

廖强, 李金鑫, 李明珠, 等. 污灌条件下重金属在土壤中的累积效应及风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(11): 2560–2569.

LIAO Qiang, LI Jin-xin, LI Ming-zhu, et al. Cumulative distribution and risk assessment of heavy metals during sewage irrigation[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2018, 37(11): 2560–2569.

污灌条件下重金属在土壤中的累积效应及风险评价

廖强¹, 李金鑫¹, 李明珠¹, 董远鹏¹, 吴咪¹, 孟子霖², 李梦红², 刘爱菊^{2*}

(1. 山东理工大学农业工程与食品科学学院, 山东 淄博 255091; 2. 山东理工大学资源与环境工程学院, 山东 淄博 255091)

摘要:为研究重金属在土壤污灌条件下的累积效应及风险评价,以褐土为研究对象,采用室内土柱模拟实验,分析了Cu在不同灌溉土层中的质量分数以及Zn的添加对其累积效应的影响,并利用相关指标对各层土壤重金属的污染情况进行了风险评估。结果表明:在两种污水灌溉下,土壤中Cu和Zn的分布从上到下主要呈逐渐递减的趋势,且到土柱底部时几乎都稳定在土壤的背景值水平;与单一处理的污水灌溉相比,复合处理的污水灌溉下土壤各层Cu的含量均有所增加;同时,单因子污染指数、内梅罗综合指数显示两种污水灌溉会对表层土壤造成轻度污染,潜在生态危害指数显示除复合污染灌溉条件下0~10 cm范围内 $E_i^p(\text{Cu})$ 为45.13处于中等危害等级外,其余情况下两种污水灌溉对土壤的生态危害程度均在轻微危害程度范围;此外,随着灌水量的增加,两种污水灌溉下Cu和Zn的单因子指数峰值均在第四次灌溉后的0~10 cm土层中出现,最大值达到了2.16,且定期收集的滤液中Cu和Zn的含量依然能够达到《地下水环境质量标准》(GB/T 14848—2017)Ⅲ类水的要求。因此,利用污水对土壤进行灌溉,灌溉用水中的Zn能促进各层土壤对Cu的累积,且灌溉次数也在一定程度上影响重金属对土壤的污染情况,同时中短期的污水灌溉不会对地下水造成污染。

关键词:污水灌溉;重金属;分布累积;风险评价

中图分类号:X820.4 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2018)11-2560-10 doi:10.11654/jaes.2018-0318

Cumulative distribution and risk assessment of heavy metals during sewage irrigation

LIAO Qiang¹, LI Jin-xin¹, LI Ming-zhu¹, DONG Yuan-peng¹, WU Mi¹, MENG Zi-lin², LI Meng-hong², LIU Ai-ju^{2*}

(1. School of Agricultural Engineering and Food Science, Shandong University of Technology, Zibo 255091, China; 2. School of Resources and Environment Engineering, Shandong University of Technology, Zibo 255091, China)

Abstract: In order to investigate the distribution characteristics and accumulative effect of heavy metals in soil after irrigation with sewage, batch experiments of soil column irrigation were conducted and the pollution risk of heavy metals in soil was assessed simultaneously. The results showed the concentrations of Cu and Zn decreased gradually from top to bottom in the soil column and were similar to their corresponding background values at the bottom of the soil column after irrigation. The Cu concentration in different soil layers was higher when irrigated with wastewater containing a single pollutant than with wastewater containing multiple pollutants. Meanwhile, the single factor pollution index and Nemerow index indicated that both kinds of wastewater would cause slight pollution of the soil. The potential ecological risk index showed that the two kinds of sewage irrigation would lead to mild harm, except when the 0~10 cm soil layer was irrigated with the multiple pollutant wastewater, which led to medium harm because its $E_i^p(\text{Cu})$ was 45.13. Besides, as the irrigation amount increased, the peak values of the single factor pollution indices of both Cu and Zn appeared in the 0~10 cm soil layer after the last time irrigation, with the maxi-

收稿日期:2018-03-09 录用日期:2018-07-03

作者简介:廖强(1993—),男,四川泸州人,硕士研究生,主要从事土壤污染生态毒理学研究。E-mail:16403050060@stumail.sdut.edu.cn

*通信作者:刘爱菊 E-mail:liuajsdut@gmail.com

基金项目:国家自然科学基金项目(41671322, 41771348);山东省自然科学基金项目(ZR2015DM010);校城融合支持计划项目(2016ZBXC102)

Project supported: The National Natural Science Foundation of China (41671322, 41771348); The Natural Science Foundation of Shandong Province (ZR2015DM010); SDUT & Zibo City Integration Development Project (2016ZBXC102)

mum value reaching 2.16. The contents of Cu and Zn in the filtrate collected from the bottom of the soil column met the third grade standard of GB/T 14848—2017. This result indicated that Zn could promote the accumulation of Cu in different layers of soil under the condition of sewage irrigation, and the irrigation times also affected the pollution by heavy metals of soil to a certain extent. In addition, short-term sewage irrigation would not lead to groundwater contamination.

Keywords: sewage irrigation; heavy metal; distribution and accumulation; risk evaluation

近年来,随着社会的快速发展和人们生活水平的不断提高,环境污染问题已经越来越不容忽视。其中,土壤作为人们生产生活的基础,所受到的污染和破坏尤为突出,土壤重金属污染便是当下污染面积最广、危害最大的环境问题之一。2014年全国土壤污染状况调查发现,无机污染物超标点位占全部超标点位的82.8%,其中农田土壤重金属污染中以Cd、Ni、Cu等最为严重^[1]。Cu、Zn等作为生物体必不可少的微量元素,常作为添加剂被大量添加到食物和饲料中,这些重金属进入生物体之后能被有效利用的量很少,很大一部分都随粪便、尿液等代谢物排出体外,从而对环境造成污染^[2]。此外,我国蕴含丰富的Cu、Zn矿,随着这些金属矿物的大量开采,被污染的土壤、水源也越来越多。已有研究表明,矿区附近的土壤和水体中重金属含量均处于较高水平,且主要危害元素与该矿山金属矿物类型有着很大的关系^[3-4]。而且世界范围内的重金属污染情况也不容乐观,据统计,在过去的50年间,分别有大约 9.39×10^5 t和 1.35×10^5 t的Cu、Zn被排放到全球环境中,其中很大一部分都在土壤中累积,造成了严重的土壤重金属污染^[5]。

