30 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 、 $45 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥用量处理下土壤 Cu 含量显著高于 CK 处理;污泥施用第3 a,土壤 Cu 含量范围在 $19.0 \sim 26.6 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,高于第2 a, $60 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥用量处理下土壤 Cu 含量达到最大,是 CK 处理的 1.4 倍;污泥施用第4 a 土壤 Cu 含量范围在 $20.1 \sim 22.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, $30 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 、 $45 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥用量处理下土壤 Cu 含量显著高于 CK 处理. 对于 30 cm 以下土层,各污泥处理下土壤中 Cu 含量均无显著性差异.

以耕层(0~15 cm)土壤 Cu 净增加量占污泥堆肥 Cu 带入量的比来表示污泥堆肥中 Cu 在耕层土壤的积累率,连续4 a 施用污泥堆肥后,各污泥用量

处理下 Cu 在耕层土壤中的积累率范围是 $61.9\% \sim 75.3\%$,表明污泥施用带入土壤的 Cu 主要积累在耕层土壤,但是在 15~30 cm 土层中 Cu 的含量也呈现出逐年缓慢增长的趋势,并且部分污泥处理下 Cu 在 15~30 cm 土层的含量显著高于 CK 处理,表明 Cu 从耕层向下发生了迁移并积累,这是因为污泥施用降低了土壤 pH 并带入了大量的溶解性有机质(DOM)^[26],pH 降低能够活化土壤固定的 Cu,促进 Cu 的溶出,同时 DOM 的存在能够抑制土壤对 Cu 的吸附^[27],两者共同作用下增多了土壤溶液中的 Cu 含量,而有机质对 Cu 又有强烈的络合作用,它能与 Cu 形成有机-Cu 复合体,从而带动 Cu 向土壤深层移动^[28~30]. Kaschl 等^[31]通过土柱试验研究发现,施用城市生活垃圾堆肥后土柱浸出液中的 Cu 主要是有机-Cu 络合态,而污泥堆肥与城市生活垃圾堆肥的一个共同点是二者均含有大量的有机物.



同一土层不同处理间无共同字母表示 Duncan's 多重比较差异显著 ($P < 0.05$),下同

图1 连续4 a 施用污泥土壤剖面中 Cu 含量分布

Fig. 1 Distribution of Cu concentration in soil profile under 4-year sludge application

图2是连续4 a 施用污泥堆肥 Zn 在土壤剖面中的含量分布. 从中可以看出,污泥施用第1 a,各污泥处理下耕层土壤(0~15 cm)中的 Zn 含量范围在 $64.4 \sim 99.0 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,处理间变幅较大但统计检验无显著差异;污泥施用第2 a,耕层土壤中的 Zn 含量显著增加,在 15、30、45、 $60 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥用量下耕层土壤中的 Zn 含量分别达到了 138.2、94.1、

168.5、 $165.1 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,是 CK 处理的 2.8、1.9、3.4、3.3 倍;污泥施用第3 a、第4 a,耕层土壤中的 Zn 含量均随污泥用量的增加而显著增加,第3 a 耕层土壤中 Zn 含量范围为 $170.4 \sim 393.3 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,在 $60 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 污泥用量下土壤 Zn 含量最高,是 CK 的 6 倍;第4 a 土壤中 Zn 含量范围为 $205.1 \sim 499.6 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,最高污泥用量下土壤 Zn 含量为 CK 处理

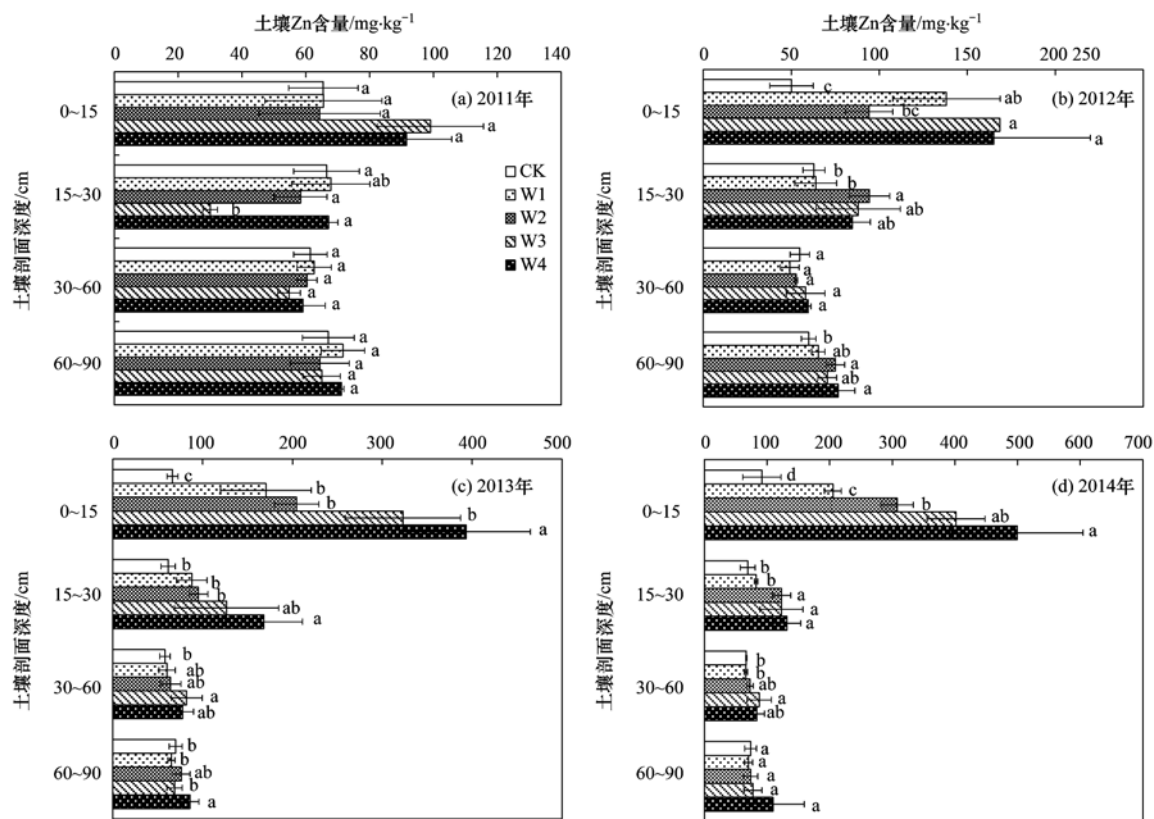


图2 连续4 a 施用污泥土壤剖面中 Zn 含量分布

Fig. 2 Distribution of Zn concentration in soil profile under 4-year sludge application

