

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第6期

Vol.39 No.6

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

北京市二次有机气溶胶生成潜势的日变化规律 刘俊, 楚碧武, 贺泓 (2505)

太原冬季 PM_{2.5} 影响霾污染的关键尺度谱特征 杨素英, 余欣洋, 赵秀勇, 李义宇, 孙洪娉, 田芷洁, 李岩, 吴尚, 王梓航 (2512)

盘锦市冬季 PM_{2.5} 水溶性离子特征及来源分析 张蕾, 姬亚芹, 王士宝, 赵静琦, 张军, 李越洋, 张伟 (2521)

广州市天河区 2016 年雨季挥发性有机物污染特征及来源解析 古颖纲, 虞小芳, 杨闻达, 田智林, 李梅, 程鹏 (2528)

热带树木燃烧颗粒物中脱水糖和醋非烯的排放特征 金诚妙, 崔敏, 韩勇, 陈颖军, 唐娇, 李军, 张干 (2538)

天津地区污染天气分析中垂直扩散指标构建及运用 蔡子颖, 韩素芹, 张敏, 姚青, 刘敬勇 (2548)

亚热带农田和林地大气氨湿沉降与混合沉降比较 朱潇, 王杰飞, 沈健林, 肖润林, 王娟, 吴金水, 李勇 (2557)

京津冀地区黄标车政策的总量减排效益评估 卢亚灵, 周佳, 程曦, 张伟, 蒋洪强 (2566)

北京北运河河流生态系统健康评价 顾晓昀, 徐宗学, 刘麟菲, 殷旭旺, 王汨 (2576)

长江武汉段丰水期水体和沉积物中多环芳烃及邻苯二甲酸酯类有机污染物污染特征及来源分析 董磊, 汤显强, 林莉, 邴超, 黎睿, 吴敏 (2588)

福建省敖江下游抗生素抗性基因分布特征 张丹丹, 郭亚平, 任红云, 周昕原, 黄福义, 张娴 (2600)

三峡库区支流河口沉积物重金属分布特征及风险评价 方志青, 陈秋禹, 尹德良, 王志康, 孙涛, 王永敏, 谢德体, 王定勇 (2607)

三峡水库蓄水至 175 m 后干流沉积物理化性质与磷形态分布特征 潘婵娟, 黎睿, 汤显强, 夏振尧, 李青云, 杨文俊, 许文年 (2615)

基于水化学和稳定同位素的白洋淀流域地表水和地下水硝酸盐来源 孔晓乐, 王仕琴, 丁飞, 梁慧雅 (2624)

天目湖沙河水库热分层变化及其对水质的影响 孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽, 李恒鹏, 李慧贇 (2632)

重庆雪玉洞洞穴滴水水文地球化学时空变化特征及其环境意义 曾泽, 蒋勇军, 吕现福, 曾思博, 胡刘焯, 雷佳琪 (2641)

岩溶地表河旱季有色溶解有机质组成及来源: 以金佛山碧潭河为例 刘跃, 贺秋芳, 刘宁坤, 刘九程, 王正雄, 段世辉 (2651)

托来河流域不同海拔降水稳定同位素的环境意义 李永格, 李宗省, 冯起, 肖莲柱, 吕越敏, 桂娟, 袁瑞丰, 张百娟 (2661)

五里峡水库初级生产力对水气界面二氧化碳和甲烷排放速率时空变化的影响 彭文杰, 李强, 宋昂, 靳振江 (2673)

西南山区典型河道型水库藻类功能群时空演替特征及其影响因素: 以紫坪铺水库为例 张耀文, 李洪, 李嘉, 宋洋, 张陵蕾, 李永, 蒲迅赤, 黄文典 (2680)

四明湖水库浮游植物功能类群的季节演替及其影响因子 郑诚, 陆开宏, 徐镇, 郑志明, 朱津永 (2688)

营养盐添加对水华蓝藻——卵孢金胞藻生长和竞争影响的原位实验 王梦梦, 张玮, 张军毅, 尚光霞, 杜彩丽, 王丽卿 (2698)

植物配置与进水碳氮比对沉水植物塘水质净化效果的影响 刘森, 陈开宁 (2706)

江汉平原水稻灌排单元沟渠中氮磷变化特征及其环境风险 华玲玲, 张富林, 翟丽梅, 刘宏斌, 范先鹏, 王洪霞 (2715)

冀西北典型北方小城镇污水处理厂中抗生素的分布和去除 柴玉峰, 张玉秀, 陈梅雪, 王瑞, 柳蒙蒙, 郑嘉熹, 魏源送 (2724)

臭氧-粉末炭联用作为预处理缓解膜污染的效果与机制 董秉直, 高昊旸, 胡孟柳 (2732)

中试 SAD-ASBR 系统处理含盐废水的启动与工艺特性 于德爽, 唐佳佳, 张军, 王晓霞, 赵红, 韩长民, 孙捷 (2740)

海藻酸钙/聚 N-异丙基丙烯酰胺半互穿网络凝胶球的除磷性能 曾学阳, 骆华勇, 张耀坤, 荣宏伟, 曾子君, 钟广汇 (2748)

玉米淀粉废水短程硝化快速启动及其稳定性 龙北生, 刘迅雷, 刘红波, 杨靖新, 袁树森 (2756)

硝化细菌的培养及包埋固定化中试 杨宏, 胡银龙 (2763)

不同运行策略下厌氧氨氧化的脱氮性能 安芳娇, 彭永臻, 董志龙, 邵兆伟, 赵智超, 黄剑明, 陈永志 (2770)

高含固污泥厌氧消化中蛋白质转化规律 詹瑜, 施万胜, 赵明星, 许之扬, 阮文权, 宋联, 朱葛 (2778)

污泥富磷堆肥前后重金属赋存形态及释放能力变化 李玉, 方文, 祁光霞, 魏勇红, 刘建国, 李润东 (2786)

丝状菌污泥膨胀对脱氮除磷功能菌群的影响 高晨晨, 游佳, 陈轶, 郑兴灿, 尚巍, 张文安 (2794)

同步去除并富集磷酸盐生物膜驯化过程中微生物种群分析 孟璇, 潘杨, 章豪, 廖恒弘, 徐林建, 冯鑫, 单捷 (2802)

四环素对人粪便好氧堆肥过程及微生物群落演替的影响 时红蕾, 王晓昌, 李倩, 刘源 (2810)

长期定位有机物料还田对关中平原夏玉米-冬小麦轮作土壤 NO 排放的影响 袁梦轩, 王晋峰, 谭跃慧, 魏静, 杨学云, 顾江新 (2819)

菌渣还田量对紫色水稻土净温室气体排放的影响 祁乐, 高明, 周鹏, 王富华, 高泳钦, 陈仕奇, 吴思琪, 邓静霖, 文婷 (2827)

¹³C 脉冲标记法定量冬小麦光合碳分配及其向地下的输入 孙昭安, 陈清, 韩笑, 吴文良, 孟凡乔 (2837)

西南喀斯特区植被恢复对土壤氮素转化通路的影响 杨怡, 欧阳运东, 陈浩, 肖孔操, 李德军 (2845)

江苏海岸带土壤重金属来源解析及空间分布 吕建树, 何华春 (2853)

黄河下游典型区域土壤重金属来源解析及空间分布 于元赫, 吕建树, 王亚梦 (2865)

典型小城市土壤重金属空间异质性及风险评价: 以临安市为例 郑晴之, 王楚栋, 王诗涵, 林子也, 赵科理, 吴东涛, 傅伟军 (2875)

西南某铅锌矿区农田土壤重金属空间主成分分析及生态风险评价 周艳, 陈楠, 邓绍坡, 王金忠, 张胜田, 龙涛, 李群, 林玉锁, 吴运金 (2884)

典型山核桃产区土壤重金属空间异质性及风险评价 张红桔, 赵科理, 叶正钱, 许斌, 赵伟明, 顾晓波, 张华锋 (2893)