我国是农业大国,农业用水量占全国总用水量的70%以上,每年农业生产缺水可达 3×10^{10} m³^[6],污水灌溉作为促进污水循环利用的有效措施,使我国特别是北方地区的农业用水压力得到了很大程度的缓解。相关资料显示,预计到2030年,我国缺水水量将达到 1.3×10^{10} m³,再生水可利用量将达到 7.67×10^{10} m³^[7]。虽然处理过后的污水能够达到农田灌溉的标准要求,但其中所含有的污染物如重金属等都要比正常灌溉水高,一旦灌溉方式不当,便会造成土壤内重金属元素的超标,以致威胁到人类的健康^[8]。已有相关研究表明^[9-10],现阶段我国部分地区因污水灌溉而造成的土壤重金属污染面积日益增加,若不及时采取相关措施治理,所面临的土壤重金属污染问题将会越来越严峻。

为此,本实验以我国北方地区农田土壤中常见的褐土为研究对象,将重金属Cu和Zn作为主要污染物,采用土柱淋溶实验对污水灌溉农田土壤的重金属

分布累积进行模拟。并利用土壤重金属污染评价中常用的单因子指数、内梅罗综合指数以及潜在生态危害指数对各土层重金属的累积污染情况进行综合评估,同时利用《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017)^[11]评估了两种污灌条件下地下水可能受到的影响,以此来探究实际污灌农田土壤中重金属的累积运移情况,并为污灌土壤中重金属污染风险评价提供可靠的理论依据。

1 材料与方法

1.1 供试土壤

实验土壤为未经污染的农田土壤,采自山东省淄博市,土壤类型为褐土,采土深度为0~60 cm,在30 m×30 m范围内分5点采集后将土样混合。取部分鲜土测其含水量,其余经除杂、风干、研磨和过筛(2 mm)后备用,并从中取适量土样进行理化指标的测定,具体方法参照鲁如坤的《土壤农业化学分析方法》^[12],测定结果见表1。

表1 土壤的基本理化性质

Table 1 Soil physical and chemical properties

pH	有机质/ mg·g ⁻¹	田间持 水率/%	机械组成/%			Cu浓度/ mg·kg ⁻¹	Zn浓度/ mg·kg ⁻¹	容重/ g·cm ⁻³
			黏粒	粉粒	砂粒			
7.46	1.30	20.83	6.7	80.0	13.3	32.12	70.89	1.5

1.2 实验设计

1.2.1 土柱填装

实验所采用的土柱由有机玻璃制成,柱高100 cm、内径10 cm。柱两侧面每隔5 cm设置直径1.5 cm的圆形孔,灌水时用橡胶塞塞紧,灌溉完毕后拔下塞子取样分析。土柱上方设置进水口,下端围绕中心点设置4个小孔,以便淋滤液下渗。外壁附有刻度,便于观测水流的下渗深度。供水设备采用自制的定水头马氏瓶,根据土壤灌水定额设计马氏瓶容积为10 L,于橡胶盖上打两个8.0 mm的孔,插入一长一短的空心玻璃管。在长管关闭、短管打开的状态下缓慢向瓶中注水,水量充足后再关掉短管,打开长管开始进行灌水实验,实验室温度控制在25℃左右。土壤在

装填前充分混匀,并在土柱的底部放2 cm 经酸泡和离子水多次冲洗处理后的石英砂,再在石英砂上放一层滤纸,防止浸出液含有过多杂质堵住底部出水孔;然后按40~60、20~40、0~20 cm 的顺序分3次进行土壤装填,每层土壤装填后用塑料压实器压实,并使其达到规定高度;在每层土壤装填好后用一定量的去离子水润湿,使其含水量达到田间持水量水平;最后在装填好的土壤上铺2 cm 的石英砂和一层滤纸。装置如图1所示。

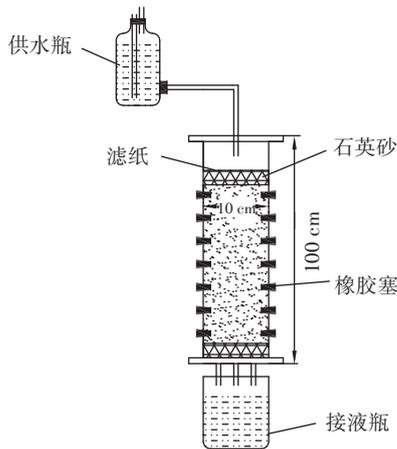


图1 实验装置图

Figure 1 Schematic diagram of the experimental setup

1.2.2 淋溶液浓度设置

由于实际灌溉所用污水中重金属浓度较低并含有多种污染物,为了规避其他因素的影响,同时考虑到实际情况下灌溉用水中重金属离子会有超标的情况,本实验采用清水配加重金属的方式,按我国《城镇污水处理厂污染物排放标准》^[13](GB 18918—2002)中重金属排放最高标准的5~10倍进行设定(表2)。虽然与实际农田灌溉水中的重金属浓度有一定差异,但增大重金属浓度后能更加清晰地在短期模拟实验中明确分析出各土层重金属的累计分布情况及运移特征,且已有部分研究采用增大实验模拟灌溉用水重金属浓度的类似方法对土壤重金属累

表2 污水排放标准和实验设置中重金属浓度($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)

Table 2 Wastewater discharge standard of China and concentration of heavy metal for testing($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)

重金属种类	Cu	Zn
最高排放标准	0.5	1.0
实验设置浓度	5.0	5.0

积情况进行分析并得到了相应的结论^[14-15]。同时,本实验设置两个处理:只包含单一重金属Cu的处理和同时包含Cu、Zn两种重金属的处理。分别以向去离子水中添加 CuSO_4 和 ZnSO_4 的形式配制对应浓度的金属离子溶液,以此来探究单一污染灌溉条件下重金属Cu的累积效应以及由于Zn的加入各土层Cu累积量的变化。

1.2.3 灌水量确定

本实验灌水量的设置主要参照《山东省主要农作物灌溉定额》^[16](DB 37/T 1640—2010)。取净水灌溉定额 $0.3 \text{ m}^3\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$,根据土柱的横截面积(直径为10 cm)计算出每一土柱的年灌水量为2.4 L。设计实验灌溉时间为4年,则每根土柱的总灌水量为9.6 L,为方便控制,取每根土柱的总灌水量为10 L。