的5.4倍。连续4 a 施用污泥使耕层土壤 Zn 含量大幅增加,以耕层土壤 Zn 净增加量占污泥堆肥 Zn 带入量的比来表示 Zn 在耕层土壤的积累率,连续4 a 施用污泥堆肥后,各污泥用量处理下 Zn 在耕层土壤中的积累率均达到了77%以上,最高积累率可达到85.9%。

从土壤剖面中 Zn 含量分布来看,污泥施用带入的 Zn 积累在耕层土壤最多,但随着污泥施用时间增加,Zn 也向土壤深层迁移。在15~30 cm 土层中,污泥施用第1 a、第2 a,土壤中 Zn 含量范围分别为30.1~67.9 mg·kg⁻¹、64.0~94.5 mg·kg⁻¹;污泥施用第3 a,15~30 cm 土层中 Zn 含量随污泥用量增加而增加,各污泥处理下 Zn 含量分别为88.0、95.3、126.8、168.0 mg·kg⁻¹,是 CK 处理的1.4、1.5、2.1、2.7倍;污泥施用第4 a,各污泥处理下 Zn 含量显著增加,分别为82.7、123.3、123.1、131.9 mg·kg⁻¹,是 CK 处理的1.2、1.8、1.8、1.9倍。在30~60 cm 土层中,污泥施用前两年各处理下土壤 Zn 含量未明显增加,但在第3 a、第4 a,各污泥处理下土壤 Zn 含量范围分别是60.4~82.3 mg·kg⁻¹、66.3~87.6 mg·kg⁻¹,在45 t·hm⁻²污泥用

量下土壤 Zn 含量显著高于 CK 处理。在60~90 cm 土层中,污泥施用第2 a,土壤中 Zn 含量范围为65.3~76.7 mg·kg⁻¹,在30 t·hm⁻²、60 t·hm⁻²污泥用量处理下土壤 Zn 含量显著高于对照处理;污泥施用第3 a、第4 a,各处理下土壤 Zn 含量范围分别为65.2~85.9 mg·kg⁻¹、70.5~109.7 mg·kg⁻¹,在第3 a的60 t·hm⁻²污泥用量处理下土壤 Zn 含量显著高于对照处理。

与 Cu 相比,本试验条件下 Zn 在土壤中的迁移能力更强,可迁移至60~90 cm 土层。这可能是污泥带入的有机物分解使土壤中溶解性有机质(DOM)浓度增加,DOM 能够络合土壤中的 Zn,从而使土壤对 Zn 的吸附产生强烈抑制作用,促使 Zn 在土壤中移动,有研究表明这种抑制作用在中性和碱性黏壤土下最强^[20],而本试验地土质为石灰性黏壤土,并且连续4 a 施用污泥堆肥后,各处理下的土壤耕层(0~15 cm)的 pH 均接近弱碱性的条件均有利于 Zn 的迁移;此外,有研究发现,Cu 在土壤中的迁移主要受溶解性有机碳(DOC)影响,但 Zn 的迁移主要受土壤中 Ca 含量影响,其次才是 DOC^[29],试验地属于典型华北石灰性褐土,土壤钙含量较高可能

也促进了 Zn 的迁移,另外,本试验中的污泥自身 Zn 含量非常大,重金属在土壤中的迁移与其含量也有很大关系。

图 3 是经过 4 a 连续施用污泥后土壤剖面中 Cr、As、Cd、Pb 的分布情况。土壤耕层(0~15 cm)中 Cr、As 含量范围分别是 29.9~38.7 mg·kg⁻¹、9.8~11.2 mg·kg⁻¹,相比于 CK 未显著增加;耕层中 Cd 含量范围为 0.217~0.366 mg·kg⁻¹,随污泥施用量的增加而显著增加,与 CK 处理相比,增加幅度在 57.2%~165.2%之间;各污泥处理耕层土壤 Pb 含量相比 CK 也显著增加,含量范围是 17.7~20.9 mg·kg⁻¹,增加幅度为 13%~34%。本试验中连续 4 a 施用污泥后土壤耕层中 Cr、As、Cd、Pb 含量均增加,其中 Cd、Pb 含量增加显著,这与前人研究结果类似^[32]。李琼等^[33]研究发现,连续 5 a 施用污泥显著增加了石灰性土壤 0~20 cm 土层中的 8 种痕量重金属含量,而且 Cd 在土壤中含量增加尤为显著。

从 Cr、As、Cd、Pb 在土壤剖面中的分布来看,连续 4 a 施用污泥后,土壤 15~30 cm 土层中各污泥处理下的 Cr、As、Pb 含量范围分别是 25.6~30.2、8.1~9.7、12.7~15.6 mg·kg⁻¹,均显著低于对照处理;在 60~90 cm 土层中,低污泥用量(15 t·hm⁻²、30 t·hm⁻²)处理下,土壤中 Cr、As、Pb 含

量相比 CK 处理无差异,但在较高污泥用量(45 t·hm⁻²、60 t·hm⁻²)处理下,Cr、As、Pb 含量显著高于 CK。这可能是因为施在表层的污泥堆肥分解后使土壤中的溶解性有机碳(DOC)含量增加,DOC 易溶于水在土壤中向下移动能力很强,同时,它又有很强的络合重金属的能力,它向土壤深层迁移时能够将土壤次表层的重金属溶出并带动其一起向下移动^[34,35],使 15~30 cm 和 30~60 cm 两层土层的铬、铅和砷含量降低,但是在 60~90 cm 土层铬、铅和砷的含量又显著高于 CK,这是因为试验地的黏土层位于 60~90 cm 土层,由于黏土层的阻挡,有机质络合的重金属难以继续向下迁移从而在此层发生积累。Kaschl 等^[31]采用土柱试验研究发现,施用污泥堆肥后,土壤中铜、镍和锌等重金属明显向下淋滤,尤其在石灰性土壤上作用更为突出,大量施用污泥后从土壤剖面淋溶到深层的 Zn、Ni 量增加。本试验中污泥带入的 Cd 主要积累在土壤表层,未观测到向土壤深层迁移,Bergkvist 等^[36]研究发现,施用污泥带入的 Cd 在 41 a 后土壤表层的回收率可达 92%,在 17 cm 深度以内的亚表层回收率可达 7%,表明 Cd 并没有发生迁移。