生物炭添加对湿地植物生长及氧化应激响应的影响 黄磊, 陈玉成, 赵亚琦, 肖广全, 杨志敏 (2904)

厌氧条件水稻土铁对砷释放的影响 王欣, 钟松雄, 陈志良, 何宏飞, 董家华, 陈晓丽 (2911)

矿业活动影响区稻田土壤和稻米中重金属含量及健康风险 田美玲, 钟雪梅, 张云霞, 余元元, 庞瑞, 周浪, 宋波 (2919)

硅酸钙和生物腐殖肥复配对葱生长和镉吸收的影响 刘德玲, 尹光彩, 陈志良, 林亲铁, 刘千钧, 钟松雄, 黄玲, 张建强 (2927)

吉林四平设施土壤和蔬菜中重金属的累积特征 李莲芳, 朱昌雄, 曾希柏, 李红娜, 叶婧, 李峰, 吴翠霞 (2936)

喷施锌肥对油菜镉生物可给性的影响 王林, 谷朋磊, 李然, 徐应明, 孙约兵, 梁学峰, 代晶晶 (2944)

贵州草海底栖动物汞分布及其对沉积物汞的响应特征 许议元, 曾玲霞, 何天容, 陈梦瑜, 钱晓莉, 李振吉 (2953)

废旧轮胎翻新过程中多环芳烃排放及健康风险 付建平, 赵波, 黎玉清, 刘沙沙, 尹文华, 黄锦琼, 周长风, 张素坤, 贺德春, 韩静磊 (2963)

县级尺度的重庆市碳排放时空格局动态 孙秀峰, 施开放, 吴健平 (2971)

颗粒尺寸对纳米氧化物环境行为的影响 严玉鹏, 唐亚东, 万彪, 王小明, 刘凡, 冯雄汉 (2982)

防晒剂的海洋环境行为与生物毒性 朱小山, 黄静颖, 吕小慧, 杜永芬, 蔡中华 (2991)

《环境科学》征订启事 (2527) 《环境科学》征稿简则 (2723) 信息 (2826, 2852, 2910)

吉林四平设施土壤和蔬菜中重金属的累积特征

李莲芳, 朱昌雄, 曾希柏, 李红娜, 叶婧, 李峰, 吴翠霞

(中国农业科学院农业环境与可持续发展研究所, 农业部农业环境重点实验室, 北京 100081)

摘要: 选取吉林四平市典型设施蔬菜生产系统为研究对象, 采集不同土地利用方式下的设施菜地、玉米地和森林土壤样本 124 份进行比较分析, 同步采集设施蔬菜(81 份)、肥料(50 份)及灌溉水样品(10 份), 利用电感耦合等离子体质谱技术检测重金属含量, 以揭示设施土壤及相应蔬菜中重金属的累积特征. 结果表明, 研究区域设施菜地中除铅(Pb)以外的重金属元素含量显著高于玉米地和林地, 设施土壤重金属镉(Cd)、铜(Cu)、铬(Cr)、镍(Ni)、锌(Zn)均出现了不同程度的累积, 研究区域不同类型土壤 Cd 平均含量为 $0.45 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 约 42.8% 的样本 Cd 超过温室蔬菜产地环境质量评价标准(HJ 333-2006), 其他重金属均未出现超标现象; 不同类型蔬菜比较, 叶菜类 Cd 含量(以鲜重计)为 $0.033 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 明显高于果菜类, 2.5% 的蔬菜 Cd 超标, 1.2% 蔬菜存在 Pb 超标, 其他重金属均未出现超标现象; 随着设施利用年限的增加, 土壤酸化愈加明显, 设施土壤和蔬菜中重金属呈同步累积趋势; 设施蔬菜重金属含量受土壤 pH、有机质的显著影响; 含高量重金属有机肥和化肥的大量施用是设施土壤重金属累积及设施蔬菜风险增加的重要原因.

关键词: 设施土壤; 蔬菜; 重金属; 累积; 肥料

中图分类号: X171.5; X53 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)06-2936-08 DOI: 10.13227/j.hjks.201710154

Accumulation Characteristics of Heavy Metals in Greenhouse Soil and Vegetables in Siping City, Jilin Province

LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, ZENG Xi-bai, LI Hong-na, YE Jing, LI Feng, WU Cui-xia

(Key Laboratory of Agro-Environment, Ministry of Agriculture, Institute of Environment and Sustainable Development in Agriculture, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China)

Abstract: Based on the typical greenhouse vegetable production system in Siping City, Jilin Province, 124 soil samples were collected from greenhouse soils growing vegetables (GSGV), fields growing maize (FGM), and forest soil (FS) under different land utilization patterns. In addition, other samples including greenhouse vegetables (81), fertilizers (50), and irrigation water (10) were also collected in the studied region. To illustrate the accumulation characteristics of heavy metals in GSGV and greenhouse vegetables, the heavy metal content of different samples was measured using inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) technology. The results indicated that the heavy metal content in GSGV was much higher than that in FGM and FS except for lead (Pb). Heavy metals including cadmium (Cd), copper (Cu), chromium (Cr), nickel (Ni), and zinc (Zn) in GSGV presented with various degrees of accumulation. The mean value of Cd content in the soils in the investigation region was $0.45 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, with about 42.8% of all the soil samples exceeding the Cd content criterion of the Environmental Quality Evaluation Standard for Farmland in Greenhouse Vegetable Production (HJ 333-2006). The content of the other heavy metals was in the normal range, and all met the regulations of the standard. In comparison with different vegetable categories, leafy vegetables showed much higher heavy metal concentrations (Cd $0.033 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ fresh weight) than did fruity ones. In total, about 2.5% and 1.2% of vegetable samples exceeded the regulated values of Cd and Pb recommended by the Standard of Food limits, respectively. With the cultivation time prolonged, heavy metal concentration in soils and vegetables all increased synchronously as the pH value decreased. The content of heavy metals in greenhouse vegetables was significantly influenced by soil pH and organic matter. It can be concluded that the health risk of greenhouse vegetables increased with GSGV accumulating more heavy metals due to the substantial application of chemical fertilizer and manure containing high level of heavy metals.

Key words: greenhouse soil; vegetable; heavy metal; accumulation; manure

设施土壤是指长期设施栽培条件下耕种的农业土壤, 其以发展高技术、高投入、高产出的高度集约化设施农业为重要特征. 我国设施蔬菜产业的发展开始于 20 世纪 70 年代末, 2010 年设施蔬菜播种面积达 467 万 hm^2 , 分别占我国设施栽培面积的 95% 和世界设施园艺面积的 80%, 当前设施蔬菜的总产量超过 1.7 亿 t, 占蔬菜总产量的 25%^[1,2], 仅

东北地区就存在 86.7 万 hm^2 设施栽培农业^[3], 蔬菜种植成为当地设施农业的主要生产方式. 然而, 随着设施利用年限的增加, 由于长期覆盖栽培、高

收稿日期: 2017-10-20; 修订日期: 2017-11-20

基金项目: 国家“十二五”科技支撑计划项目(2015BAD05B01); 国家基础性工作专项(2015FY11130)