1.2.4 土柱淋溶实验

土柱装填好后,先用蠕动泵从土柱下方输入去离子水,使土壤达到饱和并排出多余的空气。然后改变进水方向,让去离子水自上而下流过土柱,待形成稳定流场后关闭蠕动泵,换用重金属溶液从土柱上方进行淋溶。实验设计两种灌溉模式,分别用只含有单一重金属元素Cu的淋溶液和含有Cu、Zn两种重金属元素的混合溶液进行灌溉,每种处理的污水灌溉均分4次进行,每次灌水2.5 L,约3 h左右,且灌溉至下部无滤液渗出后再进行下一次灌溉,流速采用定水头马氏瓶来控制。实验过程中为使渗流速度与实际土壤中灌水的下渗速率相近,均采用自然下渗的方式进行。同时在土柱底部放置接液瓶,定期测定收集滤液中Cu、Zn的含量,待每次淋溶完毕直至土柱底部不再渗出液体时拔下橡胶塞,分别从各层小孔取1 g左右的土样测定其Cu、Zn的含量。考虑到取样过后土柱中的缝隙较小,对实验中重金属累积情况的影响也较小,且如果用新鲜土壤回填则会影响到下一次所取土样中重金属的含量,故实验过程中保留其缝隙不作处理,在每次取样完毕后塞上橡胶塞等待下一次灌溉。灌溉方案见表3。

1.3 相关参数评价方法

1.3.1 单因子指数和内梅罗综合指数评估

采用单因子指数和内梅罗综合指数来评价土壤

表3 灌溉方案设计

Table 3 The design scheme of irrigation

灌溉模式	灌溉浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	灌溉 次数/次	每次 灌水量/L	滤液提取时间 间隔/min
Cu单一灌溉	5	4	2.5	30
Cu、Zn复合灌溉	Cu、Zn均为5	4	2.5	30

的环境质量,是目前较为常用的方式之一^[17-18]。前者能确切地反映出土壤中各因子的污染情况,后者则能在单因子指数的基础上更为全面地描述土壤的整体污染水平,将两者结合起来对土壤环境质量进行评估,能够更好地达到土壤污染评价的目的。

单因子指数法:

$$P_i = C_i \cdot S_i^{-1} \quad (1)$$

式中: P_i 为土壤中污染物*i*的污染指数; C_i 为环境土壤中污染物*i*的实测浓度; S_i 为土壤中污染物*i*的评价标准,按照《土壤环境质量标准》^[19](GB 15618—1995)中的二级标准选取。 $P_i \leq 1$,表示土壤未受污染; $P_i > 1$,表示土壤受到污染,且 P_i 值越大,表示受到污染的程度越严重。

内梅罗指数法:

$$P = [(P_{imax}^2 + P_{iave}^2) / 2]^{1/2} \quad (2)$$

式中: P 为土壤的内梅罗综合污染指数; P_{imax} 为环境土壤各单因子污染指数的最大值; P_{iave} 为土壤各单因子污染指数的平均值。 $P \leq 1$,表示土壤未受污染; $1 < P \leq 2.5$,表示土壤受到轻度污染; $2.5 < P \leq 7$,表示土壤受到中度污染; $P > 7$,表示土壤受到重度污染^[14]。

1.3.2 生态危害指数评价

生态危害指数是由瑞典科学家 Hakanson^[20]提出来的,主要结合土壤和环境特点,将重金属的生态效应、环境效应及其毒性机制联系到一起综合评估土壤的污染情况。主要计算公式如下:

$$RI = \sum E_r^i \quad (3)$$

$$E_r^i = T_r^i \times C_f^i \quad (4)$$

$$C_f^i = C_{\text{表层}}^i / C_n^i \quad (5)$$

式中: C_f^i 为单项污染系数; T_r^i 为某一种金属元素的毒性响应值,以重金属对人体、动植物的危害程度为依据,设定对应重金属的毒性响应值,Cu为5、Zn为1; C_n^i 为参比值,按照《中国土壤元素背景值》选取该地区土壤对应重金属的背景值为参照,Cu为24 mg·kg⁻¹、Zn为63.5 mg·kg⁻¹; E_r^i 为单元素风险指数; $C_{\text{表层}}^i$ 为土壤污染物浓度实测值; RI 为多因子生态风险指数。相应

的潜在生态风险程度及分级标准如表4所示。

1.4 相关指标测定及分析方法

供试土壤的基本理化性质采用常规的分析方法测定,其中土壤有机质用重铬酸钾水合热法测定;pH值采用酸度计进行测定(水:土=5:1);土壤粒径组成用激光粒度仪测定;含水量用烘干法测定。土壤中的重金属离子含量先用HCl、HNO₃和HF微波消解,再用原子吸收分光光度计测定,分析过程中采取空白样、平行样和标准物质控制法,在实际测定过程中加入国家土壤标准样品(GSS-1)进行分析质量控制。

实验数据采用Excel 2010处理,绘图采用Origin 8.5实现,统计和相关性分析采用SPSS 17.0完成。

2 结果与分析

2.1 单一处理污水灌溉下土壤重金属的分布累积

如图2所示,单一处理的污水灌溉下,土壤中重金属Cu的累积分布由上至下呈现出递减趋势。第一次灌溉过后在深度范围40~50 cm内Cu的含量为63.90 mg·kg⁻¹,是首次灌溉后土层中出现的最高值;第二次灌溉后,各土层中Cu的含量都有所下降,最高浓度和最低浓度分别出现在0~10 cm和30~40 cm土层中,为50.06 mg·kg⁻¹和36.05 mg·kg⁻¹;随着第三次

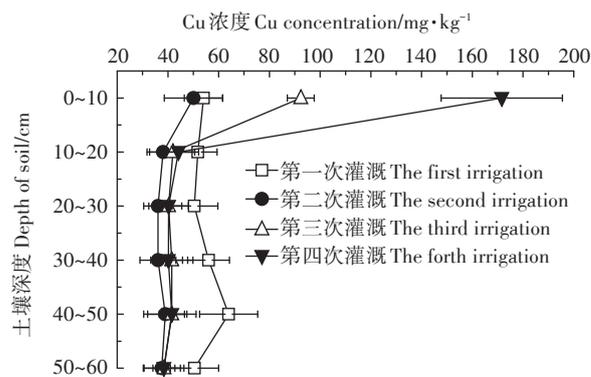


图2 单一处理污水灌溉下Cu在土壤中的分布

Figure 2 The distribution of Cu in soil under reclaimed water irrigation with single pollution

表4 生态风险程度评价分级标准^[21]

Table 4 Standard grading of ecological risk index^[21]