2.3 小麦籽粒和秸秆中重金属的含量

从表 3 可以看出,连续施用污泥堆肥 4 a 后,小

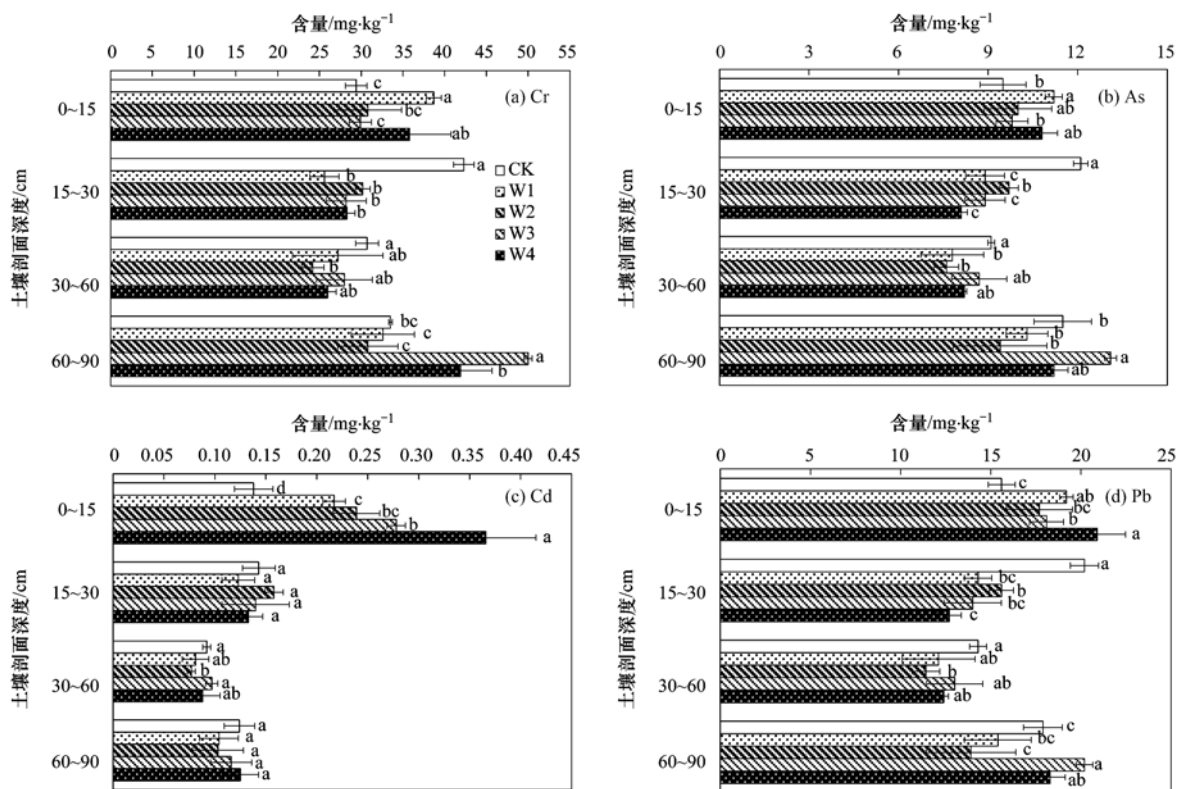


图 3 连续 4 a 施用污泥后土壤剖面中 Cr、As、Cd、Pb 含量分布

Fig. 3 Distribution of Cr, As, Cd, Pb concentrations in soil profile after 4-year sludge application

麦籽粒和秸秆中 Zn 含量随污泥施用量的增加而增加,与 CK 相比,小麦籽粒和秸秆中的 Zn 含量在各污泥用量处理下增加幅度范围分别是 13.3% ~ 47.9% 和 68.3% ~ 217%,60 t·hm⁻² 污泥用量下小麦籽粒和秸秆中 Zn 含量分别达到最大值 73.5 mg·kg⁻¹ 和 39.9 mg·kg⁻¹; 小麦籽粒中 Cd 含量在 45 t·hm⁻² 和 60 t·hm⁻² 污泥用量下相比 CK 也显著增加,这是因为污泥中 Zn 和 Cd 含量和生物有效性高从而显著增加了小麦对其吸收. 有研究也表明,污泥农用时土壤中 Cd 的可交换态会随着污泥的施用量的增加而增加^[37],污泥施用带入大量的有机质,它们能抑制土壤对重金属的吸附,从而提高了重金属的植物有效性^[38, 39]. 从表 3 中还可以看出,连续 4a 施用污泥堆肥后,在 60 t·hm⁻² 污泥用量处理下小麦籽粒中 Pb 含量显著高于 CK 处理,达到 0.642 mg·kg⁻¹,其他处理相比 CK 无显著差异,但 15、30 和 60 t·hm⁻² 污泥用量下小麦籽粒中 Pb 含量均超出国家食品卫生标准(GB 2762-2012),分别超出标准 35.5%、61.0%、221%,这可能是因为污泥施用带入了 Pb,另外有机质分解产生的小分子有机酸也促进了小麦对 Pb 的吸收^[40]. 小麦籽粒中的 Cr 含量在低污泥用量下(15 t·hm⁻²、30 t·hm⁻²)分别

达到 1.38 mg·kg⁻¹、1.45 mg·kg⁻¹,超出标准 38%、45%,在高污泥用量下(45 t·hm⁻²、60 t·hm⁻²)分别为 0.146 mg·kg⁻¹、0.284 mg·kg⁻¹,籽粒 Cr 含量显著高于 CK,造成这种现象的原因可能是由于污泥施用量较低时,污泥在土壤中分解较完全,污泥中铬随污泥分解释放出来被小麦吸收,但高用量污泥堆肥进入土壤后,由于分解不完全,大量有机物存留在土壤中,相比低用量污泥处理促进土壤铬的有效态向有机络合态转化. 李玉会^[41]研究发现,取 23 a 长期不同肥料试验(处理为 CK、NPK、MNPK)的土壤添加外源铬室内培养发现,各土壤中的可交换态铬和碳酸盐结合态铬的含量均先快速后缓慢下降,有机络合态和残渣态铬含量先快速后缓慢上升,有机络合态和残渣态铬含量表现为: MNPK > NPK > CK,高污泥堆肥用量施用可能促进了这个过程,有机络合态铬和残渣态铬不易或不能被小麦吸收利用,从而减少了小麦中铬的含量. 其它重金属在小麦籽粒中的含量在各污泥处理间无明显规律性. 小麦秸秆中 Cu、Cr、As、Cd、Pb 含量范围分别在 3.66 ~ 4.33、3.94 ~ 7.76、0.209 ~ 0.296、0.061 ~ 0.072、2.17 ~ 2.65 mg·kg⁻¹之间,各处理间无显著性差异.