作者简介: 李莲芳(1975~), 女, 博士, 研究员, 主要研究方向为农业环境演化与生态修复, E-mail: lilianfang@caas.cn

投入、高复种指数以及设施环境内水、热失衡等原因,引发了一系列环境问题^[4],成为设施蔬菜产业发展的重要瓶颈。

近年来,设施菜地重金属的累积风险日益引起业内人士关注.一些研究表明设施土壤尽管未出现大范围重金属超标现象^[5],但与受人类活动干扰较少的林地比较,重金属逐年累积的现象明显^[6~8].以往关于农田生产系统及土壤作物体系重金属的研究多关注矿区^[9,10]、污灌区及普通农田生产系统^[11,12],在设施土壤环境风险评估方面亦有涉及^[13~15],Tian 等的^[14]研究发现日光温室和塑料大棚土壤中重金属 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 均出现了明显累积,并认为除 Pb 外的重金属累积均与集约化种植密切相关,Fan 等^[15]发现叶菜、果菜和茎类这 3 种类型设施蔬菜因 Cr、Ni 及 Pb 含量超标且存在健康风险.亦有学者开始关注设施土壤污染修复问题^[16],但总体而言,对设施菜地土壤作物系统中重金属累积规律及其潜在机制关注较少.鉴于当前对设施菜地重金属累积及其与农产品安全关系的研究并不多见,尤其是设施蔬菜吸收重金属的规律及其风险不甚明确的前提下,本文以东北地区吉林省四平市设施蔬菜生产系统为对象,开展设施土壤-蔬菜体系中重金属累积特征的研究,探讨设施土壤及蔬菜累积重金属的规律,明确重金属在设施土壤蔬菜系统中的响应关系,揭示相应的影响因素,以期为设施蔬菜重金属风险防控及保障农产品安全提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于吉林省中南部,地理位置为 123°18'20"~125°46'30"E,42°49'30"~44°9'20"N,全市土地面积 143.9 × 10⁴ hm²,其中耕地 76.1 × 10⁴ hm²,是吉林省主要商品粮基地之一.本研究选取四平市设施菜地面积较大的公主岭、梨树县及四平郊区为典型区域,其主要土壤类型为黑土.通过田间调查发现,当地设施菜地施用的有机肥主要为猪粪、鸡粪、牛粪、马粪等,无机肥主要为尿素、二胺、复合肥等,化肥的平均施用量为 2.41 t·hm⁻²,最高施用量为 8.33 t·hm⁻²,有机肥每年的平均用量为 114.6 t·hm⁻²,最高用量达 500 t·hm⁻²,为玉米地的 3~20 倍,普通玉米地基本不施有机肥.设施菜地的利用年限为 1~30 a 不等,当季种植的作物主要为黄瓜、西红柿、豆角、辣椒、芹菜等。

1.2 样品采集

根据研究区域的农业土地利用方式,分别采集了不同年限设施菜地样 81 个、玉米地样本 33 个、人为活动较小的林地土壤样本 10 个,共 124 个样本.采样时,每个采样点针对各地块用梅花 5 点法采集 5 处土壤,制成 1 kg 一个混合样品,采样深度为耕作层 20 cm,每个样点用 GPS 定位.作物样本与土壤样本对应同步采集,共采集作物样品 81 个(包括叶菜类 6 个、荚果类 29 个、瓠果类 21 个、茄果类 25 个).将采集的蔬菜样本先用清洗剂清洗,再用去离子水冲洗,待水分晾干后称鲜重以测定蔬菜含水量,105℃杀青,70℃烘干,研磨备用.土壤样品在室内风干后,去除石块、植物根茎等杂物,用木棍研磨过 2 mm 尼龙筛,然后用玛瑙研钵研磨过 0.3 mm、0.149 mm 筛,供土壤 pH、有机质、重金属全量的分析.无机肥和有机肥主要采自当地设施蔬菜生产农户家中及其田间地头农户未用完而剩余的农用物资,其中猪粪 4 份、鸡粪 3 份、牛羊粪 3 份、复合(混)肥 35 份、氮肥 5 份,其中,含采集当地农资专卖店的复合(混)肥样本 10 份,这些肥料均是设施菜地土壤中正在使用或使用过的肥料.灌溉水样 10 份主要采自研究区内地下水。

1.3 分析方法

土样样本分析:土壤和化学肥料中重金属全量采用硝酸-高氯酸-氢氟酸消化,电感耦合等离子体质谱 ICP-MS(PQ-ExCell, TJA Solutions USA)测定待测液中的重金属元素含量.作物和风干有机肥重金属采用硝酸-高氯酸消化,ICP-MS 法测定,水样重金属含量采用 ICP-MS 法测定,土壤基本性质的分析见参考文献[17].分析过程所用试剂均为优级纯,所用的水均为超纯水.土壤和植物样品分析过程中,分别加入土壤标准物质 GBW07458(ASA-7)和蔬菜标准物质 GBW10014(GSB-5)及试剂空白进行全程质量控制,结果显示,土壤中重金属的回收率为 89.7%~100.3%,植物中所有重金属回收率在 86.4%~105.9%之间,样品分析过程满足质量控制要求。

1.4 数据处理

土壤、作物中重金属含量的描述性统计、显著性分析、相关性分析均采用 Microsoft SPSS 17.0 软件完成,区域采样点位置图采用 ArcGIS 10.0 软件绘制(见图 1),其他数据的分析通过 Excel 2010 执行。

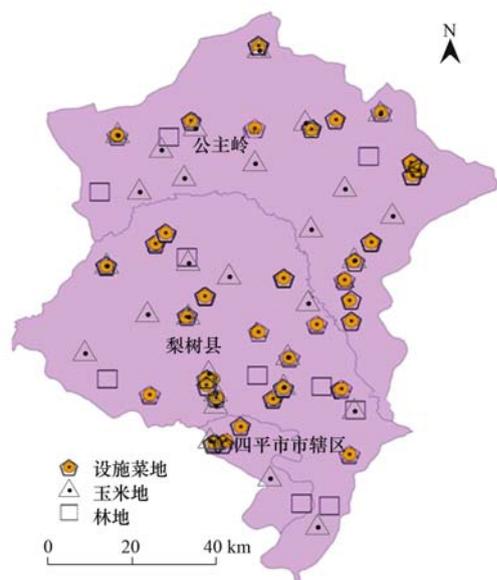


图1 取样点的分布示意

Fig. 1 Location of soil samples

表1 研究区土壤基本性质及重金属含量描述性统计($n=124$)Table 1 Descriptive statistics for soil properties and heavy metal contents in the study area ($n=124$)

项目	pH	有机质 / $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	Cd / $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	Cr / $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	Cu / $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	Ni / $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	Pb / $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	Zn / $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$
平均值	6.18	27.99	0.45	47.18	26.84	21.14	15.38	74.94
标准差	0.95	11.61	0.53	15.55	15.45	5.63	4.03	28.63
偏度	0.36	0.99	2.12	-0.10	1.30	-0.63	-0.35	0.18
丰度	-0.71	1.71	5.09	0.64	1.85	-0.04	-0.03	-0.44
最小值	4.35	8.96	0.01	14.74	5.56	7.45	6.00	18.03
最大值	8.24	76.46	2.95	106.15	85.57	33.80	26.22	142.85
变异系数/%	15.37	41.48	113.05	32.96	57.56	26.63	26.20	38.20

42.8%，而其他重金属元素的含量均未发现超标现象。从设施土壤样本总体($n=82$)看，其Cd超标样本比例占61.0%，且这些超标样本主要发生在pH<7.5的土壤(平均pH值5.9)。

2.2 不同土地利用方式下土壤性质及重金属含量状况

从不同利用方式下土壤重金属含量看(表2)，设施菜地重金属Cd、Cr、Cu、Ni、Zn、Pb含量均显著高于玉米地和林地土壤，且达 $P<0.05$ 的显著性水平。与林地比较，设施菜地Cd、Cr、Cu、Ni和Zn含量分别增加了327.3%、89.3%、177.5%、35.9%和103.2%，而Pb含量亦增加了7.55%。从土壤pH值比较看，林地普遍高于设施菜地和玉米地，相对于林地土壤，设施菜地pH值显著降低，平均值下降了0.87个单位，说明设施土壤出现了明显酸化现象，而有机质的含量则明显增加，与玉米地比较，设施菜地土壤有机质含量增幅为77.9%，与林地比较，设施菜地有机质含量增加了23.2%，

2 结果与分析

2.1 研究区土壤性质及重金属含量

从研究区域土壤性质可以看出，土壤pH值平均为6.18，整体呈酸性，最低至4.35，最大值达8.24。有机质含量平均为27.99 $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (表1)。从土壤重金属含量变异系数可以看出，以镉(Cd)的变异系数最大，其次为铜(Cu)，再次为锌(Zn)和铬(Cr)，而镍(Ni)和铅(Pb)含量变异系数相对较低。研究区土壤Cd含量均值为0.45 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ，设施土壤Cd含量为0.47 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ (表2)，大大超过温室蔬菜产地环境评价标准(HJ 333-2006)(pH<7.5, Cd<0.3 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; pH>7.5, Cd<0.4 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[18]，在所有124个样本中，pH<7.5的样本超标率为49.1%，pH>7.5的17个样本中，仅1个样本超标，所有土壤总样本Cd含量超标率为