指数类型	范围	生态风险程度	指数类型	范围	生态风险程度
单元素生态风险指数	$E_r^i < 40$	轻微	多因子生态风险指数	$RI < 150$	轻微
	$40 < E_r^i \leq 80$	中等		$150 < RI \leq 300$	中等
	$80 < E_r^i \leq 160$	强		$300 < RI \leq 600$	强
	$160 < E_r^i \leq 320$	很强		$RI > 600$	极强
	$E_r^i > 320$	极强			

灌溉的结束,各土层中Cu的含量较第二次灌溉都有所增加,但增长幅度随土层深度的增加而逐渐减小,第二、三次灌溉后50~60 cm土层中Cu的含量分别为 $37.58 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $38.45 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$;第四次灌溉后,0~10 cm表层土壤中Cu的含量达到了 $171.60 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,但随着深度的增加,其余各层中Cu的含量均与第三次灌溉后的累积量相近。

2.2 复合处理污水灌溉下土壤中重金属的分布累积

如图3所示,复合处理的污水灌溉下,土壤中Zn的含量虽然所呈现的规律不太明显,但是总体上看每次灌溉也是呈从上到下递减的趋势分布,且与单一处理的污水灌溉相比,重金属Zn的加入在整体上促进了土壤中Cu的累积,当进行第四次灌溉时,0~10 cm土层的Cu累积量增加最多,为 $216.60 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。第一次灌溉后,0~10 cm土层中Cu、Zn的含量分别为 $45.90 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $215.89 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$;第二次灌溉过后,0~10 cm土层中Zn的含量有所下降,但Cu的含量则表现为增加,分别为 $128.27 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $57.78 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,而

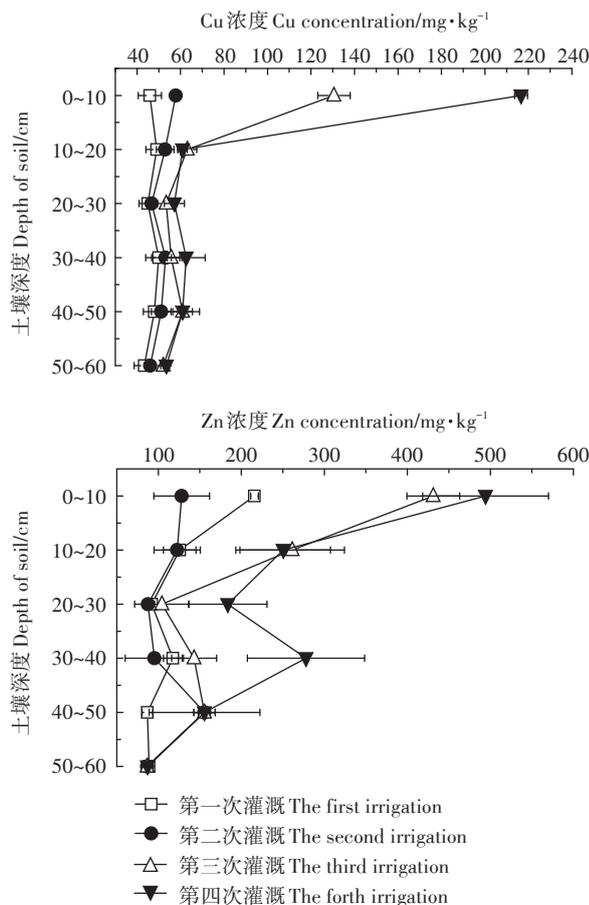


图3 复合处理污水灌溉下Cu、Zn在土壤中的分布

Figure 3 The distribution of Cu and Zn in soil under reclaimed water irrigation with compound pollution

随着土壤深度的增加,两次灌溉后20~60 cm土层中Cu含量变化较Zn含量变化更为平稳;第三次灌溉结束后,两种元素在各层土壤中的含量都较前一次灌溉有所增加,且0~10 cm土层Cu、Zn含量分别为 $130.56 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $431.21 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$;随着第四次灌溉的结束,0~10 cm土壤中Cu、Zn两种元素的含量继续增加,分别为 $216.60 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $494.19 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,两者在各土层中的含量都表现为随着深度的增加而逐渐减少的趋势,到底部50~60 cm土层时,分别稳定在了 $53.45 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $86.97 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。

2.3 灌水量与各土层重金属累积量的相关性

Pearson相关性分析结果显示(表5):在复合处理的灌溉条件下只有0~10、10~20 cm和40~50 cm土层范围内Zn的累积量和灌水量呈显著正相关($P < 0.05$),相关系数分别为0.900、0.922和0.889;而该模式下各层土壤中Cu的累积量与灌水量均表现出显著的正相关性,且相关性比Zn的累积量更紧密,20~30 cm土层中Cu的累积量与灌水量在0.01水平上显著相关。相比之下,单一处理的污水灌溉下各层土壤Cu的累积量与灌水量除了在0~10 cm区域内表现出相关性指数为0.899的显著正相关关系($P < 0.05$)外,其他土层均未表现出显著的相关关系。可见,对同一种重金属元素与灌水量的相互关系进行分析,复合处理污水灌溉下两种变量的相关性较单一处理污水灌溉更为紧密。

表5 两种污水灌溉下各土层Cu、Zn累积量与灌水量的相关性分析

Table 5 Correlation analysis of Cu, Zn accumulation and irrigation amount under two kinds of reclaimed water irrigation

土层/cm	复合处理污水灌溉		单一处理污水灌溉
	Cu和灌水量	Zn和灌水量	Cu和灌水量
0~10	0.928*	0.900*	0.899*
10~20	0.925*	0.922*	0.262
20~30	0.967**	0.853	0.109
30~40	0.930*	0.856	0.009
40~50	0.933*	0.889*	0.001
50~60	0.946*	0.642	0.062

注:*表示在0.05水平(双侧)上显著相关;**表示在0.01水平(双侧)上显著相关。

2.4 两种灌溉条件下土壤重金属的污染评价

2.4.1 单因子指数和内梅罗综合指数

以上述评价指数为依据,研究了本实验两种灌溉条件下各层土壤重金属的污染情况。由表6可知,复

表6 两种污水灌溉下各层土壤重金属的单因子污染指数和内梅罗综合指数

土层/cm	复合处理污水灌溉			单一处理污水灌溉
	Cu	Zn	内梅罗综合指数	Cu
0~10	2.17	1.98	2.07	1.72
10~20	0.61	1.00	0.83	0.44
20~30	0.57	0.73	0.66	0.40
30~40	0.63	1.11	0.90	0.40
40~50	0.61	0.62	0.62	0.42
50~60	0.53	0.35	0.45	0.38

