

我国耕地土壤重金属输入输出平衡变化分析

刘子青, 刘菁, 刘寒冰, 樊飞跃, 苏春利, 孙在金, 师华定, 梁家辉

引用本文:

刘子青, 刘菁, 刘寒冰, 樊飞跃, 苏春利, 孙在金, 师华定, 梁家辉. 我国耕地土壤重金属输入输出平衡变化分析[J]. 农业环境科学学报, 2023, 42(6): 1274–1284.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11654/jaes.2022-0863>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

污泥-凹凸棒石共热解生物炭对矿区重金属污染土壤的钝化修复效果研究

陶玲, 马奔, 李中兴, 周怡蕾, 任琚

农业环境科学学报. 2022, 41(6): 1251–1260 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-1297>

广西某采选废矿区重金属生态风险与源汇关系

毛志强, 田康, 刘本乐, 张晓辉, 卞子金, 黄标, 袁旭音, 吴龙华, 罗栋源

农业环境科学学报. 2021, 40(5): 987–998 <https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1338>

猪场粪水施用对设施白菜及土壤重金属的影响

程娟, 刘沐衡, 肖能武, 杨柳, 杜会英, 杜连柱, 张克强

农业环境科学学报. 2021, 40(11): 2559–2567 <https://doi.org/10.11654/jaes.2021-1030>

沈阳市新民设施菜地土壤重金属污染特征分析

郭畔, 宋雪英, 刘伟健, 李玉双, 魏建兵, 李秀颖, 夏思雨

农业环境科学学报. 2019, 38(4): 835–844 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-0883>

近十年中国土壤重金属污染源解析研究进展

陈雅丽, 翁莉萍, 马杰, 武晓娟, 李永涛

农业环境科学学报. 2019, 38(10): 2219–2238 <https://doi.org/10.11654/jaes.2018-1449>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

刘子青, 刘菁, 刘寒冰, 等. 我国耕地土壤重金属输入输出平衡变化分析[J]. 农业环境科学学报, 2023, 42(6): 1274–1284.

LIU Z Q, LIU J, LIU H B, et al. Analysis of the changes in the input and output balance of heavy metals in Chinese agricultural soils [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2023, 42(6): 1274–1284.

我国耕地土壤重金属输入输出平衡变化分析

刘子青^{1,2}, 刘菁¹, 刘寒冰¹, 樊飞跃¹, 苏春利^{2*}, 孙在金^{1*}, 师华定¹, 梁家辉¹

(1. 生态环境部土壤与农业农村生态环境监管技术中心, 北京 100012; 2. 中国地质大学环境学院, 武汉 430078)

摘要:为研究我国耕地土壤重金属输入输出平衡现状, 本研究根据2015—2020年公开发表的文献和统计数据, 建立了我国耕地土壤重金属的输入输出清单, 并与2006—2015年的清单进行对比分析。研究表明, 与2006—2015年相比, 2015—2020年大气沉降对我国耕地土壤8种重金属(Cd、Hg、As、Pb、Cr、Cu、Zn、Ni)的输入量降低了15.8%~65.4%, 灌溉水对Hg的输入量增加了86.8%, 化肥对Zn的输入量增加了5.9%, 畜禽粪便对Cu、Zn、Ni的输入量分别增加了19.4%、64.7%、6.6%, 市政污泥对As和Cr的输入量分别增加了22.8%和3.5%。我国耕地土壤Cd、Hg、As、Pb、Cr和Ni的净输入量分别下降了28.0%、54.1%、43.7%、47.8%、60.7%和48.4%, 对大气污染物排放和废水排放的严格管控、对化肥生产工艺和污泥净化工艺的优化、农作物产量的增加是造成重金属净输入量降低的主要原因; Cu和Zn的净输入量分别略微增加了2.4%和7.2%, 主要原因是《饲料卫生标准》和《肥料中有毒有害物质的限量要求》缺少对Cu、Zn含量的限制。总体来看, 我国当前耕地土壤重金属的输入量大于输出量, 重金属呈累积状态, 但累积量呈下降趋势。

关键词:耕地土壤; 重金属; 输入输出; 清单法

中图分类号: X53 文献标志码: A 文章编号: 1672-2043(2023)06-1274-11 doi:10.11654/jaes.2022-0863

Analysis of the changes in the input and output balance of heavy metals in Chinese agricultural soils

LIU Ziqing^{1,2}, LIU Jing¹, LIU Hanbing¹, FAN Feiyue¹, SU Chunli^{2*}, SUN Zaijin^{1*}, SHI Huading¹, LIANG Jiahui¹

(1. Technical Centre for Soil, Agricultural and Rural Ecology and Environment, Ministry of Ecology and Environment, Beijing 100012, China; 2. School of Environmental Studies, China University of Geosciences, Wuhan 430078, China)

Abstract: To study the current status and analyze the changes in the input and output balance of heavy metals in Chinese agricultural soils, this study established an input and output inventory of heavy metals in Chinese agricultural soils based on published literatures and statistical data from 2015 to 2020 and compared it with that from 2006 to 2015. The results showed that, compared with 2006 to 2015, the input of atmospheric deposition to eight heavy metals (Cd, Hg, As, Pb, Cr, Cu, Zn, and Ni) in Chinese agricultural soils decreased by 15.8%–65.4% in 2015 to 2020, input of irrigation water to Hg increased by 19.4%, 64.7%, and 6.6%, input of fertilizers to Zn increased by 5.9%, input of livestock manures to Cu, Zn, and Ni increased by 6.6%–64.7%, and input of sewage sludge to As and Cr increased by 22.8% and 3.5%, respectively. The net inputs of Cd, Hg, As, Pb, Cr, and Ni to Chinese agricultural soils decreased by 28.0%, 54.1%, 43.7%, 47.8%, 60.7%, and 48.4%, respectively. The main reasons for the decrease in heavy metal input were strict control of air pollutant emissions and wastewater discharges, optimization of fertilizer production processes and sludge purification processes, and the increase in crop yields. The net input of Cu and Zn increased by 2.4% and 7.2%, respectively, mainly due to the lack of restrictions on the content of Cu and Zn in the *Feed Health Standards* and the *Requirements for the Limits of Toxic and Hazardous Substances in Fertilizers*. The input of heavy metals to