表 3 连续 4 a 施用污泥堆肥后小麦籽粒和秸秆中重金属含量¹⁾/mg·kg⁻¹

Table 3 Heavy metals concentrations in wheat grain and straw after 4-year sewage sludge compost application/mg·kg ⁻¹							
部位	处理	Cu	Zn	Cr	As	Cd	Pb
籽粒	CK	7.06 ± 0.65a	49.70 ± 9.84c	0.81 ± 0.13b	0.014 ± 0.005b	0.011 ± 0.006ab	0.153 ± 0.014bc
	W1	6.06 ± 0.66c	56.27 ± 2.88bc	1.38 ± 0.30a	0.011 ± 0.004bc	0.006 ± 0.000c	0.271 ± 0.056bc
	W2	6.12 ± 0.35bc	60.42 ± 2.31abc	1.45 ± 0.09a	0.010 ± 0.006cd	0.008 ± 0.000bc	0.322 ± 0.190b
	W3	6.51 ± 0.20abc	65.93 ± 7.16ab	0.15 ± 0.14c	0.023 ± 0.000a	0.017 ± 0.003a	0.026 ± 0.015c
	W4	6.78 ± 0.23ab	73.50 ± 9.68a	0.28 ± 0.02c	0.001 ± 0.001d	0.019 ± 0.004a	0.642 ± 0.236a
	GB 2762-2012	—	—	1.0	0.5	0.1	0.2
秸秆	CK	4.19 ± 0.12ab	12.65 ± 6.23c	4.69 ± 0.33a	0.227 ± 0.024ab	0.063 ± 0.001ab	2.39 ± 0.166ab
	W1	3.66 ± 0.23b	21.15 ± 4.18bc	7.76 ± 1.95a	0.296 ± 0.023a	0.067 ± 0.006ab	2.65 ± 0.199a
	W2	3.67 ± 0.12b	23.06 ± 6.01bc	3.94 ± 2.97ab	0.253 ± 0.060ab	0.061 ± 0.004b	2.35 ± 0.168ab
	W3	3.92 ± 0.52ab	29.73 ± 6.94ab	4.27 ± 3.07ab	0.209 ± 0.012b	0.061 ± 0.001b	2.17 ± 0.052b
	W4	4.33 ± 0.39a	39.93 ± 10.45a	4.97 ± 2.94ab	0.246 ± 0.044ab	0.072 ± 0.010a	2.45 ± 0.328ab

1) 同列数值不含相同字母表示 Duncan's 多重比较差异显著(P < 0.05)

2.4 小麦收获对污泥堆肥带入重金属的累计携出量及携出率

将各污泥处理下每一年收获的小麦籽粒和秸秆中重金属含量乘以其各自生物量得到小麦对重金属的携出量,试验 4 a 的数据求和得到连续 4 a 施用污泥小麦对重金属的累计携出量. 从表 4 可以发现,小麦对 Cu、Zn、Cr 的累计携出量较高,最高分别可达到 239.5、2834、246.6 g·hm⁻²,对 As、Cd、Pb 累计携出量相对较低,最高分别可达到 10.3、2.67、

77.5 g·hm⁻²,这是由于本试验的污泥中 Cu、Zn、Cr 含量较高所致. 小麦对 Zn 的 4 a 累计携出量随污泥用量增加而增加,而对其他重金属的累计携出量未呈现出一定规律性. 小麦对于 Cu、Zn 籽粒的累计携出量高于秸秆携出量,但对于 Cr、As、Cd、Pb 则相反. 小麦籽粒和秸秆对各重金属元素的累计携出量大小顺序分别为: Zn > Cu > Cr > Pb > As > Cd、Zn > Cr > Cu > Pb > As > Cd.

以小麦累计携出的重金属量占污泥累计投入重

金属量的百分数来表征小麦收获对重金属的携出率,小麦对各个重金属的累计携出率均随着污泥施用量增加而降低,在 4 个污泥用量处理中,15 t·hm⁻²污泥用量处理下小麦对各个重金属的累计携出率最高,Cu、Zn、Cr、As、Cd、Pb 的累计携出率分别是 9.4%、2.9%、7.8%、5.1%、4.8%、6.1%,在其他污泥用量处理下小麦对各个重金属的累计携

出率均低于 4.9%,这说明作物移出土壤重金属的能力非常有限,不会随污泥用量增加而与之成比例地增加对重金属的移出量,如果在实际生产中将秸秆作还田处理,那么污泥施用带入农田土壤的重金属向外迁移的量就更少,重金属绝大多数还是积累在了土壤中,并存在部分向土壤深层迁移有污染浅层地下水的风险.