合灌溉模式下,0~10 cm 土层中 Cu 的单因子指数为 2.17,大于 1,达到了污染水平,但 10~60 cm 土层中 Cu 的单因子指数均小于 1,表示该区域土壤并未受到污染;各层土壤中 Zn 的单因子指数与 Cu 有差异,在 0~10、10~20、30~40 cm 土层中的单因子指数分别为 1.98、1.00 和 1.11,但 20~30、40~50、50~60 cm 土层中 Zn 的单因子指数均小于 1;且该灌溉模式下,0~10 cm 土层的内梅罗综合指数为 2.07,其余土层均小于 1,表明复合灌溉可能会对表层土壤造成轻度污染。在单一灌溉模式下,除 0~10 cm 土层中 Cu 的单因子指数为 1.72,已超过未受污染土壤的标准外,10~60 cm 土层中 Cu 的单因子指数均小于 0.5,且各层土壤的单因子指数均小于复合灌溉模式下 Cu 的单因子指数。因此,综合而言,复合污水灌溉较单一污水灌溉更能加重土壤污染程度。

2.4.2 潜在生态危害指数

由表 7 可知,两种灌溉模式下各土层的潜在生态危害指数均较低,对比其危害程度分级标准,在单一处理的污水灌溉下,各层土壤中 Cu 的生态危害指数均达到轻微生态危害指数的标准,其变化范围为

表7 两种污水灌溉下各层土壤重金属的潜在生态危害指数
Table 7 Potential ecological risk index of soil heavy metals under two kinds of reclaimed water irrigation

土层/cm	复合处理污水灌溉			单一处理污水灌溉
	$E_r^i(\text{Cu})$	$E_r^i(\text{Zn})$	RI	$E_r^i(\text{Cu})$
0~10	45.13	7.78	52.91	35.75
10~20	12.69	3.94	16.64	9.19
20~30	11.91	2.89	14.80	8.39
30~40	13.04	4.38	17.42	8.37
40~50	12.70	2.45	15.15	8.65
50~60	11.14	1.37	12.51	8.00

8.00~35.75,最大值和最小值分别出现在 0~10 cm 和 50~60 cm 土层中;与单一处理的污水灌溉条件相比,复合处理的污水灌溉下各土层 Cu 的生态危害指数均有所增加,0~60 cm 土层的增幅分别为 9.38、3.50、3.52、4.67、4.05 和 3.14;而除了 0~10 cm 土层中 Cu 的潜在生态危害指数为 45.13,达到中等危害程度外,其余各土层 Cu、Zn 的潜在生态危害指数均很小,最低为 50~60 cm 土层 Zn 的生态危害指数,为 1.37;且各土层 Cu 的生态危害程度均大于 Zn。两者的复合生态危害指数则显示各层土壤均受到了轻微的生态危害,最大的指数值出现在 0~10 cm 的表层土壤中,为 52.91,这主要与 Cu 的生态风险指数有关,是该灌溉条件下的主要贡献因子。潜在生态危害指数的引入使单一的评价结果与毒性因子紧密联系在了一起,结果表明两种灌溉条件下土壤受到的影响都很小,但复合处理的污水灌溉对土壤的影响程度明显高于单一处理的污水灌溉。

2.4.3 不同灌溉次数对各土层重金属污染的影响

利用单因子指数来描述不同灌溉次数对各层土壤重金属污染情况的影响,能够有效地反映出随着灌溉次数的增加,各层土壤中重金属的累积污染情况。由图 4 和图 5 可知,在两种污水灌溉下,Cu 和 Zn 的单因子指数峰值均出现在第四次灌溉后的 0~10 cm 土层中,且最大值达到了 2.16;在复合处理的污水灌溉下各层土壤中 Cu 的单因子指数主要呈现出随着灌溉次数的增加而略微上升的趋势;而 Zn 在各土层的单因子指数除了在 40~60 cm 土层区域未表现出显著的增减规律外,0~40 cm 土层 Zn 的单因子指数均呈现出

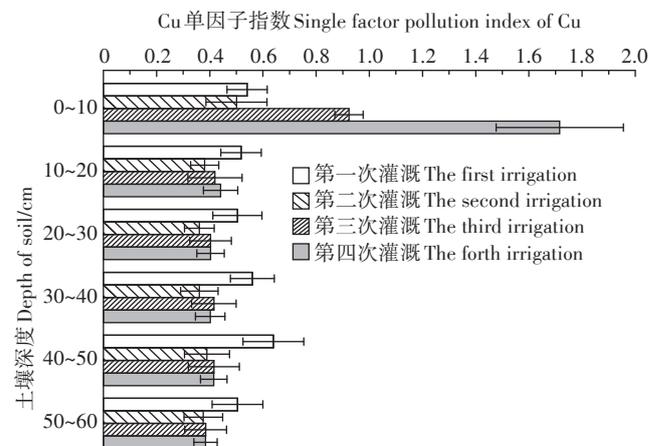


图4 单一处理污水灌溉下 Cu 的单因子指数

Figure 4 The single factor index of Cu in soil under reclaimed water irrigation with single pollution