收稿日期: 2022-08-30 录用日期: 2023-03-13

作者简介: 刘子青(1997—), 女, 广东韶关人, 硕士研究生, 研究方向为耕地土壤污染调查。E-mail: lzq@cug.edu.cn

*通信作者: 苏春利 E-mail: suchunli@163.com; 孙在金 E-mail: sunzaijin@tcare-mee.cn

基金项目: 国家重点研发计划项目(2018YFC1800203, 2018YFF0213401)

Project supported: National Key Research and Development Program of China(2018YFC1800203, 2018YFF0213401)

Chinese agricultural soils is generally greater than the output, and despite the accumulation of heavy metals, the accumulation is decreasing.

Keywords: agricultural soil; heavy metal; input and output; inventory method

耕地土壤是农产品生产的基础,当土壤被重金属污染时,农产品质量下降,并通过食物链危害人类健康。我国耕地土壤重金属含量总体低于风险管控值,但湖南、广东、新疆、甘肃、陕西等地的污染较为严重,主要污染物为Cd、Hg和Ni^[1]。目前已有许多省市开展了耕地土壤重金属污染风险管控工作^[2]。

分析土壤重金属的输入输出平衡,了解土壤重金属的主要来源途径,可以更有针对性地进行土壤重金属污染源头防治和风险管控。目前,已有许多学者对国内外耕地土壤重金属输入输出平衡进行了分析。Salman等^[3]、Karami等^[4]、Belon等^[5]、Nicholson等^[6]分别研究了埃及索哈杰南部、伊朗中部、法国、英国耕地土壤重金属的输入输出平衡。我国研究者对浙江省^[7]、海南岛^[8]、长株潭^[9]和珠三角地区^[10]制定了输入输出清单来评估耕地土壤中重金属的平衡。Luo等^[11]、Ni等^[12]、Shi等^[13]对我国耕地土壤编制了全国范围的重金属输入输出清单,分析了我国耕地土壤重金属的输入输出平衡。全国范围内的重金属输入输出平衡清单在耕地土壤重金属污染源头防治和环境管理中发挥了重要作用。

本研究根据2015—2020年公开发表的文献和国家统计数据,建立了我国耕地土壤重金属输入输出清单,输入途径包括大气沉降、灌溉水、化肥、畜禽粪便及市政污泥,输出途径包括作物移除、地表径流和地下渗滤。土壤中重金属的挥发和降解损失可以忽略不计,不作为输出途径考虑^[14]。此外,与Ni等^[12]建立的2006—2015年的清单进行对比,分析我国耕地土壤重金属输入输出的现状、变化及其原因,以期准确掌握我国耕地土壤重金属的累积状况,为耕地土壤环境管理提供基础支撑。

1 材料与方法

1.1 数据来源

检索Web of Science、Science Direct、中国知网数据库和维普中文科技期刊全文数据库,收集上述途径对耕地土壤重金属(Cd、Hg、As、Pb、Cr、Cu、Zn、Ni)的输入输出通量以及灌溉水、化肥、畜禽粪便、市政污泥、农作物中重金属含量的数据。文献筛选原则为:①文献发表时间为2015—2020年;②采样区域远离

工矿企业;③能够从文献的文字或图表中提取出不同途径的输入输出通量或灌溉水、化肥、畜禽粪便、市政污泥、农作物中重金属含量的均值、范围、标准差。经筛选,共选出135篇文献,包含全国29个省市的110个城市的相关数据(由于文献资料有限,统计地区不包括西藏自治区、中国香港、澳门特别行政区、中国台湾省和南海诸岛),各个省份的文献数量和城市分布见表1。由表1可知,前人的研究集中在人类活动密集区,因此本研究统计的数据主要反映我国人类活动密集区耕地土壤重金属输入输出平衡变化情况。利用耕地面积、灌溉面积、单位面积耕地灌溉用水量、化肥年施用量、畜禽的年饲养量、污泥农用量、农作物产量等公开的统计数据,参考倪润祥^[15]和石陶然^[16]的计算公式,重新计算文献数据,推导出不同途径对耕地土壤重金属的输入输出量。

1.2 质量平衡模型

利用质量平衡模型分析耕地土壤重金属的输入输出平衡,即通过计算耕地土壤重金属的总输入量和总输出量之差来分析重金属的输入输出平衡。耕地土壤重金属的输入输出量按照如下公式计算:

$$F_{in} = F_{atm} + F_{irr} + F_{fer} + F_{man} + F_{slu} \quad (1)$$

$$F_{out} = F_{crop} + F_{rof} + F_{lea} \quad (2)$$

$$\Delta F = F_{in} - F_{out} \quad (3)$$

式中: F_{in} 和 F_{out} 为所有途径的总输入量和总输出量($t \cdot a^{-1}$)。 F_{atm} 、 F_{irr} 、 F_{fer} 、 F_{man} 和 F_{slu} 是大气沉降、灌溉水、化肥、畜禽粪便和市政污泥对土壤重金属的输入量($t \cdot a^{-1}$)。 F_{crop} 、 F_{rof} 和 F_{lea} 是通过作物移除、地表径流和地下渗滤的输出量($t \cdot a^{-1}$)。 ΔF 为重金属的净输入量($t \cdot a^{-1}$)。