表 4 连续 4 a 施用污泥后小麦对重金属的累计携出量和携出率

重金属		处理			
		W1	W2	W3	W4
Cu	籽粒携出量/g·hm ⁻²	142	151	147	151
	秸秆携出量/g·hm ⁻²	86.2	87.3	78.6	88.5
	累计携出率/%	9.4	4.9	3.1	2.5
Zn	籽粒携出量/g·hm ⁻²	1 172	1 415	1 450	1 581
	秸秆携出量/g·hm ⁻²	685	768	1 060	1 253
	累计携出率/%	2.9	1.7	1.3	1.1
Cr	籽粒携出量/g·hm ⁻²	16.6	17.4	10.6	7.68
	秸秆携出量/g·hm ⁻²	202	227	236	210
	累计携出率/%	7.8	4.3	1.7	1.9
As	籽粒携出量/g·hm ⁻²	0.53	1.46	1.47	0.49
	秸秆携出量/g·hm ⁻²	8.80	8.83	8.49	9.02
	累计携出率/%	5.1	2.8	1.8	1.3
Cd	籽粒携出量/g·hm ⁻²	0.46	0.45	0.49	0.49
	秸秆携出量/g·hm ⁻²	1.87	1.99	2.04	2.18
	累计携出率/%	4.8	2.4	1.7	1.3
Pb	籽粒携出量/g·hm ⁻²	6.38	8.74	4.24	7.15
	秸秆携出量/g·hm ⁻²	63.9	68.8	57.5	67.0
	累计携出率/%	6.1	3.3	1.8	1.6

3 结论

(1) 连续 4 a 施用污泥堆肥,耕层土壤(0 ~ 15 cm)中 Cu、Zn、Cd 含量显著增加,污泥施用带入的重金属主要积累在耕层土壤,各污泥处理 Cu 在耕层土壤中的积累率范围是 61.9% ~ 75.3%,Zn 是 77.3% ~ 85.9%;污泥施用带入的重金属也会向深层土壤迁移,本试验条件下,Cu 可迁移至 15 ~ 30 cm 土层,Zn 可迁移至 60 ~ 90 cm 土层.

(2) 连续 4 a 施用污泥堆肥,小麦籽粒中的 Zn、Cd 含量显著增加.小麦籽粒中的 Cu、Zn 含量均大于秸秆,但 Cr、As、Cd、Pb 均为秸秆中含量大于籽粒;各污泥处理下,4 a 小麦收获对 Cu、Zn、Cr、As、Cd、Pb 累计携出率均低于 10%,范围分别是 2.5% ~ 9.4%、1.1% ~ 2.9%、1.9% ~ 7.8%、1.3% ~ 5.1%、1.3% ~ 4.8%、1.6% ~ 6.1%,随污泥施用量增加,作物收获携出重金属比例降低.

参考文献:

[1] Cheng J L, Shi Z, Zhu Y W. Assessment and mapping of environmental quality in agricultural soils of Zhejiang Province, China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2007, 19(1): 50-54.

[2] Zou J M, Dai W, Gong S X, et al. Analysis of spatial variations and sources of heavy metals in farmland soils of Beijing suburbs [J]. PLoS One, 2015, 10(2): e0118082.

[3] 周玲莉, 薛南冬, 杨兵, 等. 黄淮平原农田土壤中重金属的分布和来源[J]. 环境化学, 2013, 32(9): 1706-1713.

Zhou L L, Xue N D, Yang B, et al. Distribution and source of heavy metals in agricultural soils from Huang-Huai Plain [J]. Environmental Chemistry, 2013, 32(9): 1706-1713.

[4] 咏梅, 张漫, 王圣伟, 等. 山东省滨城区农田土壤重金属来源解析及评价[J]. 中国农业大学学报, 2014, 19(6): 119-125.

Yong M, Zhang M, Wang S W, et al. Farmland soil heavy metal source analysis and evaluation in Bincheng county of Shandong province, China [J]. Journal of China Agricultural University, 2014, 19(6): 119-125.

[5] 沈根祥, 谢争, 钱晓雍, 等. 上海市蔬菜农田土壤重金属污染物累积调查分析[J]. 农业环境科学学报, 2006, 25(S1):