由此可见，设施蔬菜耕作模式下，土壤有机质大大提升，土壤酸化和重金属累积的现象明显。

2.3 设施蔬菜重金属含量

研究区域内蔬菜重金属含量呈现一定的变化规律。由表3可知，不同类型的蔬菜比较，可食部位重金属Cd、Cu、Pb含量均以叶菜类较高，其含量分别为0.033、1.250、0.050 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ，Zn和Ni的含量以豆类蔬菜较高，其值分别为4.085 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、0.662 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ，Cr含量以果菜类蔬菜含量较高，其含量为0.024 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。与食品中污染物限量标准比较，发现2个果菜类可食部位Cd含量超标，样本超标率为2.5%，1个果菜类蔬菜可食部位样本Pb含量超标外，样本超标率1.2%，其他蔬菜样本重金属含量均不超标，与食品限量卫生标准比较，则未发现超标的蔬菜样本。从各蔬菜样本的转移系数看，重金属Cd、Cu、Cr、Pb的转移系数均以叶菜类最高，Ni和Zn的转移系数均以豆类最高，果菜类重金属Cu、Zn、Pb、Ni的转移系数较低。

表 2 不同农业利用方式下土壤基本性质及重金属含量描述性统计¹⁾

Table 2 Descriptive statistics of soil quality and heavy metal content for different agricultural utilization patterns

不同土壤利用方式	样品数	土壤性质	平均值	最小值	最大值
设施菜地	81	pH	6.07 ± 0.87b	4.35	8.00
玉米地	33		6.18 ± 1.10b	4.70	8.24
林地	10		7.04 ± 0.66a	5.92	7.91
设施菜地	81	OM 有机质 /g·kg ⁻¹	32.16 ± 10.94a	15.10	76.50
玉米地	33		18.08 ± 5.26b	10.59	31.95
林地	11		26.09 ± 12.55a	8.96	43.92
设施菜地	81	Cd /mg·kg ⁻¹	0.47 ± 0.23a	0.05	2.95
玉米地	33		0.10 ± 0.070b	0.04	0.36
林地	11		0.11 ± 0.071b	0.01	0.23
设施菜地	81	Cr /mg·kg ⁻¹	54.03 ± 12.09a	24.83	106.15
玉米地	33		35.58 ± 12.86b	16.57	62.34
林地	11		28.55 ± 11.24b	14.74	41.91
设施菜地	81	Cu /mg·kg ⁻¹	33.35 ± 14.99a	9.42	85.57
玉米地	33		14.97 ± 4.83b	6.69	24.98
林地	11		12.02 ± 5.60b	5.56	20.75
设施菜地	81	Ni /mg·kg ⁻¹	22.58 ± 4.71a	10.19	33.80
玉米地	33		18.88 ± 5.96b	8.77	28.68
林地	11		16.62 ± 7.17b	7.45	25.66
设施菜地	81	Pb /mg·kg ⁻¹	16.25 ± 3.46a	6.49	24.15
玉米地	33		13.29 ± 3.50b	6.99	19.56
林地	11		15.11 ± 7.06a	6.00	26.22
设施菜地	81	Zn /mg·kg ⁻¹	88.15 ± 24.11a	33.10	142.85
玉米地	33		51.25 ± 16.06b	21.76	79.05
林地	11		43.39 ± 19.83b	18.03	75.35

1) 同一列内标准差后不同字母表示差异显著, 相同字母表示差异不显著

表 3 不同类别设施蔬菜重金属含量及转移系数¹⁾ (以鲜重计)/mg·kg⁻¹Table 3 Heavy metal content and corresponding transformation coefficient of various kinds of vegetables (based on fresh weight)/mg·kg⁻¹

作物种类	样品数(n)	重金属	平均值	最小值	最大值	标准 I ^[19,20]	标准 II ^[21]	转移系数
叶菜类	6	Cd	0.033 ± 0.035a	0.010	0.070	—	0.200	0.175a
豆类	29		0.005 ± 0.007b	0	0.030	—	0.100	0.027c
果菜类	46		0.023 ± 0.019b	0	0.110	—	0.050	0.089b
叶菜类	6	Cu	1.250 ± 0.817a	0.330	1.880	10	—	0.049a
豆类	29		1.101 ± 0.660a	0.350	3.270	10	—	0.041a
果菜类	46		0.729 ± 1.061a	0.190	5.980	10	—	0.029a
叶菜类	6	Zn	2.055 ± 1.165ab	0.750	2.990	50	—	0.026b
豆类	29		4.085 ± 1.451a	1.630	8.730	50	—	0.055a
果菜类	46		1.795 ± 1.942b	0.420	13.050	50	—	0.021ab
叶菜类	6	Pb	0.050 ± 0.053a	0	0.11	—	0.300	0.0035a
豆类	29		0.027 ± 0.027a	0	0.100	—	0.200	0.0016ab
果菜类	46		0.014 ± 0.026b	0	0.140	—	0.100	0.0009b
叶菜类	6	Cr	0.018 ± 0.014a	0.010	0.030	—	0.500	0.0003a
豆类	29		0.015 ± 0.012a	0	0.040	—	0.500	0.0002a
果菜类	46		0.024 ± 0.032a	0	0.130	—	0.500	0.0004a
叶菜类	6	Ni	0.146 ± 0.125b	0.050	0.290	—	—	0.0065b
豆类	29		0.662 ± 0.421a	0.040	1.630	—	—	0.0273a
果菜类	46		0.147 ± 0.248b	0.010	1.590	—	—	0.0062b

1) 标准I:食品限量卫生标准, 标准II:食品中污染物限量标准; “—”表示无此标准; 同一列相同字母表示差异不显著, 不同字母代表差异显著

2.4 设施蔬菜重金属含量及土壤性质随着设施利用年限的变化

按照不同菜地设施利用年限分阶段进行统计分

析发现(见表4), 设施蔬菜重金属含量及土壤基本性质随设施利用年限呈现一定的变化规律. 随着设施利用年限的增加, 除土壤 pH 值不断降低及土壤

Ni 含量略有下降外,土壤有机质、重金属含量均大致呈现不断累积的趋势.不同年限比较,与建棚初期 ≤ 3 a 相比,当设施年限为 21~30 a 时,土壤 pH 值显著降低($P < 0.05$),有机质含量显著升高($P < 0.05$),其 pH 值下降了 0.83 个单位,有机质含量增加了 55.5%,土壤 Cd、Cr、Cu、Pb 和 Zn 的含量分别增加了 112.0%、9.4%、27.0%、22.7% 和 36.4%.与此相似,蔬菜中重金属含量随着设施利用年限的延长呈现不断增加的趋势,设施利用年限达 21~30 a 时,设施蔬菜 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn 含量相比于建棚之初的含量分别增加了 105.4%、219.7%、11.7%、4.5% 和 48.4%.随着设施利用年限增加及土壤酸化程度加重,设施蔬菜重金属含

量与设施土壤中重金属含量呈现同步累积的趋势,导致相应土壤和蔬菜的环境安全风险增加.

2.5 设施蔬菜重金属含量与土壤基本性质的关系

通过多元回归分析的结果表明(见表 5),设施蔬菜 Zn 含量与土壤总 Zn 含量、pH、OM 间并不存在显著相关关系.设施蔬菜 Cd 与土壤 Cd 之间存在极显著相关,其回归的决定系数平方(R^2)值为 0.265,蔬菜 Ni 和土壤 pH 含量间的回归决定系数平方(R^2)值为 0.154,两者间极显著相关,将 OM 纳入回归方程时 R^2 提高至 0.213.蔬菜 Cr 含量与土壤有机质和 pH 间均存在显著相关,蔬菜 Cu、Pb 与土壤有机质间相关性均达显著水平,而蔬菜 Zn 与土壤 Zn 含量及土壤基本性质间未表现显著相关性.