2 结果与讨论

2.1 输入输出平衡变化

2006—2015年和2015—2020年我国耕地土壤重金属输入输出量如表2所示。重金属总输入量由高到低的顺序为:Zn>Cu>Pb>Cr>Ni>As>Cd>Hg,与法国和英国重金属总输入量的排序一致^[5-6]。选取2006—2015年我国耕地土壤重金属输入输出清单进行比较^[12],并将重金属输入量的变化率列于表3。结果显示,Cd、Hg、As、Pb、Cr、Ni的总输入量分别下降了19.4%、50.1%、34.1%、43.2%、56.6%、47.0%,Cu和Zn

表1 研究区分布及文献数量
Table 1 Distribution of study areas and paper amount

地区 Region	城市 City	文献数量 Paper amount
安徽省	蚌埠市、巢湖市、池州市、芜湖市、宣城市	5
北京市	北京市	1
重庆市	重庆市	1
福建省	南平市、漳州市、龙岩市、三明市、福州市、永春县	6
甘肃省	白银市、兰州市、平凉市、庆阳市、威武市	5
广东省	佛山市、广州市、清远市、韶关市、珠海市等	5
广西壮族自治区	钦州市、北海市、防城港市、桂林市、兴业县等	15
贵州省	贵阳市、六盘水市、威宁县、兴仁县	4
海南省	海口市、文昌市、琼海市、澄迈县、临高县等	22
河北省	保定市、沧州市、秦皇岛市、石家庄市等	7
河南省	焦作市、洛阳市、濮阳市	3
黑龙江省	黑龙江省	1
湖北省	大冶县、十堰市、云梦县	3
湖南省	长沙县、湘潭县、株洲市、湘潭市、益阳市等	15
吉林省	吉林省	1
江苏省	南京市、东海县、苏州市、徐州市、扬州市等	7
江西省	抚州市、南昌市、赣州市	2
辽宁省	鞍山市、铁岭市、大连市、锦州市、沈阳市	5
内蒙古自治区	呼和浩特市	1
宁夏回族自治区	中卫市、石嘴山市	2
山东省	嘉祥县、金乡县、鱼台县、泗水县、微山县等	11
山西省	大同市、朔州市、平鲁区、应县等	17
陕西省	西安市、咸阳市、宝鸡市、杨陵区、铜川市等	12
上海市	上海市	1
四川省	德阳市、乐山市	22
天津市	天津市	1
新疆维吾尔自治区	喀什市	1
云南省	昆明市、铜厂乡	2
浙江省	金华市、丽水市、绍兴市、嘉兴市、湖州市等	10

分别增加了0.8%和11.5%。

与2006—2015年相比^[12],我国耕地土壤Cu和Zn的净输入量略微升高,Cd、Hg、As、Pb、Cr、Ni的净输入量分别下降了28.0%、54.1%、43.7%、47.8%、60.7%、48.4%。目前,我国耕地土壤重金属的输入大于输出,重金属呈累积状态,但累积量呈下降趋势。这些结果将有助于了解耕地土壤重金属污染的整个过程,为耕地土壤环境管理和政策制定提供依据。

每个输入途径在总输入途径中的占比即为不同输入途径对耕地土壤重金属的贡献率,如图1所示。

2015—2020年,畜禽粪便对Cu和Zn的总输入量贡献最大,分别为74.6%和62.6%,大气沉降对其他重金属的贡献最大,市政污泥的贡献最小。然而,2006—2015年,除Cu主要来源于畜禽粪便,其他重金属主要来源于大气沉降。这与部分国外研究区存在差异。例如,在法国,除Cd和Cr外,其他重金属主要来源于畜禽粪便^[5];在英国,除Cu和Cr外,其他重金属主要来源于大气沉降^[6],这种差异可能是由不同的农业生产活动和工业活动造成的。

除作物移除外,本研究还考虑了地表径流和地下渗滤对耕地土壤重金属的输出。不同输出途径对耕地土壤重金属的输出存在差异,如表2所示。作物移除是Cd、Hg、Cu、Ni输出的主要途径,地表径流是As、Pb、Cr、Zn输出的主要途径,地下渗滤对重金属的输出贡献最小。由表3可知,除了Cu和Ni,其他重金属的总输出量均上升,这可能是由输出途径的增加以及农作物产量的增加所导致。与2006—2015年相比,

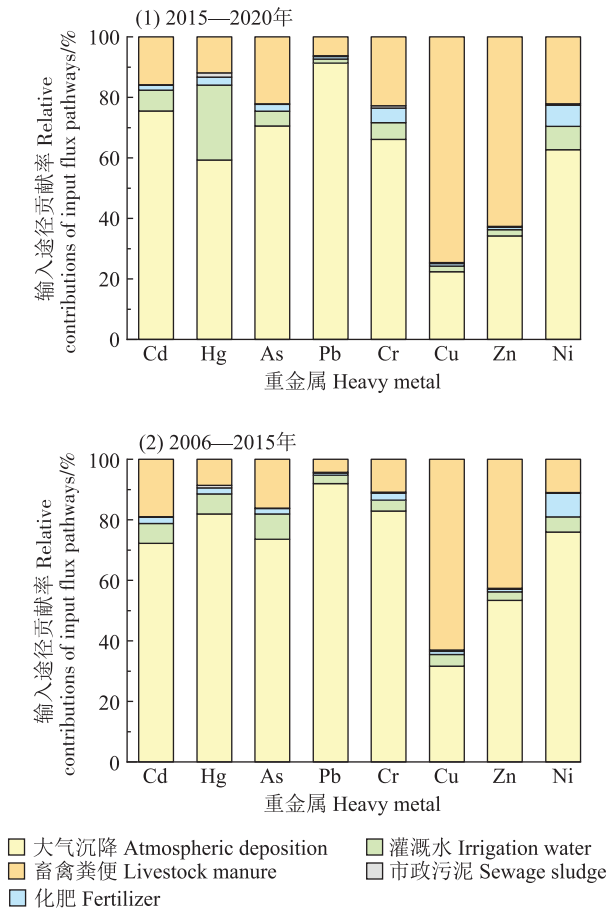


图1 我国耕地土壤重金属主要输入途径贡献率
Figure 1 Relative contributions of different input flux pathways of heavy metals in agricultural soils in China