- 37-40.
- Shen G X, Xie Z, Qian X Y, *et al.* Investigation and analysis of heavy metal accumulation in the soil of vegetable cropland in Shanghai[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2006, **25** (S1): 37-40.
- [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**(1-3): 205-219.
- [7] 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.
- [8] 董同喜, 杨海雪, 李花粉, 等. 华北农田小麦-玉米轮作体系下土壤重金属积累特征研究[J]. *农业资源与环境学报*, 2014, **31**(4): 355-365.
- Dong T X, Yang H X, Li H F, *et al.* Accumulation characteristics of heavy metals in the soil with wheat-corn rotation system in North China[J]. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, 2014, **31**(4): 355-365.
- [9] Bouriou M, Alaoui-Sehmer L, Laffray X, *et al.* Sewage sludge fertilization in larch seedlings: effects on trace metal accumulation and growth performance [J]. *Ecological Engineering*, 2015, **77**: 216-224.
- [10] Ma W F, Liu F, Cheng X, *et al.* Environmental evaluation of the application of compost sewage sludge to landscaping as soil amendments: a field experiment on the grassland soils in Beijing [J]. *Desalination and Water Treatment*, 2015, **54**(4-5): 1118-1126.
- [11] Walter I, Martínez F, Cala V. Heavy metal speciation and phytotoxic effects of three representative sewage sludges for agricultural uses[J]. *Environmental Pollution*, 2006, **139**(3): 507-514.
- [12] Wu L H, Cheng M M, Li Z, *et al.* Major nutrients, heavy metals and PBDEs in soils after long-term sewage sludge application [J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2012, **12**(4): 531-541.
- [13] 夏增禄, 李森照, 穆从如, 等. 北京地区重金属在土壤中的纵向分布和迁移[J]. *环境科学学报*, 1985, **5**(1): 105-112.
- Xia Z L, Li S Z, Mu C R, *et al.* Vertical distribution and transfer of heavy metals in soils of Beijing[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 1985, **5**(1): 105-112.
- [14] 王国贤, 陈宝林, 任桂萍, 等. 内蒙古东部污灌区土壤重金属迁移规律的研究[J]. *农业环境科学学报*, 2007, **26**(S1): 30-32.
- Wang G X, Chen B L, Ren G P, *et al.* Migration of heavy metals in soils receiving effluent irrigation in eastern Inner-Mongolia[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2007, **26** (S1): 30-32.
- [15] Sloan J J, Dowdy R H, Dolan M S. Recovery of biosolids-applied heavy metals sixteen years after application [J]. *Journal of Environmental Quality*, 1998, **27**(6): 1312-1317.
- [16] 付克强, 王殿武, 李贵宝, 等. 城市污泥与湖泊底泥土地利用对土壤-植物系统中养分及重金属 Cd、Pb 的影响[J]. *水土保持学报*, 2006, **20**(4): 62-66.
- Fu K Q, Wang D W, Li G B, *et al.* Effects of land utilization of municipal sludge and lake sediment on nutrients and heavy metals (Cd, Pb) in soil-plant system[J]. *Journal of Soil and Water Conservation*, 2006, **20**(4): 62-66.
- [17] 陆安祥, 孙江, 王纪华, 等. 北京农田土壤重金属年际变化及其特征分析[J]. *中国农业科学*, 2011, **44**(18): 3778-3789.
- Lu A X, Sun J, Wang J H, *et al.* Annual variability and characteristics analysis of heavy metals in agricultural soil of Beijing[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2011, **44**(18): 3778-3789.
- [18] 孙超, 陈振楼, 毕春娟, 等. 上海市崇明岛农田土壤重金属的环境质量评价[J]. *地理学报*, 2009, **64**(5): 619-628.
- Sun C, Chen Z L, Bi C J, *et al.* Evaluation on environmental quality of heavy metals in agricultural soils of Chongming island, Shanghai[J]. *Acta Geographica Sinica*, 2009, **64**(5): 619-628.
- [19] 陈涛, 常庆瑞, 刘京, 等. 长期污灌农田土壤重金属污染及潜在环境风险评价[J]. *农业环境科学学报*, 2012, **31**(11): 2152-2159.
- Chen T, Chang Q R, Liu J, *et al.* Pollution and potential environment risk assessment of soil heavy metals in sewage irrigation area[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2012, **31**(11): 2152-2159.
- [20] Udom B E, Mbagwu J S C, Adesodun J K, *et al.* Distributions of zinc, copper, cadmium and lead in a tropical ultisol after long-term disposal of sewage sludge[J]. *Environment International*, 2004, **30**(4): 467-470.
- [21] Campbell D J, Beckett P H T. The soil solution in a soil treated with digested sewage sludge[J]. *Journal of Soil Science*, 1988, **39**(2): 283-298.
- [22] 陈秀玲, 张文开, 李明辉, 等. 中国土壤重金属污染研究简述[J]. *云南地理环境研究*, 2009, **21**(6): 8-13.
- Chen X L, Zhang W K, Li M H, *et al.* Brief summarization of study on heavy-metal pollution of soil in China [J]. *Yunnan Geographic Environment Research*, 2009, **21**(6): 8-13.
- [23] Liu S, Wang X D, Lu L L, *et al.* Competitive complexation of copper and zinc by sequentially extracted humic substances from manure compost[J]. *Agricultural Sciences in China*, 2008, **7** (10): 1253-1259.
- [24] Wang X D, Chen X N, Ali A S, *et al.* Dynamics of humic substance-complexed copper and copper leaching during composting of chicken manure[J]. *Pedosphere*, 2010, **20**(2): 245-251.
- [25] 常同举, 崔孝强, 阮震, 等. 长期不同耕作方式对紫色水稻土重金属含量及有效性的影响[J]. *环境科学*, 2014, **35** (6): 2381-2391.
- Chang T J, Cui X Q, Ruan Z, *et al.* Long-term effects of tillage methods on heavy metal accumulation and availability in purple paddy soil[J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(6): 2381-2391.
- [26] Kalbitz K, Wennrich R. Mobilization of heavy metals and arsenic in polluted wetland soils and its dependence on dissolved organic matter[J]. *Science of the Total Environment*, 1998, **209**(1): 27-39.
- [27] Zhou L X, Wong J W C. Effect of dissolved organic matter from sludge and sludge compost on soil copper sorption[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2001, **30**(3): 878-883.
- [28] Toribio M, Romanyà J. Leaching of heavy metals (Cu, Ni and Zn) and organic matter after sewage sludge application to

- Mediterranean forest soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, **363**(1-3): 11-21.
- [29] Zhao L Y L, Schulin R, Weng L P, *et al.* Coupled mobilization of dissolved organic matter and metals (Cu and Zn) in soil columns[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2007, **71**(14): 3407-3418.
- [30] 卢信, 赵炳梓, 张佳宝, 等. 不同可溶性有机碳对铜在土壤中迁移的影响[J]. *土壤学报*, 2007, **44**(3): 418-424.
- Lu X, Zhao B Z, Zhang J B, *et al.* Mobility of Cu in soils in relation to dissolved organic carbon (DOC)[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2007, **44**(3): 418-424.
- [31] Kaschl A, Römheld V, Chen Y. The influence of soluble organic matter from municipal solid waste compost on trace metal leaching in calcareous soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2002, **291**(1-3): 45-77.
- [32] 王社平, 程晓波, 姚岚, 等. 施用城市污泥堆肥对土壤和青椒重金属积累的影响[J]. *农业环境科学学报*, 2015, **34**(9): 1829-1836.
- Wang S P, Cheng X B, Yao L, *et al.* Effects of sewage sludge compost application on heavy metal accumulation in soil and green pepper[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2015, **34**(9): 1829-1836.
- [33] 李琼, 徐兴华, 左余宝, 等. 污泥农用对痕量元素在小麦-玉米轮作体系中的积累及转运的影响[J]. *农业环境科学学报*, 2009, **28**(10): 2042-2049.
- Li Q, Xu X H, Zuo Y B, *et al.* Effects of biosolid on the accumulation and transfer of trace elements in soil-wheat/maize system[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2009, **28**(10): 2042-2049.
- [34] 单玉华, 李昌贵, 陈晨, 等. 施用秸秆对淹水土壤镉、铜溶出的影响[J]. *生态学杂志*, 2008, **27**(8): 1362-1366.
- Shan Y H, Li C G, Chen C, *et al.* Effects of straw incorporation on the solubility of cadmium and copper in flooded soil[J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2008, **27**(8): 1362-1366.
- [35] Cambier P, Pot V, Mercier V, *et al.* Impact of long-term organic residue recycling in agriculture on soil solution composition and trace metal leaching in soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **499**: 560-573.
- [36] Bergkvist P, Jarvis N, Berggren D, *et al.* Long-term effects of sewage sludge applications on soil properties, cadmium availability and distribution in arable soil[J]. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2003, **97**(1-3): 167-179.
- [37] 宋琳琳, 铁梅, 张朝红, 等. 施用污泥对土壤重金属形态分布和生物有效性的影响[J]. *应用生态学报*, 2012, **23**(10): 2701-2707.
- Song L L, Tie M, Zhang C H, *et al.* Effects of applying sewage sludge on chemical form distribution and bioavailability of heavy metals in soil[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2012, **23**(10): 2701-2707.
- [38] Harter R D, Naidu R. Role of metal-organic complexation in metal sorption by soils[J]. *Advances in Agronomy*, 1995, **55**: 219-263.
- [39] Antoniadis V, Alloway B J. The role of dissolved organic carbon in the mobility of Cd, Ni and Zn in sewage sludge-amended soils[J]. *Environmental Pollution*, 2002, **117**(3): 515-521.
- [40] Wang H H, Shan X Q, Liu T, *et al.* Organic acids enhance the uptake of lead by wheat roots[J]. *Planta*, 2007, **225**(6): 1483-1494.
- [41] 李玉会. 外源 Cr(Ⅲ)在长期不同施肥土壤中的形态转化及作物吸收[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2014.
- Li Y H. Chromium fractions transformation of exogenous chromium(Ⅲ) in long-term fertilization manuralloess soil and crop absorption of chromium[D]. Yangling: Northwest A&F University, 2014.