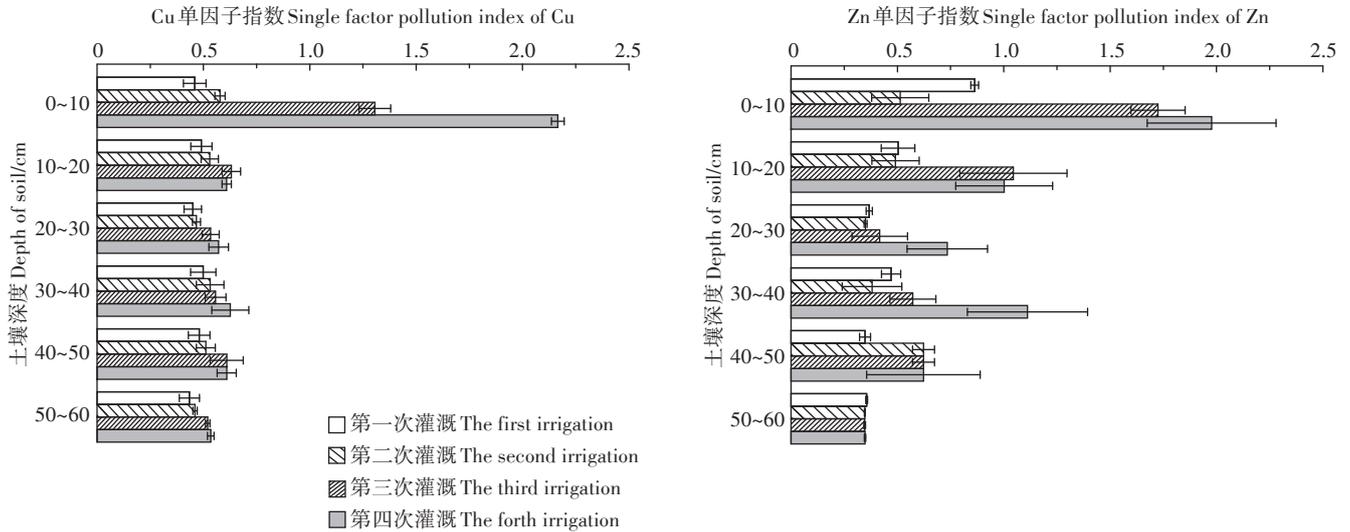


图5 复合处理污水灌溉下Cu、Zn的单因子指数

Figure 5 The single factor index of Cu and Zn in soil under reclaimed water irrigation with compound pollution

随着灌溉次数的增加先降低后上升的趋势。且两种污水灌溉下,50~60 cm土层区域的单因子指数变化程度均趋于平稳,其中Zn在该土层区域内4次灌溉后的单因子指数分别为0.36、0.35、0.35和0.34。可见,灌溉次数在影响各土层重金属污染程度方面也起着不可忽视的作用。

2.5 两种灌溉条件下滤液中重金属含量变化

土柱的淋滤液按每隔30 min的时间顺序进行取样,每次灌水耗时3 h左右,取样6次。分别测定单一处理污水灌溉下滤液中Cu的含量以及复合灌溉条件下滤液中Cu和Zn的含量,得出随灌溉时间以及灌溉次数的变化滤液中重金属的变化情况(表8)。同时再根据所测值对比《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017),以此来分析两种污水灌溉可能对地下水造成的影响(表9)。由表8和表9可看出,两种污水灌溉后,其滤液重金属含量都相对较高,其中,Cu含量均已超过了对II类水的要求,但都在III类水的要求标准

以内;而Zn含量除在第二次复合灌溉后60 min时所取滤液样品中为 $0.765 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,满足III类水要求外,其余样品Zn含量均在II类水的要求范围内。单一处理的污水灌溉下,除在30、90 min和120 min时所取的滤液中Cu含量均随灌溉次数的增加而升高外,其余3个时间段分别呈现出了不同的变化趋势;而复合处理的污水灌溉下,各时间点所取的滤液中Cu含量均高于单一灌溉条件,且随着时间的推移,各灌溉次数滤液中Cu的含量都有逐渐减小的趋势,这可能是复合灌溉中重金属Zn和Cu在土壤中运移时相互作用造成的结果,从而减少了土壤对Cu的吸附作用而促进

表9 地下水质量标准(GB/T 14848—2017, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)

Table 9 Standard for groundwater quality (GB/T 14848—2017, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)

重金属	I类	II类	III类
Cu	≤ 0.01	≤ 0.05	≤ 1.0
Zn	≤ 0.05	≤ 0.5	≤ 1.0

表8 两种灌溉条件下浸出液中Cu、Zn含量的变化情况($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)

Table 8 Changes of Cu, Zn concentrations in leach liquor under two irrigation conditions($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)

时间/min	单一灌溉条件下浸出液中的Cu				复合灌溉条件下浸出液中的Cu				复合灌溉条件下浸出液中的Zn			
	第一次	第二次	第三次	第四次	第一次	第二次	第三次	第四次	第一次	第二次	第三次	第四次
30	0.124	0.124	0.196	0.197	0.170	0.486	0.380	0.165	0.297	0.290	0.288	0.294
60	0.111	0.123	0.195	0.133	0.163	0.165	0.182	0.229	0.326	0.765	0.290	0.297
90	0.112	0.130	0.174	0.189	0.627	0.160	0.183	0.165	0.291	0.294	0.292	0.295
120	0.108	0.149	0.171	0.182	0.148	0.155	0.226	0.248	0.300	0.297	0.296	0.300
150	0.106	0.119	0.213	0.179	0.339	0.152	0.163	0.226	0.299	0.294	0.314	0.301
180	0.156	0.118	0.169	0.179	0.160	0.149	0.161	0.152	0.295	0.294	0.303	0.306

了其运移;Zn在复合处理的污水灌溉条件下,除了在第二次灌溉后60 min时所取样中的含量为 $0.765 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 外,其余均在 $0.288 \sim 0.326 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 之间。

3 讨论

在实际灌溉条件下,土壤中重金属的累积量受多种因素的共同影响,本实验所关注的两种污水以及不同灌溉次数也在一定程度上影响着土壤各层重金属的累积量。两种污水灌溉下土壤中Cu、Zn的累积量从上至下整体均呈逐渐递减的趋势,但随着Zn的加入,各层土壤中Cu含量较单一处理的污水灌溉条件均有所增加,这表明了在复合溶液灌溉条件下,Zn促进了土壤对Cu的吸附作用。已有部分研究结果表明^[22],多种重金属离子共存会影响土壤对重金属离子的吸附,林青^[23]在研究了土壤中重金属Cu、Cd、Zn、Pb吸附及迁移特征后发现,Zn、Cd共存时,其最大吸附量之和分别大于Zn、Cd单一离子存在下的最大吸附量,这说明土壤中存在专门吸附Zn或Cd的吸附点位,在单一离子存在的情况下,这些吸附点位将不参与吸附作用。此外,刘娟娟^[24]在探究Cu、Cr单一及复合体系在两种黏土矿物中吸附的差异及其机理后发现,当 $\text{pH} > 6.0$ 时,Cu能够促进蒙脱石对Cr的吸附作用,且不同的pH条件下其影响效果也存在差异。而实际情况下,重金属共存的环境条件更为复杂,因此,在研究土壤吸附过程中还需要结合其理化指标、灌水量以及灌水中重金属浓度等因素来综合考虑。相关研究表明^[25],土壤中的pH、腐植酸会影响到其中的阳离子键桥、疏水性作用和氢键等,从而影响土壤对金属阳离子的吸附作用。本实验主要探究了两种灌水条件下重金属的迁移特征,对于Cu、Zn在土壤中的结合机制以及不同种类土壤下两种重金属的累积效应还需要进行更为深入的探索。