表2 我国耕地土壤重金属输入输出量(t·a⁻¹)

Table 2 Annual heavy metals inputs and outputs to agricultural soils in China(t·a⁻¹)

项目Item	时期Period	Cd	Hg	As	Pb	Cr	Cu	Zn	Ni
大气沉降	2006—2015	553.0	124.0	4 552.0	25 906.0	21 783.0	15 606.0	98 414.0	10 908.0
	2015—2020	465.8	44.8	2 879.3	14 605.8	7 538.2	11 109.2	70 325.6	4 768.4
灌溉水	2006—2015	50.0	10.0	520.0	780.0	940.0	1 900.0	5 300.0	720.0
	2015—2020	42.4	18.7	199.6	212.4	631.2	949.9	4 302.8	587.7
化肥	2006—2015	16.0	3.0	109.0	211.0	618.0	505.0	1 489.0	1 114.0
	2015—2020	9.8	2.0	91.4	134.3	548.4	399.4	1 576.4	532.0
畜禽粪便	2006—2015	145.0	13.0	1 001.0	1 219.0	2 851.0	31 049.0	78 599.0	1 581.0
	2015—2020	97.5	9.0	901.9	993.6	2 593.7	37 067.5	128 847.1	1 681.5
市政污泥	2006—2015	1.4	1.3	7.4	60.0	85.0	224.0	669.0	36.0
	2015—2020	1.4	1.1	9.1	48.3	88.0	157.3	611.1	35.2
作物移除	2015—2020	88.2	8.8	227.9	220.0	654.1	2 660.1	17 263.6	580.2
地下渗滤	2015—2020	3.7	0.2	2.9	10.4	6.2			
地表径流	2015—2020	15.2	0.8	525.8	1 160.3	728.1	1 002.8	19 088.3	
总输入量	2006—2015	765.4	151.3	6 189.4	28 176.0	26 277.0	49 284.0	184 471.0	14 359.0
	2015—2020	616.9	75.5	4 081.3	15 994.4	11 399.5	49 683.4	205 663.0	7 604.8
总输出量	2006—2015	57.0	8.0	286.0	174.0	829.0	4 340.0	26 539.0	743.0
	2015—2020	107.1	9.8	756.5	1 390.8	1 388.4	3 662.9	36 351.9	580.2
净输入量	2006—2015	708.4	143.3	5 903.4	28 002.0	25 448.0	44 944.0	157 932.0	13 616.0
	2015—2020	509.8	65.7	3 324.7	14 603.5	10 011.1	46 020.5	169 311.1	7 024.5

表3 2006—2015年和2015—2020年我国耕地土壤重金属输入输出量的变化率(%)

Table 3 Change of heavy metals inputs to agricultural soils in China from 2006—2015 to 2015—2020(%)

项目Item	Cd	Hg	As	Pb	Cr	Cu	Zn	Ni
大气沉降	-15.8	-63.9	-36.7	-43.6	-65.4	-28.8	-28.5	-56.3
畜禽粪便	-32.7	-30.8	-9.9	-18.5	-9.0	19.4	63.9	6.4
化肥	-38.8	-33.0	-16.2	-36.3	-11.3	-20.9	5.9	-52.2
灌溉水	-15.3	86.8	-61.6	-72.8	-32.9	-50.0	-18.8	-18.4
市政污泥	-2.4	-18.6	22.8	-19.4	3.5	-29.8	-8.7	-2.3
总输入量	-19.4	-50.1	-34.1	-43.2	-56.6	0.8	11.5	-47.0
总输出量	87.9	22.5	164.5	699.3	67.5	-15.6	37.0	-21.9
净输入量	-28.0	-54.1	-43.7	-47.8	-60.7	2.4	7.2	-48.4

2015—2020年我国农作物的年均产量增加了13.0%^[17],这可能导致作物收获对耕地土壤重金属的输出量增加,从而造成总输出量增加。土壤中Cu主要通过作物移除输出,而由表4可知灌溉水中Cu的含量呈下降趋势,当灌溉水中Cu的含量降低时,作物对Cu的吸收量也会随之降低,因此猜测Cu的总输出量降低可能是由灌溉水中Cu的含量降低所导致。Ni主要通过作物移除从土壤中输出,由表5可知氮肥、钾肥、磷肥和复合肥中Cu的含量均呈下降趋势,当化

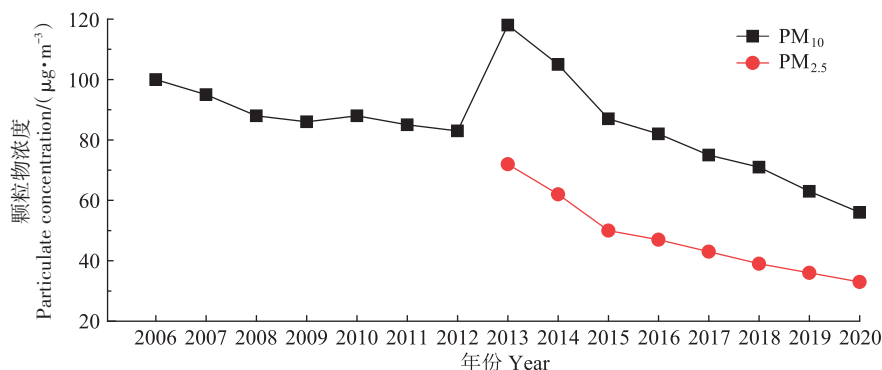
肥中Cu的含量降低时,农作物对Cu的吸收量也会随之降低,因此推测Cu的总输出量降低可能是由化肥中Cu的含量降低所导致的。