CONTENTS

Atmospheric Dry Deposition Fluxes and Seasonal Variations of Particulate Matter and Lead in Urban Beijing	YAO Li, LIU Jin, PAN Yue-peng, <i>et al.</i> (423)
Pollution Characteristics of Heavy Metals in PM _{2.5} and Their Human Health Risks Among the Coastal City Group Along Western Taiwan Straits Region, China	CHEN Yan-ting, DU Wen-jiao, CHEN Jin-sheng, <i>et al.</i> (429)
Correlation of Speciated Mercury with Carbonaceous Components in Atmospheric PM _{2.5} in Shengsi Region	CHENG Na, QIAN Guan-lei, DUAN Lian, <i>et al.</i> (438)
Compositions and Sources of Summertime Dicarboxylic Acids and Related SOA in PM _{2.5} from Mt. Taishan	MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, LIU Xiao-di, <i>et al.</i> (445)
Variation Characteristics and Health Risk Assessment of BTEX in the Atmosphere of Northern Suburb of Nanjing	ZHANG Yu-xin, AN Jun-lin, WANG Jian-yu, <i>et al.</i> (453)
Inventory and Environmental Impact of VOCs Emission from Anthropogenic Source in Chang-Zhu-Tan Region	YOU Xiang-yu, LUO Da-tong, LIU Zhan, <i>et al.</i> (461)
Characteristics of Methane Emission from Urban Traffic in Nanjing	ZHANG Xue, HU Ning, LIU Shou-dong, <i>et al.</i> (469)
Variations in Aerosol Optical Depth over Three Northeastern Provinces of China, in 2003-2014	ZHANG Chen-he, ZHAO Tian-liang, WANG Fu, <i>et al.</i> (476)
Variation Analysis of Daily PM _{2.5} Concentrations Based on Boosted Regression Tree: A Case Study in Changzhou	GE Yue, WANG Ming-xin, SUN Xiang-wu, <i>et al.</i> (485)
Characteristics of Mercury Emissions from Coal-fired Power Plants in Chongqing	ZHANG Cheng, ZHANG Ya-hui, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (495)
Possible Sources of PCDD/Fs in Atmosphere of a Certain District in Guangdong	FU Jian-ping, HAN Jing-lei, YU Xiao-wei, <i>et al.</i> (502)
Sources and Pollution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Conditional Pathogenic Bacteria in Concentrated Poultry Feeding Operations	GAO Min, QIU Tian-lei, QIN Yu-cheng, <i>et al.</i> (510)
Distribution and Burial Characteristics of Nitrogen Forms in Sediment of Dianchi Lake During Last Century	WU Ya-lin, LI Shuai-dong, JIANG Jun-wu, <i>et al.</i> (517)
Temporal and Spatial Variations of Dissolved Inorganic Carbon and Its Stable Isotopic Composition in the Surface Stream of Karst Groundwater Recharge	LI Li, PU Jun-bing, LI Jian-hong, <i>et al.</i> (527)
Succession Pattern of Phytoplankton of Daning River in the Three Gorges Reservoir and Its Driving Factors	ZHANG Jia-lei, ZHENG Bing-hui, LIU De-fu, <i>et al.</i> (535)
Response of the Water Quality of a Stratified Reservoir to an Extreme El Niño Event During Summer	QIU Xiao-peng, HUANG Ting-lin, ZENG Ming-zheng, <i>et al.</i> (547)
Effect of Coupling Process of Wetting-Drying Cycles and Seasonal Temperature Increasing on Sediment Nitrogen Minerization in the Water Level Fluctuating Zone	LIN Jun-jie, LIU Dan, ZHANG Shuai, <i>et al.</i> (555)
Photo-induced Phosphate Release from Organic Phosphorus Decomposition Driven by Fe(III)-oxalate Complex in Lake Water	JIANG Yong-can, PENG Yun-xiao, LIU Guang-long, <i>et al.</i> (563)
Preparation and Phosphorus Removal Mechanism of Highly Efficient Phosphorus Adsorbent Mg/Al-LDO	WANG Wei-dong, HAO Rui-xia, ZHANG Xiao-xian, <i>et al.</i> (572)
Efficiency and Mechanism of Nitrogen and Phosphorus Removal in Modified Zeolite Wetland	WU Peng, LU Shuang-jun, XU Le-zhong, <i>et al.</i> (580)
Repression of Nitrogen and Phosphorus Release from Lakeshore Sediment by Five Littoral-zone Plants	YAO Cheng, HU Xiao-zhen, LU Shao-yong, <i>et al.</i> (589)
Simulated Desorption Kinetics of Lead by the Dominant Plant Roots Released Low Molecular Weight Organic Acids from the Water-Level-Fluctuating Zone in the Three Gorges Reservoir	HE Yuan-jie, LIU Jiang, JIANG Tao, <i>et al.</i> (600)
Experimental Research of Hg ²⁺ Removal by TiO ₂ /Bentonite Composite	TANG Xing-ping, ZHOU Xiong, ZHANG Jin-yang, <i>et al.</i> (608)
Impact of Ammonia and H ₂ O ₂ on Bromate and Disinfection By-products Control	WANG Yong-jing, DU Xu, JIN Meng, <i>et al.</i> (616)
Influencing Factors of Bacterial Activity in Water Distribution Networks	WANG Xiao-dan, ZHAO Xin-hua, <i>et al.</i> (622)
Adsorptive Remediation of Cr(VI) Contaminated Groundwater with Chemically Synthesized Schwertmannite	ZHU Li-chao, LIU Yuan-yuan, LI Wei-min, <i>et al.</i> (629)
Characteristics and Mechanism of Hybrid Ozonation-Coagulation Process in Wastewater Reclamation	HOU Rui, JIN Xin, JIN Peng-kang, <i>et al.</i> (640)
Nitrogen Removal Effect and Conversion Characteristics of Nitrous Oxide in Single-stage and Multi-stage A/O Processes	GUO Chang-zi, ZHANG Feng-yan, LIU Fu-yu, <i>et al.</i> (647)
Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX with Different Organic Carbon Sources	GUAN Yong-jie, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (654)
Operational Performance and Microbial Community Structure in a Completely Mixed Aeration System	WANG Shuo, XU Qiao, ZHANG Guang-sheng, <i>et al.</i> (665)
Start-up of Combined Floc-granule CANON Process and the Effects of SRT on Reactor Performance	SUN Yan-fang, HAN Xiao-yu, ZHANG Shun-jun, <i>et al.</i> (672)
Effects of Free Ammonia Regulation on the Performance of High Solid Anaerobic Digesters with Dewatered Sludge	DAI Xiao-hu, HE Jin, YAN Han, <i>et al.</i> (679)
Highly Efficient Bioflocculation of Microalgae Using <i>Mucor circinelloides</i>	GU Qiong, JIN Wen-biao, CHEN Yuan-qing, <i>et al.</i> (688)
Effect of Zero Valent Iron on the Decline of Tetracycline Resistance Genes and Class 1 Integrons During Thermophilic Anaerobic Digestion of Sludge	WEI Xin, XUE Shun-li, YANG Fan, <i>et al.</i> (697)
Concentration, Sources and Ecological Risks of PAHs of Different Land Use Types in Shenfu New City	WANG Jing, LIU Ming-li, ZHANG Shi-chao, <i>et al.</i> (703)
Compositions, Sources and Health Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Surface Dusts from Driving-schools in a City of Henan Province, China	CHEN Yi-nan, MA Jian-hua, DUAN Hai-jing, <i>et al.</i> (711)
Remediation of Decabromodiphenyl Ether Contaminated Sediment Through Plant Roots Enhanced by Exogenous Microbes	YANG Lei-feng, YIN Hua, PENG Hui, <i>et al.</i> (721)
Impacts of Bioremediation on Microbial Communities and Different Forms of Nitrogen in Petroleum Contaminated Soil	YE Xi-qiong, WU Man-li, CHEN Kai-li, <i>et al.</i> (728)
Effects of <i>Rhodopseudomonas palustris</i> PSB06 on Pepper Rhizosphere Microbial Community Structure	LUO Lu-yun, JIN De-cai, ZUO Hui, <i>et al.</i> (735)
Effect of Reclaimed Water on Bacterial Community Composition and Function in Urban River Sediment	DI Yan-ming, WANG Guang-xuan, HUANG Xing-ru, <i>et al.</i> (743)
Effects of Different Vegetation Types and Reclamation Years on Soil Bacterial Community Structure in Reclaimed Mine Areas	HE Long, LI Yan-qin, LI Bin-chun, <i>et al.</i> (752)
Characteristic of Abundances and Diversity of Carbon Dioxide Fixation Microbes in Paddy Soils	LIU Qiong, WEI Xiao-meng, WU Xiao-hong, <i>et al.</i> (760)
Effects of Biochar Pyrolyzed at Varying Temperatures on Soil Organic Carbon and Its Components: Influence on the Composition and Properties of Humic Substances	ZHAO Shi-xiang, YU Xiao-ling, LI Zhong-hui, <i>et al.</i> (769)
Straw Composts with Composite Inoculants and Their Effects on Soil Carbon and Nitrogen Contents and Enzyme Activity	NIE Wen-han, QI Zhi-ping, FENG Hai-wei, <i>et al.</i> (783)
Comparative Analysis on Effect of Wheat Straw and Its Biochar Amendment on Net Global Warming Potential Under Wheat-Maize Rotation Ecosystem in the Guanzhong Plain	CHENG Gong, CHEN Jing, LIU Jing-jing, <i>et al.</i> (792)
Isolation and Identification of a Chlorobenzene-degrading Bacterium and Its Degradation Characteristics	YE Jie-xu, LIN Tong-hui, LUO Yu-hao, <i>et al.</i> (802)
Isolation, Identification and Metabolic Characteristics of a Heterotrophic Denitrifying Sulfur Bacterial Strain	TAN Wen-bo, MA Xiao-dan, HUANG Cong, <i>et al.</i> (809)
Effects of Continuous Application of Sewage Sludge Compost on Heavy Metals Accumulation and Mobility Characteristics in Soil Profile and on Heavy Metals Uptake of Wheat	SUN Na, SHANG He-ping, RU Shu-hua, <i>et al.</i> (815)
Effects of Nitrogen Application on Selenium Uptake, Translocation and Distribution in Winter Wheat	CHEN Yu-peng, PENG Qin, LIANG Dong-li, <i>et al.</i> (825)
Accumulation and Biotransformation in Typical Freshwater Algae Species Influenced by Titanium Dioxide Nanoparticles Under Long-term Exposure	LI Jin-li, WANG Zhen-hong, YAN Ya-meng, <i>et al.</i> (832)
Sorption of <i>p</i> -Nitrophenol by Biochars of Corn cob Prepared at Different Pyrolysis Temperatures	MA Feng-feng, ZHAO Bao-wei, <i>et al.</i> (837)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2017年2月15日 第38卷 第2期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 38 No. 2 Feb. 15, 2017

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees.ac.cn http://www.hjkx.ac.cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees.ac.cn http://www.hjkx.ac.cn
出 版	科学出版社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京宝昌彩色印刷有限公司	Printed	by	Beijing Baochang Color Printing Co., Ltd.
发 行	科学出版社 电话:010-64017032 E-mail: journal@mail.sciencep.com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@mail.sciencep.com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易集团有限公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 140.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人

ISSN 0250-3301



9 770250 330172