表 4 设施蔬菜重金属含量(以鲜重计)及土壤基本性质随着设施利用年限的变化¹⁾

Table 4 Heavy metal content of greenhouse vegetable (based on fresh weight) and soil quality with different cultivation times

设施年限 /a	样本数 (n)	土壤有机质 /g·kg ⁻¹	土壤 pH 值	Cd		Cr		Cu	
				土壤 /mg·kg ⁻¹	蔬菜 /μg·kg ⁻¹	土壤 /mg·kg ⁻¹	蔬菜 /μg·kg ⁻¹	土壤 /mg·kg ⁻¹	蔬菜 /μg·kg ⁻¹
≤3	13	28.73b	6.46a	0.25b	14.40c	49.21a	13.00c	29.97a	0.91b
4~6	24	29.37b	6.27a	0.48a	21.76b	52.11a	32.17b	30.51a	0.99b
7~10	15	31.45b	5.91ab	0.46a	26.93ab	59.70a	50.23a	35.15a	1.23ab
11~14	10	30.64b	6.05ab	0.43a	20.39b	52.45a	24.85b	31.24a	1.86a
15~20	11	35.91ab	5.61b	0.58a	25.41ab	54.18a	44.62a	39.97a	1.18ab
21~30	8	44.68a	5.63b	0.53a	29.58a	54.34a	41.56ab	38.05a	1.03ab
平均	81	32.16	6.07	0.47	22.55	54.03	33.95	33.35	0.88

设施年限 /a	样本数 (n)	土壤有机质 /g·kg ⁻¹	土壤 pH 值	Ni		Pb		Zn	
				土壤 /mg·kg ⁻¹	蔬菜 /μg·kg ⁻¹	土壤 /mg·kg ⁻¹	蔬菜 /μg·kg ⁻¹	土壤 /mg·kg ⁻¹	蔬菜 /μg·kg ⁻¹
≤3	13	28.73b	6.46a	23.38a	0.36a	15.32a	20.97b	79.04b	3.04b
4~6	24	29.37b	6.27a	22.74a	0.35ab	15.21a	20.44b	80.47b	3.47b
7~10	15	31.45b	5.91ab	22.92a	0.40a	16.58a	32.28a	94.03ab	3.64b
11~14	10	30.64b	6.05ab	21.93a	0.43a	16.83a	25.92ab	86.03b	4.09ab
15~20	11	35.91ab	5.61b	21.95a	0.49a	17.50a	24.77ab	96.18ab	4.01a
21~30	8	44.68a	5.63b	21.82a	0.38a	17.89a	21.95ab	107.8a	4.51a
平均	81	32.16	6.07	22.58	0.39	16.25	20.27	88.15	3.70

1)表中数值为平均值,同一列相同字母表示差异不显著,不同字母代表差异显著

表 5 设施蔬菜重金属与相应土壤重金属及其性质(pH、OM)间的多元逐步回归方程¹⁾

Table 5 Multivariate stepwise regression equation between heavy metal content of greenhouse vegetable and parameters of corresponding soil quality

设施蔬菜 重金属	方程	相关系数 (R^2)
Cd	$y = 0.013 + 0.014x$	0.265**
Cr	$y = 0.082 + 0.002OM - 0.014pH$	0.124*
Cu	$y = 2.096 - 0.041OM$	0.065*
Ni	$y = 1.739 - 0.175pH - 0.012OM$	0.213**
Pb	$y = 0.052 - 0.001OM$	0.076*

1)y 表示设施蔬菜重金属(mg·kg⁻¹,以鲜重计),x 表示相应土壤重金属(mg·kg⁻¹),OM 表示土壤有机质含量(g·kg⁻¹),pH 表示土壤酸度,* 代表在 0.05 水平下显著相关,** 代表在 0.01 水平下显著相关

3 讨论

设施蔬菜生产系统是不同于普通的农田生产系统,长期处于薄膜覆盖、高温、高湿、高投入、高产出的状态.在设施栽培模式下,整个农田生态系统已完全不同于开放状态下情形.已有不少研究表明,设施土壤随着设施利用年限的增加,导致土壤中重金属不断累积、土壤酸化等一系列环境问题,设施土壤超标明显,尤其 Cd 超标达 61%,且导致蔬菜风险增加,这与 Fan 等^[15]对华北地区设施菜地研究的结果中得到 Cd 含量超标率为 72.4% 的情况类似,不同类别蔬菜转移系数以叶菜类较高,而果菜和茎类较低,且设施蔬菜中某些重金属受土壤

有机质的显著影响等结论具有一定相似性。

从设施菜地金属含量与土壤基本性质相关性统计分析可以看出(表6), 土壤 pH 与重金属 Cr、Ni、Pb、Zn 间相关性极显著($P < 0.01$), 土壤有机质与除 Cd 之外的 5 种重金属间相关性显著, 其中有机质与 Cu、Ni、Pb、Zn 间达极显著相关性水平($P <$

0.01)。另据土壤元素主成分分析结果表明, 得到特征值大于 1 的主成分共 2 个, 对应的主成分累计贡献率为 77.91%。其中, Cr、Cu、Ni、Pb、Zn 为一类, 对第一主成分有大的负荷量, Cd 为另一类, 对第二主成分有很大的负荷量, 划分为同一主成分的各元素可能在来源上存在较大相似性和同源性。

表 6 设施土壤重金属含量与土壤性质的相关性¹⁾

Table 6 Correlation relationship between heavy metal content of soils and soil quality

	pH	OM	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
pH	1.00							
OM	-0.04	1.00						
Cd	-0.16	0.20	1.00					
Cr	-0.49**	0.27*	0.18	1.00				
Cu	-0.16	0.37**	0.58**	0.33**	1.00			
Ni	-0.40**	0.26*	0.20	0.73**	0.37**	1.00		
Pb	-0.52**	0.39**	0.06	0.63**	0.25*	0.73**	1.00	
Zn	-0.37**	0.44**	0.54**	0.44**	0.67**	0.44**	0.48**	1.00

1) * 代表在 0.05 水平下显著相关, ** 代表在 0.01 水平下显著相关

从本研究区域设施土壤重金属累积的成因看, 伴随着农业生产过程, 重金属可能通过大气沉降、农田灌溉水、肥料及农药等进入设施生产系统。不同农业利用方式比较的结果表明, 设施菜地土壤中重金属含量普遍高于林地和玉米地, 说明集约化的设施农业生产方式更利于土壤重金属的累积。从外源性输入途径来看, 设施菜地长期处于封闭的环境, 基本无雨水淋洗及大气沉降, 因而大气沉降输入土壤的重金属可忽略; 对研究区域设施菜地灌溉用水的检测分析表明, 绝大部分重金属含量均低于检出限, 亦远远低于国家灌溉水质量标准, 因而从灌溉水进入土壤的重金属亦可忽略; 从农药的投入来看, 当地普遍使用的为有机农药, 较少施用含重金属的农药, 由农药导致设施菜地重金属累积的影响较小。

与普通农田和林地不同的是, 设施菜地农业投入品尤其是有机肥和化肥的施用量要远远高于普通农田和林地, 通过田间调查发现, 研究区域设施菜地有机肥和化肥的平均施用量分别为 $114.6 \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $2.41 \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 为玉米地的 3~20 倍, 最高用量分别为 $500 \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $8.33 \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 而普通玉米地基本不施有机肥。不仅如此, 通过对设施菜地肥料抽样检测分析(表 7), 结果发现当地施用的不同类型肥料均不同程度地携带各种重金属, 其中猪粪 Cd 含量最高, 其值为 $1.79 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, Cu 和 Zn 的含量分别高达 $337.97 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $528.86 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 均大大高于牛羊粪肥