在2015—2020年公开发表的文献中,关于耕地土壤重金属输出的文献较少,部分重金属的输出量评估结果可能存在偏差。本研究通过多个数据库广泛收集相关文献,减少了单一数据库收录文献不全面的影响,尽可能减少偏差。

2.2 不同途径输入量变化

2.2.1 大气沉降

大气沉降对耕地土壤Cd、Hg、As、Pb、Cr、Cu、Zn、Ni的输入量分别降低了15.8%、63.9%、36.7%、43.6%、65.4%、28.8%、28.5%、56.3%,这与大气污染物排放量的下降有关。工业生产、交通运输、化石燃料燃烧等产生大量的有害气体和粉尘,经过自身重力沉降和降雨进入土壤^[18]。大气颗粒物的质量浓度与大气重金属沉降量的变化基本一致,相比于2006—2015年^[12],2015—2020年PM₁₀的浓度下降了25.8%;从2013年到2020年,PM_{2.5}的浓度不断下降^[19](图2)。2015—2020年,我国规模以上采矿企业和金属冶炼企业的数量分别减少了26.2%和22.9%,煤炭、煤油、液化石油气的生活消耗量分别下降了32.0%、20.7%、42.5%,其中煤炭在能源



数据来源于《中国生态环境状况公报》

Data from Report on the State of the Ecology and Environment in China

图2 2006—2020年我国大气颗粒物质量浓度变化趋势

Figure 2 Change of atmospheric particulate concentration in China from 2006 to 2020

消耗总量中的比下降了7%^[17]。这些变化最终导致大气重金属沉降通量的降低。

通过文献搜集得到英国、法国、美国等31个国家的大气重金属沉降通量,并将这31个国家的大气重金属沉降通量的几何均值用于表示国外研究区大气重金属沉降通量^[20-35]。与国外研究区相比,我国的大气沉降通量仍较高,其中As和Cr的大气沉降通量约比国外研究区高1个数量级,如图3所示。受人为活动的影响,我国有大量的重金属通过大气排放进入生物圈,这些排放物远超过其他国家^[31]。造成这种差异的主要原因可能是我国的工业活动较多以及大气沉降通量的监测方法不同^[5,31]。德国、挪威、美国等国家广泛应用苔藓被动采样技术进行大气重金属环境监测^[32-35],而我国主要采用传统的被动采集技术^[18],利用

苔藓植物评估大气沉降通量的方法尚未完善,标准化程度较低,且其准确性和稳定性受苔藓植物的生境条件影响,这可能是造成监测的大气沉降通量偏低的原因^[3,36]。

2.2.2 灌溉水

与2006—2015年相比^[12],除Hg外,灌溉水对Cd、As、Pb、Cr、Cu、Zn、Ni的输入量分别下降了15.3%、61.6%、72.8%、32.9%、50.0%、18.8%、18.4%。这与灌溉水中重金属的含量和灌溉用水量的变化有关。灌溉水中As、Pb、Cu的含量降低,其他重金属的含量升高,故灌溉用水量是控制重金属输入量的最主要因素。《中国水资源公报2020》显示,2015—2020年,我国农业用水总量下降了6.2%,农田灌溉水有效利用系数提高了5.04%,使得重金属的输入量降低。

在污水灌溉被全面禁止后,我国主要利用地表径流和地下水灌溉农田,但农药化肥的不合理使用以及废水的随意排放均会对灌溉水造成污染。与2006—2015年相比^[12],灌溉水对Hg的输入量增加了86.8%,其主要原因是灌溉水中Hg的含量增加。与2006—2015年相比,我国耕地灌溉水中Hg的含量增加了140.54%,但未超过GB 5084—2021《农田灌溉水水质标准》中的最低限值。农药施用通常采用喷雾方式,在此过程中部分农药会落到水生作物的水体当中,且这些残留的农药会随水体迁移到沟渠或河流等灌溉水中。根据联合国粮农组织(FAO)统计数据,2015—2020年我国农药施用量从177.24万 $t \cdot a^{-1}$ 增加到177.37万 $t \cdot a^{-1}$ ^[37],水体残留农药的量也会随之增加。虽然有机汞农药已被禁用,但常用的杀虫剂和除草剂中仍含有微量的Hg^[38],因此推测农药施用量的增加

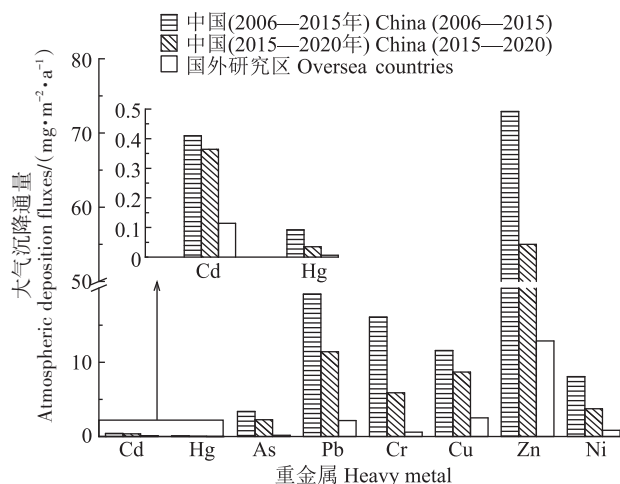


图3 我国和国外不同重金属大气沉降通量

Figure 3 Atmospheric deposition flux of heavy metals in China and overseas countries