此外,两种污水灌溉下,随着灌溉次数的增加,0~20 cm深度范围内重金属的累积量有着更为明显的上升趋势。这与大部分的研究结果相符,如赵忠明^[26]在研究再生水灌溉对土壤重金属累积的影响后发现,大部分重金属含量由上至下呈现出递减的规律,并发现灌溉水中重金属的含量对土壤重金属的积累有一定影响。此外,魏益华等^[27]也在研究了中水灌溉对土壤盐分和重金属累积分布影响后得到了相似的结论,即短期的污水灌溉能使0~15 cm表层土壤全盐量增加,而15~45 cm土壤层盐分累积现象与自来水灌溉相比无明显差异。但是,本实验在进行各层土

壤污染风险评价时,所得到的结果与已有研究不太相符。分析结果发现,单因子污染指数、内梅罗综合指数以及生态危害指数表明两种污水灌溉下各层土壤均会受到轻度污染,而张铁军等^[28]在研究污水灌溉对土壤盐渍化与重金属累积的影响后认为短期的污水灌溉不会对土壤环境造成污染,这可能是因为实际情况下污灌用水中含有的抗生素、农药等其他污染物影响了重金属在土壤中的吸附行为和毒性水平。已有研究显示^[29],一定浓度的土霉素能在土壤中与重金属发生竞争吸附,且重金属解吸量会在一定浓度范围内随土霉素浓度的增加而增加;陈成等^[30]在研究了土壤中Cu与阿特拉津交互作用下的吸附行为后发现,低浓度的阿特拉津会明显抑制土壤对Cu的吸附。通过定期测定的滤液中重金属含量变化情况可知,各时间段淋滤液中Zn的含量整体大于Cu的含量。而实验设置的污水浓度是我国污水排放最高标准的5~10倍,在如此的灌溉条件下淋滤液中Cu、Zn的含量依然能够达到地下水的Ⅲ类标准,说明在实际生活中短期的灌溉不会对地下水造成污染。

4 结论

(1)两种污水灌溉下,土壤中Cu和Zn的分布从上到下主要呈逐渐递减的趋势,且在复合处理的污水灌溉下,Zn的加入促进了各层土壤对Cu的累积。同时,在复合处理污水灌溉下各土层Cu的累积量与灌水量有着更为密切的相关性。

(2)单因子污染指数法和内梅罗综合指数法显示两种污水灌溉均会对表层土壤造成轻度污染,潜在生态危害指数显示两种污水灌溉对土壤的危害程度均在轻微危害程度范围内,且灌溉次数也在一定程度上影响着重金属对土壤的污染情况。此外,实验结果表明中短期的污水灌溉不会对地下水造成污染。

参考文献:

- [1] 环境保护部,国土资源部. 全国土壤污染状况调查公报[J]. 中国环保产业, 2014, 36(5): 10-11.
Environmental Protection Department, Ministry of Land and Resources. Report on the national general survey of soil contamination[J]. *China Environmental Protection Industry*, 2014, 36(5): 10-11.
- [2] 吴清清, 马军伟, 姜丽娜, 等. 鸡粪和垃圾有机肥对苋菜生长及土壤重金属积累的影响[J]. 农业环境科学学报, 2010, 29(7): 1302-1309.
WU Qing-qing, MA Jun-wei, JIANG Li-na, et al. Effect of poultry and household garbage manure on the growth of *Amaranth tricolor* L. and heavy metal accumulation in soils[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2010, 29(7): 1302-1309.