料, 与此类似, 鸡粪中亦含有大量的重金属, 其 Cd、Cr、Cu、Zn 含量分别为 0.41、37.55、57.94、481.69 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。而复合肥中 Cd 平均含量达 $6.26 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 其 Cu 和 Zn 含量仅略低于鸡粪, 这可能与复合肥样本构成中多数为有机无机复混肥及含磷复合肥有关, 磷肥往往易携带 Cd^[22], 有机无机复混肥原料若来自畜禽粪便, 则会将粪便中 Cu 和 Zn 等带入复混肥^[23]。因而, 重金属含量高的有机肥和化肥的长期高量投入是研究区域设施菜地重金属累积的驱动力, 也阐释了土壤重金属含量超标样本主要出现在设施菜地的事实。若以表 7 中设施菜地施用的有机肥中重金属平均含量为基础, 以最高有机肥施用量 $500 \text{ t} \cdot \text{hm}^{-2}$ 且以猪粪计算, 则年输入通量依次为 Cd $0.6 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、Cu $169.0 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、Zn $263.4 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、Pb $5.5 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、Cr $14.4 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、Ni $14.4 \text{ kg} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 这大大高于新西兰的同类水平^[24]。与此相适应, 含重金属饲料添加剂的滥用则是畜禽有机肥中重金属含量超高的原因^[25, 26]。

将肥料用量与土壤重金属含量进行相关分析的结果表明, 土壤 Cd、Cu 含量与化肥施用水平间呈现显著正相关关系($P < 0.05$), 说明化肥施用与土壤 Cd 和 Cu 的累积直接相关。将蔬菜重金属含量与有机肥施用水平间进行统计分析, 发现设施蔬菜可食部位 Cr 含量与有机肥施用水平间均呈现极显著相关($P < 0.01$), 两者间可用线性方程拟合:

$$y = 0.0024x + 0.0068$$

$$(P < 0.01, R^2 = 0.2433)$$

式中, y 为蔬菜 Cr 含量, $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, x 为有机肥用量, $\text{t}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$. 蔬菜其它重金属含量与有机肥施用

水平间未见显著相关关系. 由此看来, 化肥和有机肥的施用, 是导致土壤和蔬菜重金属含量升高的重要因素.

表 7 研究区肥料重金属含量/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$

Table 7 Heavy metal content in different fertilizers and pesticides/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$

重金属	有机肥			化肥	
	猪粪($n=4$)	鸡粪($n=3$)	牛羊粪($n=3$)	复合(混)肥($n=35$)	氮肥($n=5$)
Cd	1.79	0.41	0.30	6.26	0.001
Cr	28.79	37.55	28.73	20.14	0.14
Cu	337.97	57.94	35.60	54.59	0.53
Ni	17.91	16.72	17.23	14.23	0.22
Pb	11.04	13.04	13.45	6.41	0.20
Zn	528.86	481.69	167.38	255.31	1.94

此外, 本研究证实随着大棚设施利用年限的增加, 设施土壤和蔬菜重金属出现一定程度的同步累积趋势, 蔬菜中重金属含量的升高可推测主要受三方面因素的影响, 一是来自于土壤重金属含量升高, 二是土壤酸化, 三是土壤有机质增加. 大量研究表明, 土壤 pH 值的升高, 可导致重金属活性增加, 土壤有机质富集可导致水溶性有机质 (DOM) 增加, 增强了重金属的植物可利用性, 从而导致植物可吸收的重金属及人体健康风险增加^[27,28]. 本研究证实的设施蔬菜与土壤性质间的相关关系与陈永等^[5]对南京设施蔬菜与土壤重金属关系的研究结果有相似之处. 因而, 作物重金属的吸收, 除与土壤重金属积累相关外, 还受种植过程中土壤性质变化的影响.

4 结论

(1) 研究区设施菜地出现了明显的重金属累积趋势, 重金属含量大大高于林地和玉米地, 尤其是设施菜地 Cd 含量均值为 $0.47 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 大大超过温室蔬菜产地环境评价标准, 设施菜地样本 Cd 超标率达 61.0%; 设施蔬菜重金属含量不仅随着设施年限增加而累积, 且设施蔬菜与土壤中重金属出现一定程度的同步累积趋势, 伴随土壤酸化加剧, 土壤及蔬菜安全风险增加.

(2) 设施蔬菜吸收重金属与土壤重金属含量、pH、有机质等土壤性质密切相关, 农用物资的投入水平直接影响土壤和蔬菜中重金属含量, 化肥用量与土壤 Cd 和 Cu 含量显著正相关 ($P < 0.05$), 蔬菜重金属含量与有机肥用量间正相关, 以 Cr 最为显著 ($P < 0.05$), 含重金属有机肥、化肥施用是设施土壤及其蔬菜重金属含量升高的主要驱动因子.

参考文献:

- [1] 史静, 张乃明, 包立. 我国设施农业土壤质量退化特征与调控研究进展[J]. 中国生态农业学报, 2013, 21(7): 787-794.
Shi J, Zhang N M, Bao L. Research progress on soil degradation and regulation of facility agriculture in China [J]. Chinese Journal of Eco-Agriculture, 2013, 21(7): 787-794.
- [2] 黄标, 胡文友, 虞云龙, 等. 我国设施蔬菜产地土壤环境质量及管理对策[J]. 中国科学院院刊, 2015, 30(S1): 257-265.
Huang B, Hu W Y, Yu Y L, et al. Problems of soil environmental quality and their management strategies in greenhouse vegetable production of China [J]. Bulletin of Chinese Academy of Sciences, 2015, 30(S1): 194-202.
- [3] 赵晓妮. 东北设施农业天气预报技术获新进展[N]. 中国气象报, 2017-03-20.
- [4] 尹春艳, 骆永明, 滕应, 等. 典型设施菜地土壤抗生素污染特征与积累规律研究[J]. 环境科学, 2012, 33(8): 2810-2816.
Yin C Y, Luo Y M, Teng Y, et al. Pollution characteristics and accumulation of antibiotics in typical protected vegetable soils [J]. Environmental Science, 2012, 33(8): 2810-2816.
- [5] 陈永, 黄标, 胡文友, 等. 设施蔬菜生产系统重金属积累特征及生态效应[J]. 土壤学报, 2013, 50(4): 693-702.
Chen Y, Huang B, Hu W Y, et al. Heavy metals accumulation in greenhouse vegetable production systems and its ecological effects [J]. Acta Pedologica Sinica, 2013, 50(4): 693-702.
- [6] 李莲芳, 曾希柏, 白玲玉. 不同农业利用方式下土壤铜和锌的累积[J]. 生态学报, 2008, 28(9): 4372-4380.
Li L F, Zeng X B, Bai L Y. Accumulation of copper and zinc in soils under different agricultural and natural field [J]. Acta Ecologica Sinica, 2008, 28(9): 4372-4380.
- [7] 李莲芳, 曾希柏, 白玲玉, 等. 山东寿光不同农业利用方式下土壤铅的累积特征[J]. 农业环境科学学报, 2010, 29(10): 1960-1965.
Li L F, Zeng X B, Bai L Y, et al. Characteristics of lead accumulation in soils under different agricultural utilization pattern in Shouguang of Shandong Province, China [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2010, 29(10): 1960-1965.
- [8] 陈永, 黄标, 胡文友, 等. Assessing the risks of trace elements in environmental materials under selected greenhouse vegetable production systems of China [J]. Science of the Total