可能会导致灌溉水对土壤 Hg 输入量的增加。2016—2019 年,我国制造业增长了 26.1%,烧碱和氯这类生产原材料的需求也随之增大^[17]。Hg 可以从烧碱和氯的生产过程中释放出来,并进入沟渠和灌溉渠中^[39]。2015—2020 年我国废水中 Hg 的排放量增长了 4.5%^[40]。因此,当地表径流和地下水受到工业废水及生活废水的污染时,灌溉水对耕地土壤 Hg 的输入量增加。工业废水是向自然水体排放 Hg 的主要人为来源^[41],所以应该加强对工业废水排放的管控,防止工业废水的随意排放对灌溉水造成污染。《“十四五”工业绿色发展规划》提出到 2025 年,重点行业主要污染物排放强度降低 10%,所以应降低工业废水的排放强度,从源头上控制污染物的产生,降低灌溉水被污染的风险。

由表 4 可知,2015—2020 年,灌溉水中 8 种重金属的含量均显著低于《农田灌溉水水质标准》(GB 5084—2021)中的最低限值,但长期输入仍会造成重金属在耕地土壤中的不断累积。《农田灌溉水水质标准》(GB 5084—2021)中增加了总镍的限值,明确了农田灌溉水质监督管理主体,明确了禁止向农田灌溉渠道排放工业废水或医疗污水。同时,为推动农村生活污水资源化利用,将处理后的农村生活污水纳入标准适用范围。新标准加强了对农田灌溉水的监督管理,对促进农业可持续发展和保障土壤生态环境安全意义重大。

2.2.3 化肥

化肥对 Cd、Hg、As、Pb、Cr、Cu、Ni 的输入量降低了 38.8%、33.0%、16.2%、36.3%、11.3%、20.9%、52.2%,这与化肥中重金属的含量及化肥施用量的变化有关。2015—2020 年,氮肥、磷肥、钾肥的年施用量降低了 15.63%~22.45%,复合肥的年施用量增加了

2.08%^[17]。化肥中重金属的含量如表 5 所示。除氮肥中的 Cr、钾肥中的 Cr 和 Cu、磷肥中的 Zn 外,化肥中重金属的含量均降低。磷肥和复合肥中 Cr、Cu 的含量远高于氮肥和钾肥,所以氮肥和钾肥对 Cr、Cu 输入量变化的贡献可忽略不计。《肥料登记管理办法》对申请登记的肥料产品重金属含量进行严格把关,降低了化肥对部分重金属的输入量。此外,施肥技术的不断改进和化肥生产工艺的不断优化也使得化肥对耕地土壤重金属的输入量降低。

化肥对 Zn 的输入量增加了 5.9%,这与磷肥中 Zn 含量的升高以及复合肥年施用量的增加有关。磷矿石与浓硫酸生产湿法磷肥的过程会改变 Zn 的赋存形态,促使 Zn 活化,最终导致磷肥中 Zn 的有效性和活性增加^[42]。此外,《肥料中有毒有害物质的限量要求》(GB 38400—2019)中缺少对 Zn 的限制,导致化肥中 Zn 的含量增加,从而导致化肥对土壤 Zn 的输入量增加。

2022 年 1 月发布了最新修订的《肥料登记管理办法》,推广缓释肥、水溶肥等新型肥料,改进施肥措施,减少化肥施用量,以保证肥料产业的健康发展^[43]。《“十四五”全国农业绿色发展规划》提出,到 2025 年,化肥施用量持续减少,主要农作物化肥利用率从 2020 年的 40.2%,提高到 2025 年的 43%^[44]。这些政策有助于降低化肥对耕地土壤重金属的输入。

2.2.4 畜禽粪便

畜禽粪便对 Cd、Hg、As、Pb、Cr 的输入量分别降低了 32.7%、30.8%、9.9%、18.5%、9.0%。由表 6 可知,畜禽粪便中 Cd、Hg、Pb 的含量均下降。2015—2020 年,我国家禽的饲养量增加了 15.5%^[17],其他畜禽的饲养量均下降。因此,畜禽粪便重金属的含量是控制重金属输入的主要因素。《畜禽规模化养殖污染防治条例》的严格实施,控制了畜禽粪便中重金属的含量,从

表 4 灌溉水中重金属的含量(μg·L⁻¹)

Table 4 Concentrations of heavy metals in irrigation water(μg·L⁻¹)

项目 Item	Cd	Hg	As	Pb	Cr	Cu	Zn	Ni
样本数量	408	187	346	388	193	204	255	102
范围	ND~1.83	ND~1.80	ND~26	ND~354	ND~124.30	ND~124	ND~210.20	ND~35
几何均值	0.20	0.09	0.96	1.02	3.02	4.55	20.62	2.82
标准差	0.40	0.35	1.34	62.49	30.86	29.94	65.28	9.26
2006—2015 年	0.13	0.04	1.34	2.01	2.41	4.86	13.53	1.84
GB 5084—2021	水田	10	1	50	200	100	500	2 000
	旱地	10	1	100	200	100	1 000	2 000
	菜地	10	1	50	200	100	1 000	2 000

注:“ND”表示未检出。下同。
Note:“ND” indicates not detected. The same below.

表5 化肥中重金属的含量($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)
Table 5 Content of heavy metals in fertilizers($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)