- [3] 黄维恒, 包立, 林健, 等. 泚江流域耕地土壤重金属分布及生态风险评价[J]. 农业资源与环境学报, 2017, 34(5):456-465.
HUANG Wei-heng, BAO Li, LIN Jian, et al. Distribution and ecological risk assessment of heavy metals in arable soils in Bijiang watershed, China[J]. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, 2017, 34(5):456-465.
- [4] 方月梅, 张晓玲, 刘娟, 等. 铜绿山矿区菜地土壤重金属污染特征[J]. 环境污染与防治, 2018, 40(1):69-74.
FANG Yue-mei, ZHANG Xiao-ling, LIU Juan, et al. Pollution characteristics of heavy metals in vegetable soil in the mining area of Tonglvshan[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2018, 40(1):69-74.
- [5] 宋伟, 陈百明, 刘琳. 中国耕地土壤重金属污染概况[J]. 水土保持研究, 2013, 20(2):293-298.
SONG Wei, CHEN Bai-ming, LIU Lin. Soil heavy metal pollution of cultivated land in China[J]. *Research of Soil and Water Conservation*, 2013, 20(2):293-298.
- [6] 师荣光, 王德荣, 赵玉杰, 等. 城市再生水用于农田灌溉的水质控制指标[J]. 中国给水排水, 2006, 22(18):100-104.
SHI Rong-guang, WANG De-rong, ZHAO Yu-jie, et al. Water quality control indexes of reclaimed municipal wastewater for farmland irrigation[J]. *China Water & Wastewater*, 2006, 22(18):100-104.
- [7] 刘昌明, 陈志恺. 中国水资源现状评价和供需发展趋势分析[M]. 北京: 中国水利水电出版社, 2001.
LIU Chang-ming, CHEN Zhi-kai. Current situation evaluation and supply and demand trend analysis of water resources in China[M]. Beijing: China Water & Power Press, 2001.
- [8] 辛术贞, 李花粉, 苏德纯. 我国污灌污水中重金属含量特征及年代变化规律[J]. 农业环境科学学报, 2011, 30(11):2271-2278.
XIN Shu-zhen, LI Hua-fen, SU De-chun. Concentration characteristics and historical changes of heavy metals in irrigation sewage in China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2011, 30(11):2271-2278.
- [9] Bedbabis S, Ferrara G, Rouina B B, et al. Effects of irrigation with treated wastewater on olive tree growth, yield and leaf mineral elements at short term[J]. *Scientia Horticulturae*, 2010, 126(3):345-350.
- [10] 黄国忠, 赵强, 高金凤, 等. 再生水灌溉条件下土壤Cd的运移及模拟研究[J]. 灌溉排水学报, 2016, 35(1):27-31.
HUANG Guo-zhong, ZHAO Qiang, GAO Jin-feng, et al. Movement and simulation of soil Cd under reclaimed water irrigation[J]. *Journal of Irrigation and Drainage*, 2016, 35(1):27-31.
- [11] 国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 地下水质量标准 GB/T 14848—2017[S].
General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of PRC, Standardization Administration of PRC. Standard for groundwater quality GB/T 14848—2017[S].
- [12] 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, 2000.
LU Ru-kun. Methods for analysis of soil agrochemistry[M]. Beijing: China Agricultural Science and Technology Press, 2000.
- [13] 国家环境保护总局, 国家质量监督检验检疫总局. 城镇污水处理厂污染物排放标准 GB 18918—2002[S].
State Environmental Protection Administration of China, General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of PRC. Discharge standard of pollutants for municipal waste-water treatment plant GB 18918—2002[S].
- [14] 郑顺安, 李仪, 普锦成, 等. 污水灌溉条件下Cu在农田土壤中的运移及其模拟研究[J]. 浙江大学学报(农业与生命科学版), 2011, 37(3):343-354.
ZHENG Shun-an, LI Yi, PU Jin-cheng, et al. Evaluating transport of Cu in agricultural soils under sewage irrigation[J]. *Journal of Zhejiang University(Agric & Life Sci)*, 2011, 37(3):343-354.
- [15] 郑顺安. 我国典型农田土壤中重金属的转化与迁移特征研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2010.
ZHENG Shun-an. Studies on the transformation and transport of heavy metals in typical Chinese agricultural soils[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2010.
- [16] 山东省质量技术监督局. 山东省主要农作物灌溉定额 DB 37/T 1640—2010[S].
Shandong Bureau of Quality and Technical Supervision. Irrigation norm standard of main crops in Shandong Province DB37/T 1640—2010[S].
- [17] 孟国欣, 查同刚, 张晓霞, 等. 北京市污水处理厂污泥重金属污染特征和生态风险评价[J]. 生态环境学报, 2017, 26(9):1570-1576.
MENG Guo-xin, ZHA Tong-gang, ZHANG Xiao-xia, et al. Heavy metal pollution characteristics and ecological risk assessment of the sludge from wastewater treatment plants in Beijing[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2017, 26(9):1570-1576.
- [18] 包丹丹, 李恋卿, 潘根兴, 等. 苏南某冶炼厂周边农田土壤重金属分布及风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2011, 30(8):1546-1552.
BAO Dan-dan, LI Lian-qing, PAN Gen-xing, et al. Distribution and risk assessment of soil heavy metals around a smelter in South Jiangsu Province, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2011, 30(8):1546-1552.
- [19] 国家环境保护总局. 土壤环境质量标准 GB 15618—1995[S].
State Environmental Protection Administration of China. Environmental quality standard for soils GB 15618—1995[S].
- [20] Hakanson L. An ecological risk index for aquatic pollution control. A sedimentological approach[J]. *Water Research*, 1980, 14(8):975-1001.
- [21] 高鹏, 刘勇, 苏超. 太原城区周边土壤重金属分布特征及生态风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2015, 34(5):866-873.
GAO Peng, LIU Yong, SU Chao. Distribution and risk assessment of soil heavy metals in area surrounding Taiyuan City[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2015, 34(5):866-873.
- [22] 杨贞, 石辉, 王会霞, 等. Pb和Cd在壤土不同剖面土壤中的竞争吸附作用[J]. 土壤通报, 2017, 48(3):730-735.
YANG Zhen, SHI Hui, WANG Hui-xia, et al. Competitive adsorption behavior and mechanism toward Pb and Cd at different tier soil profiles[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2017, 48(3):730-735.
- [23] 林青. 土壤中重金属Cu、Cd、Zn、Pb吸附及迁移的实验研究[D]. 青岛: 青岛大学, 2008.

- LIN Qing. Experimental study on adsorption and migration of Cu, Cd, Zn, Pb in soil[D]. Qingdao: Qingdao University, 2008.
- [24] 刘娟娟. 铜、铬单一及复合体系在两种黏土矿物中吸附的差异及其机理研究[D]. 杨凌:西北农林科技大学, 2014.
- LIU Juan-juan. Study on the difference and mechanism of adsorption with Cu and Cr in two clay minerals[D]. Yangling: Northwest A&F University, 2014.
- [25] 李玉萍. 徐州和苏州土壤中铅铜锌镉的吸附解吸特性研究[D]. 北京:首都师范大学, 2007.
- LI Yu-ping. Adsorption and desorption characteristics with Pb, Cu, Zn and Cd of Xuzhou and Suzhou soils[J]. Beijing: Capital Normal University, 2007.
- [26] 赵忠明. 再生水灌溉对土壤重金属累积的影响及风险预测[D]. 北京:中国科学院研究生院, 2012.
- ZHAO Zhong-ming. Influence of reclaimed water irrigation on soil heavy metal accumulation and risk prediction[D]. Beijing: Graduate University of Chinese Academy of Sciences, 2012.
- [27] 魏益华, 徐应明, 周其文, 等. 再生水灌溉对土壤盐分和重金属累积分布影响的研究[J]. 灌溉排水学报, 2008, 27(3):5-8.
- WEI Yi-hua, XU Ying-ming, ZHOU Qi-wen, et al. Effects of irrigation with reclaimed water on soil salinization-alkalization and heavy metal distribution[J]. *Journal of Irrigation and Drainage*, 2008, 27(3):5-8.
- [28] 张铁军, 宋矗森, 陈莉荣, 等. 再生水灌溉对土壤盐渍化与重金属累积影响研究[J]. 节水灌溉, 2016(12):72-75.
- ZHANG Tie-jun, SONG Chu-sen, CHEN Li-rong, et al. Effect on reclaimed water irrigation on soil salinization and accumulation of heavy metals[J]. *Water Saving Irrigation*, 2016(12):72-75.
- [29] 陈励科, 马婷婷, 潘霞, 等. 复合污染土壤中土霉素的吸附行为及其对土壤重金属解吸影响的研究[J]. 土壤学报, 2015, 52(1):104-111.
- CHEN Li-ke, MA Ting-ting, PAN Xia, et al. Sorption behavior of oxytetracycline in complex contaminated soil and its effects on desorption of heavy metals in the soil[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2015, 52(1):104-111.
- [30] 陈成, 刘廷凤, 孙成. 土壤中铜与阿特拉津交互作用下的吸附行为研究[J]. 农业环境科学学报, 2016, 35(7):1294-1299.
- CHEN Cheng, LIU Ting-feng, SUN Cheng. Cosorption of Cu^{2+} and atrazine on soil[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2016, 35(7):1294-1299.