- Environment, 2014, **470-471**: 1140-1150.
- [9] 李莲芳, 曾希柏, 白玲玉, 等. 石门雄黄矿周边地区土壤砷分布及农产品健康风险评估[J]. 应用生态学报, 2010, **21**(11): 2946-2951.
Li L F, Zeng X B, Bai L Y, *et al.* Soil arsenic content and its health risk assessment for agricultural products in the region surrounding Shimen arsenic sulphide mine[J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 2010, **21**(11): 2946-2951.
- [10] 王菲, 吴泉源, 吕建树, 等. 山东省典型金矿区土壤重金属空间特征分析与环境风险评估[J]. 环境科学, 2016, **37**(8): 3144-3150.
Wang F, Wu Q Y, Lü J S, *et al.* Spatial characteristics and environmental risk of heavy metals in typical gold mining area of Shandong Province[J]. Environmental Science, 2016, **37**(8): 3144-3150.
- [11] 施亚星, 吴绍华, 周生路, 等. 土壤-作物系统中重金属元素吸收、迁移和积累过程模拟[J]. 环境科学, 2016, **37**(10): 3996-4003.
Shi Y X, Wu S H, Zhou S L, *et al.* Simulation of the absorption, migration and accumulation process of heavy metal elements in soil-crop system[J]. Environmental Science, 2016, **37**(10): 3996-4003.
- [12] 吴洋, 杨军, 周小勇, 等. 广西都安县耕地土壤重金属污染风险评价[J]. 环境科学, 2015, **36**(8): 2964-2971.
Wu Y, Yang J, Zhou X Y, *et al.* Risk assessment of heavy metal contamination in farmland soil in Du'an Autonomous County of Guangxi Zhuang Autonomous region, China[J]. Environmental Science, 2015, **36**(8): 2964-2971.
- [13] Zhang H D, Huang B, Dong L L, *et al.* Accumulation, sources and health risks of trace metals in elevated geochemical background soils used for greenhouse vegetable production in southwestern China [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2017, **137**: 233-239.
- [14] Tian K, Hu W Y, Xing Z, *et al.* Determination and evaluation of heavy metals in soils under two different greenhouse vegetable production systems in eastern China[J]. Chemosphere, 2016, **165**: 555-563.
- [15] Fan Y, Li H, Xue Z J, *et al.* Accumulation characteristics and potential risk of heavy metals in soil-vegetable system under greenhouse cultivation condition in northern China [J]. Ecological Engineering, 2017, **102**: 367-373.
- [16] Zhang R H, Li Z G, Liu X D, *et al.* Immobilization and bioavailability of heavy metals in greenhouse soils amended with rice straw-derived biochar[J]. Ecological Engineering, 2017, **98**: 183-188.
- [17] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 1999. 12-533.
- [18] HJ/T 333-2006, 温室蔬菜产地环境质量评价标准[S].
- [19] GB 15199-1994, 食品中铜限量卫生标准[S].
- [20] GB 13106-1991, 食品中锌限量卫生标准[S].
- [21] GB 2762-2012, 食品安全国家标准 食品中污染物限量[S].
- [22] 黄青青, 刘星, 张倩, 等. 磷肥中镉的环境风险及生物有效性分析[J]. 环境科学与技术, 2016, **39**(2): 156-161.
Huang Q Q, Liu X, Zhang Q, *et al.* evaluating the environmental risk and the bioavailability of cd in phosphorus fertilizers[J]. Environmental Science & Technology, 2016, **39**(2): 156-161.
- [23] 陈林华, 倪吾钟, 李雪莲, 等. 常用肥料重金属含量的调查分析[J]. 浙江理工大学学报, 2009, **26**(2): 223-227.
Chen L H, Ni W Z, Li X L, *et al.* Investigation of heavy metal concentrations in commercial fertilizers commonly-used [J]. Journal of Zhejiang Sci-Tech University, 2009, **26**(2): 223-227.
- [24] Bolan N, Adriano D, Mani S, *et al.* Adsorption, complexation, and phytoavailability of copper as influenced by organic manure [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2003, **22**(2): 450-456.
- [25] Mohanna C, Carré B, Nys Y. Incidence of dietary viscosity on growth performance and zinc and manganese bioavailability in broilers[J]. Animal Feed Science and Technology, 1999, **77**(3-4): 255-266.
- [26] Li Y X, Li W, Wu J, *et al.* Contribution of additives Cu to its accumulation in pig feces: study in Beijing and Fuxin of China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2007, **19**(5): 610-615.
- [27] Zhou W J, Ren L W, Zhu L Z. Reducement of cadmium adsorption on clay minerals by the presence of dissolved organic matter from animal manure[J]. Environmental Pollution, 2017, **223**: 247-254.
- [28] 徐龙君, 袁智. 外源镉污染及水溶性有机质对土壤中 Cd 形态的影响研究[J]. 土壤通报, 2009, **40**(6): 1442-1445.
Xu L J, Yuan Z. Effect of exogenous cadmium pollution and dissolved organic matter on forms of Cd in soil [J]. Chinese Journal of Soil Science, 2009, **40**(6): 1442-1445.