	项目 Item	Cd	Hg	As	Pb	Cr	Cu	Zn	Ni
氮肥	样本数量	79	79	64	72	61	98	109	67
	范围	ND~3.55	ND ~1.81	ND ~2.77	ND ~8.25	0.01~23.35	0.20~32.10	0.40~56.30	0.13~32.72
	几何均值	0.026	0.018	0.135	1.038	2.947	0.874	4.148	1.219
	标准差	0.10	0.05	0.34	2.06	3.51	1.03	10.14	10.16
	2006—2015 年	0.041	0.030	0.145	1.080	1.936	1.631	3.010	14.630
磷肥	样本数量	261	251	258	265	257	286	298	214
	范围	ND~20.50	ND~9.72	ND~26.78	ND~52.30	ND~156.93	0.84~10.13	2.56~977.53	0.41~56.41
	几何均值	0.353	0.109	4.488	7.769	36.815	16.808	147.877	21.984
	标准差	0.59	0.16	3.77	27.44	53.65	18.30	106.10	15.95
	2006—2015 年	0.490	0.111	4.520	11.350	38.600	17.380	51.300	22.050
钾肥	样本数量	52	41	43	58	55	56	67	45
	范围	ND~4.60	ND~2.21	ND~5.30	0.01~23.88	ND~32.03	0.68~58.40	1.18~104.06	0.37~43.43
	几何均值	0.088	0.028	0.113	1.304	3.285	3.626	4.380	3.520
	标准差	0.08	0.02	0.10	8.39	1.63	5.83	2.71	10.29
	2006—2015 年	0.090	0.030	0.350	3.420	2.390	2.800	5.150	4.210
复合肥	样本数量	875	661	698	965	892	987	1269	654
	范围	ND~63.81	ND~5.20	ND~26.82	ND~22.93	ND~45.20	0.01~48.89	0.68~134	1.50~42.83
	几何均值	0.293	0.037	2.653	2.585	10.621	11.430	22.950	15.614
	标准差	1.64	0.67	4.61	4.95	5.87	11.76	81.86	15.77
	2006—2015 年	0.490	0.037	2.980	3.090	10.650	13.860	43.780	25.530
GB 38400—2019		10	5	50	200	500			600

源头上控制了畜禽粪便对耕地土壤重金属的输入量。

畜禽粪便中Cu、Zn、Ni的含量升高,导致它们的输入量增加。Cu和Zn常被用作饲料添加剂,以提升畜禽的养殖效率。Ni具有调节核酸和蛋白质代谢,参与反刍动物消化代谢调节等功能,是动物营养中的必需微量元素,因此也常被用作饲料添加剂^[45]。在猪饲料中添加 CuSO_4 可提升猪的抗菌能力。Zn是酶的组分,能加快畜禽的代谢,促进畜禽的生长^[46-47]。但只有少量重金属可以被动物吸收,大部分会随其粪便排出^[48-49],从而造成重金属的累积。此外,《生物有机肥料》(NY 884—2012)未限制畜禽粪便中Cu、Zn、Ni的含量,缺少对Cu、Zn、Ni的控制,使其通过畜禽粪便进入土壤的风险增大。

2.2.5 市政污泥

与2006—2015年相比^[12],市政污泥对土壤As、Cr的输入量增加了22.8%、3.5%,对Cd、Hg、Pb、Cu、Zn、Ni的输入量分别下降了2.4%、18.6%、19.4%、29.8%、8.7%、2.3%。Ni等^[12]利用1999—2006年的数据,估算的2006—2015年的输入量可能偏小。污泥的施用量和污泥重金属的含量是影响重金属输入量的主要因

素^[50]。市政污泥中8种重金属的平均含量均低于《农用污泥中污染物控制标准》(GB 4284—2018)、《城镇污水处理厂污染物排放标准》(GB 18918—2002)、《城镇污水处理厂污泥处置农用泥质》(GB 24188—2009)的最低限值,如表7所示。

工业废水、生活污水、降雨是城镇污水处理厂污水中的重金属的主要来源。生活污水中的As和Cr主要来源于油漆、洗涤用品、防腐剂、润滑油等^[51]。随着居民消费水平的提升,生活污水中的As和Cr的含量增加,最终导致污泥对As和Cr的输入量增加。2015—2020年市政污泥的产量增长了22.6%^[41]。土地利用是我国污泥的主要处置方式^[52]。因此,为降低污泥农用的危害,需改善污泥的生产工艺,降低其重金属含量,并加强对污泥重金属的管控。

2.3 变化原因及对策

与2006—2015年相比,2015—2020年我国耕地土壤Cd、Hg、As、Pb、Cr、Ni的净输入量分别大幅下降了28.0%、54.1%、43.7%、47.8%、60.7%、48.4%,初步判断这是由于我国对大气污染物排放、废水排放、化肥生产、污泥的净化进行了严格管控,有效控制了农

表6 畜禽粪便中重金属的含量(mg·kg⁻¹)
Table 6 Content of heavy metals in livestock manures(mg·kg⁻¹)

项目 Item		Cd	Hg	As	Pb	Cr	Cu	Zn	Ni
禽类粪	样本数量	344	255	268	331	310	434	495	318
	范围	ND~5.10	ND~1.51	ND~23.60	ND~36.76	ND~186.83	5.00~188.08	5.00~981.56	0.42~23.32
	几何均值	0.49	0.07	2.75	7.05	22.79	55.31	265.32	8.05
	标准差	1.29	0.17	5.43	6.70	18.42	41.68	257.86	5.06
	2006—2015年	0.50	0.07	3.81	7.65	25.17	76.4	289.97	7.08
牛粪	样本数量	259	241	220	266	247	288	315	235
	范围	ND~3.40	ND~1.78	0.01~8.60	ND~35.45	ND~217.30	1.38~179.35	7.00~340.53	1.50~35.87
	几何均值	0.40	0.02	1.14	5.57	9.34	37.51	149.77	7.27
	标准差	0.70	0.03	1.97	3.26	14.76	23.77	76.93	2.84
	2006—2015年	0.39	0.04	2.43	6.06	12.01	55.85	162.23	6.62
羊粪	样本数量	110	91	107	120	108	116	142	87
	范围	ND~8.35	ND~3.80	ND~4.64	ND~75.61	ND~99.85	2.12~189.34	1.40~265.33	0.35~28.20
	几何均值	0.58	0.08	0.87	3.70	5.20	27.14	63.83	6.65
	标准差	0.34	0.02	0.56	0.08	5.43	16.10	60.02	5.79
	2006—2015年	0.59	0.1	0.87	3.76	5.2	23.91	36.49	2.93
猪粪	样本数量	635	517	604	656	560	765	819	523
	范围	0.01~4.60	ND~5.40	0.22~62.34	ND~43.30	ND~85.23	4.33~926.95	5.52~2 088.80	1.45~77.30
	几何均值	0.45	0.03	5.97	4.54	12.23	263.04	902.36	8.72
	标准差	0.88	0.08	11.09	8.82	9.57	263.26	978.75	3.49
	2006—2015年	1.06	0.06	8.53	5.62	13.74	298.98	712.13	10.48
NY 884—2012		3	2	15	50	150			
德国腐熟堆肥标准		1.5	1		150	100	100	400	20