CONTENTS

Diurnal Variation of SOA Formation Potential from Ambient Air at an Urban Site in Beijing	LIU Jun, CHU Bi-wu, HE Hong (2505)
Characteristics of Key Size Spectrum of PM _{2.5} Affecting Winter Haze Pollution in Taiyuan	YANG Su-ying, YU Xin-yang, ZHAO Xiu-yong, <i>et al.</i> (2512)
Characteristics and Source Apportionment of Water-soluble Ions in PM _{2.5} During Winter in Panjin	ZHANG Lei, JI Ya-qin, WANG Shi-bao, <i>et al.</i> (2521)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds in the Rainy Season of Guangzhou City	GU Ying-gang, YU Xiao-fang, YANG Wen-da, <i>et al.</i> (2528)
Emission Characteristics of Dehydrated Sugar and Acephenanthrylene in Particles from Tropical Forest Burning	JIN Cheng-miao, CUI Min, HAN Yong, <i>et al.</i> (2538)
Construction and Application of Vertical Diffusion Index for Analyzing Weather During Pollution Events in Tianjin	CAI Zi-ying, HAN Su-jin, ZHANG Min, <i>et al.</i> (2548)
Comparison Between Atmospheric Wet-only and Bulk Nitrogen Depositions at Two Sites in Subtropical China	ZHU Xiao, WANG Jie-fei, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2557)
Emission Reduction Benefits When Eliminating Yellow-label Vehicles in the Jing-jin-ji Region	LU Ya-ling, ZHOU Jia, CHENG Xi, <i>et al.</i> (2566)
Health Assessment of the Stream Ecosystem in the North Canal River Basin, Beijing, China	GU Xiao-yun, XU Zong-xue, LIU Lin-fei, <i>et al.</i> (2576)
Pollution Characteristics and Source Identification of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Phthalic Acid Esters During High Water Level Periods in the Wuhan Section of the Yangtze River, China	DONG Lei, TANG Xian-qiang, LIN Li, <i>et al.</i> (2588)
Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Downstream Areas of the Aojiang River, Fujian Province	ZHANG Dan-dan, GUO Ya-ping, REN Hong-yun, <i>et al.</i> (2600)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in the Sediments of the Estuary of the Tributaries in the Three Gorges Reservoir, SW China	FANG Zhi-qing, CHEN Qiu-yu, YIN De-liang, <i>et al.</i> (2607)
Assessment of Physico-chemical Properties and Phosphorus Fraction Distribution Characteristics in Sediments after Impounding of the Three Gorges Reservoir to 175 m	PAN Chan-juan, LI Rui, TANG Xian-qiang, <i>et al.</i> (2615)
Source of Nitrate in Surface Water and Shallow Groundwater Around Baiyangdian Lake Area Based on Hydrochemical and Stable Isotopes	KONG Xiao-le, WANG Shi-qin, DING fei, <i>et al.</i> (2624)
Thermal Stratification and Its Impacts on Water Quality in Shahe Reservoir, Liyang, China	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i> (2632)
Spatial and Temporal Variation Characteristics of Drip Water Hydrogeochemistry in the Xueyu Cave of Chongqing and Its Implications for Environmental Research	ZENG Ze, JIANG Yong-jun, LÜ Xian-fu, <i>et al.</i> (2641)
Distinguishing the Compositions and Sources of the Chromophoric Dissolved Organic Matter in a Typical Karst River During the Dry Season; A Case Study in Bitan River, Jinfo Mountain	LIU Yue, HE Qiu-fang, LIU Ning-kun, <i>et al.</i> (2651)
Environmental Significance of the Stable Isotopes in Precipitation at Different Altitudes in the Tuolai River Basin	LI Yong-ge, LI Zong-xing, FENG Qi, <i>et al.</i> (2661)
Spatial-Temporal Variations of CO ₂ and CH ₄ Flux Through a Water-air Interface Under the Effect of Primary Productivity in Wulixia Reservoir	PENG Wen-jie, LI Qiang, SONG Ang, <i>et al.</i> (2673)
Spatiotemporal Succession Characteristics of Algal Functional Groups and Its Impact Factors for a Typical Channel-Type Reservoir in a Southwest Mountainous Area	ZHANG Yao-wen, LI Hong, LI Jia, <i>et al.</i> (2680)
Seasonal Succession of Phytoplankton Functional Groups and Their Driving Factors in the Siminghu Reservoir	ZHENG Cheng, LU Kai-hong, XU Zhen, <i>et al.</i> (2688)
Effects of Nutrient Addition on the Growth and Competition of Bloom Forming Cyanobacterium <i>Chrysochloris ovalisporum</i> ; An In-situ Experiment	WANG Meng-meng, ZHANG Wei, ZHANG Jun-yi, <i>et al.</i> (2698)
Purification Effect of Submerged Macrophyte System with Different Plants Combinations and C/N Ratios	LIU Miao, CHEN Kai-ning (2706)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Concentration Dynamics in Natural Ditches Under an Irrigation-Drainage Unit in the Jiangnan Plain	HUA Ling-ling, ZHANG Fu-lin, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (2715)
Distribution and Treatment of Antibiotics in Typical WWTPs in Small Towns in China	CHAI Yu-feng, ZHANG Yu-xiu, CHEN Mei-xue, <i>et al.</i> (2724)
Effects and Mechanism of the Combination of Ozone-PAC as a Pretreatment for the Reduction of Membrane Fouling	DONG Bing-zhi, GAO Hao-yang, HU Meng-liu (2732)
Start-up and Process Characteristics of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification (SAD) in a Pilot-scale Anaerobic Sequencing Batch Reactor (ASBR)	YU De-shuang, TANG Jia-jia, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (2740)
Phosphate Removal on Zirconium Alginate/Poly(<i>N</i> -isopropyl acrylamide) Hydrogel Beads with a Semi-interpenetrating Network	ZENG Xue-yang, LUO Hua-yong, ZHANG Yao-kun, <i>et al.</i> (2748)
Shortcut Nitrification Rapid Start and Stability of Corn Starch Wastewater	LONG Bei-sheng, LIU Xun-lei, LIU Hong-bo, <i>et al.</i> (2756)
Nitrifying Bacteria Culture in Entrapment Immobilization	YANG Hong, HU Yin-long (2763)
Performance of the Removal of Nitrogen During Anaerobic Ammonia Oxidation Using Different Operational Strategies	AN Fang-jiao, PENG Yong-zhen, DONG Zhi-long, <i>et al.</i> (2770)
Transformation of Protein in Sludge During High Solids Anaerobic Digestion	ZHAN Yu, SHI Wan-sheng, ZHAO Ming-xing, <i>et al.</i> (2778)
Changes in Heavy Metal Speciation and Release Behavior Before and After Sludge Composting Under a Phosphate-rich Atmosphere	LI Yu, FANG Wen, QI Guang-xia, <i>et al.</i> (2786)
Effect of Denitrification and Phosphorus Removal Microorganisms in Activated Sludge Bulking Caused by Filamentous Bacteria	GAO Chen-chen, YOU Jia, CHEN Yi, <i>et al.</i> (2794)
Microbial Population Dynamics During Domestication and Cultivation of Biofilm to Remove and Enrich Phosphate	MENG Xuan, PAN Yang, ZHANG Hao, <i>et al.</i> (2802)
Effects of Elevated Tetracycline Concentrations on Aerobic Composting of Human Feces: Composting Behavior and Microbial Community Succession	SHI Hong-lei, WANG Xiao-chang, LI Qian, <i>et al.</i> (2810)
Effect of Long-term Organic Amendments on Nitric Oxide Emissions from the Summer Maize-Winter Wheat Cropping System in Guanzhong Plain	YUAN Meng-xuan, WANG Jin-feng, TAN Yue-hui, <i>et al.</i> (2819)
Effects of Mushroom Residue Application Rates on Net Greenhouse Gas Emissions in the Purple Paddy Soil	QI Le, GAO Ming, ZHOU Peng, <i>et al.</i> (2827)
Estimation of Winter Wheat Photosynthesized Carbon Distribution and Allocation Belowground via ¹³ C Pulse-labeling	SUN Zhao-an, CHEN Qing, HAN Xiao, <i>et al.</i> (2837)
Effects of Vegetation Restoration on Soil Nitrogen Pathways in a Karst Region of Southwest China	YANG Yi, OUYANG Yun-dong, CHEN Hao, <i>et al.</i> (2845)
Identifying the Origins and Spatial Distributions of Heavy Metals in the Soils of the Jiangsu Coast	LÜ Jian-shu, HE Hua-chun (2853)
Source Identification and Spatial Distribution of Heavy Metals in Soils in Typical Areas Around the Lower Yellow River	YU Yuan-he, LÜ Jian-shu, WANG Ya-meng (2865)
Spatial Variation of Soil Heavy Metals in Lin'an City and Its Potential Risk Evaluation	ZHENG Jing-zhi, WANG Chu-dong, WANG Shi-han, <i>et al.</i> (2875)
Principal Component Analysis and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Farmland Soils around a Pb-Zn Mine in Southwestern China	ZHOU Yan, CHEN Qiang, DENG Shao-po, <i>et al.</i> (2884)
Spatial Variation of Heavy Metals in Soils and Its Ecological Risk Evaluation in a Typical <i>Carya cathayensis</i> Production Area	ZHANG Hong-ju, ZHAO Ke-li, YE Zheng-qian, <i>et al.</i> (2893)
Influence of Biochar Application on Growth and Antioxidative Responses of Macrophytes in Subsurface Flow Constructed Wetlands	HUANG Lei, CHEN Yu-cheng, ZHAO Ya-qi, <i>et al.</i> (2904)
Effect of Iron on the Release of Arsenic in Flooded Paddy Soils	WANG Xin, ZHONG Song-xiong, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2911)
Concentrations and Health Risk Assessments of Heavy Metal Contents in Soil and Rice of Mine Contaminated Areas	TIAN Mei-ling, ZHONG Xue-mei, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (2919)
Effect of Calcium Silicate-biological Humus Fertilizer Composite on Uptake of Cd by Shallots from Contaminated Agricultural Soil	LIU De-ling, YIN Guang-cai, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2927)
Accumulation Characteristics of Heavy Metals in Greenhouse Soil and Vegetables in Siping City, Jilin Province	LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, ZENG Xi-hai, <i>et al.</i> (2936)
Effect of Foliar Zinc Application on Bioaccessibility of Cadmium and Zinc in Pakchoi	WANG Lin, GU Peng-lei, LI Ran, <i>et al.</i> (2944)
Mercury Distribution of Benthonic Animals and Response to Mercury in Sediments in Caohai Wetland, Guizhou Province	XU Yi-yuan, ZENG Ling-xia, HE Tian-rong, <i>et al.</i> (2953)
Discussion of Emissions and Health Risk of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) from the Retreading Process of Waste Tires	FU Jian-ping, ZHAO Bo, LI Yu-qing, <i>et al.</i> (2963)
Spatiotemporal Dynamics of CO ₂ Emissions in Chongqing: An Empirical Analysis at the County Level	SUN Xiu-feng, SHI Kai-fang, WU Jian-ping (2971)
Impact of Size on Environmental Behavior of Metal Oxide Nanoparticles	YAN Yu-peng, TANG Ya-dong, WAN Biao, <i>et al.</i> (2982)
Fate and Toxicity of UV Filters in Marine Environments	ZHU Xiao-shan, HUANG Jing-ying, LÜ Xiao-hui, <i>et al.</i> (2991)