表7 市政污泥中重金属的含量(mg·kg⁻¹)
Table 7 Content of heavy metals in sewage sludge(mg·kg⁻¹)

项目 Item		Cd	Hg	As	Pb	Cr	Cu	Zn	Ni
样本数量		306	134	140	319	317	301	314	250
范围		ND~7.69	0.04~7.16	ND~25.11	1.41~328.3	11.18~725	19.33~1 002	75.23~47 680	1.80~228
几何均值		1.18	0.92	7.88	41.90	76.29	136.36	529.75	30.49
标准差		1.11	1.53	5.88	33.80	71.65	151.85	603.11	34.17
GB 18918—2002	pH < 6.5	5	5	75	300	600	800	2 000	100
	pH≥6.5	20	15	75	1 000	1 000	1 500	3 000	200
GB 24188—2009		20	25	75	1 000	1 000	1 500	4 000	200
GB 4284—2018		3	3	30	300	500	500	1 200	100

业生产和工业活动对耕地土壤重金属的输入。同时,农作物产量的增加也是重金属净输入量降低的原因。Cu和Zn的净输入量分别略微升高了2.4%和7.2%,这主要是由于畜禽粪便中Cu和Zn含量的升高。建议完善《饲料卫生标准》,增设Cu和Zn的最高限量标准,控制我国饲料中Cu和Zn的添加量,从源头上减少Cu和Zn的输入。在畜禽粪便的堆肥过程中加入钝化剂,优化堆肥工艺参数,可降低畜禽粪便中重金属的生物有效性,从输入过程中降低畜禽粪便的还田

风险^[53]。此外,还需加强对化肥中Cu和Zn的限制,完善《肥料中有毒有害物质的限量要求》中Cu和Zn的最高限量标准,提升化肥生产中原材料的质量,优化化肥的生产工艺,降低化肥中重金属的含量^[42]。

3 结论与展望

(1)与2006—2015年相比,2015—2020年我国耕地土壤Cu和Zn的总输入量分别增加了0.8%和11.5%,其他重金属的总输入量均下降;2015—2020

年,除了Cu和Ni,其他重金属的总输出量均上升。2015—2020年,大气沉降对除Cu和Zn以外的重金属的贡献最大,市政污泥的贡献率最小。2006—2015年,除Cu主要来源于畜禽粪便,其他重金属主要来源于大气沉降。

(2)与2006—2015年相比,2015—2020年大气沉降对我国耕地土壤重金属的输入量均降低,灌溉水对Hg的输入量增加了86.8%,化肥对Zn的输入量增加了5.9%,畜禽粪便对Cu、Zn、Ni的输入量增加了6.6%~64.7%,市政污泥对As、Cr的输入量分别增加了22.8%、3.5%。

(3)2015—2020年我国耕地土壤Cu和Zn的净输入量均升高,其他重金属的净输入量大幅下降。目前,我国耕地土壤重金属的输入量大于输出量,重金属呈累积状态,但累积量不断降低。

值得注意的是,本研究统计了2015—2020年的文献数据,时间相对较短,文献资料有限,部分地区未发表相关文献,因此统计的研究区无法与Ni等^[12]完全保持一致,可能导致对比结果存在偏差,后续研究可扩大统计的时间范围,补充收集最新相关文献,增加数据对比的可靠性。除了大气沉降、灌溉水、化肥、畜禽粪便及市政污泥,农药施用也会使部分重金属进入土壤中,因此后续可考虑农药施用对土壤重金属的输入量。此外,本研究利用全国畜禽粪便和污泥农用率的平均值计算这两个途径土壤重金属的输入量,结果存在不确定性。因此,后续可补充收集2015—2020年与2006—2015年土壤重金属含量的数据来检验结果的可靠性。

参考文献:

- [1] 周江明. 中国耕地重金属污染现状及其人为污染源浅析[J]. 中国土壤与肥料, 2020(2): 83-92. ZHOU J M. The present status of heavy metal(loid)s pollution in farmland soils and analysis of polluting sources in China[J]. *Soil and Fertilizer Sciences in China*, 2020(2): 83-92.
- [2] 童文彬, 郭彬, 林义成, 等. 衢州典型重金属污染农田镉、铅输入输出平衡分析[J]. 核农学报, 2020, 34(5): 1061-1069. TONG W B, GUO B, LIN Y C, et al. Assessment of input-output patterns of Cd and Pb of typical heavy metal polluted agricultural land in Quzhou[J]. *Journal of Nuclear Agricultural Sciences*, 2020, 34(5): 1061-1069.
- [3] SALMAN S A, ELNAZER A A, NAZER H A E. Integrated mass balance of some heavy metals fluxes in Yaakob village, south Sohag, Egypt [J]. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 2017, 14(5): 1011-1018.
- [4] KARAMI M, AMINI M, AFYUNI M, et al. Agricultural zinc fluxes into soils and crops of central Iran at regional scale[J]. *Archives of Agronomy*

- and Soil Science*, 2014, 60(3): 437-456.
- [5] BELON E, BOISSON M, DEPORTES I Z, et al. An inventory of trace elements inputs to French agricultural soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 439: 87-95.
- [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] SHI T R, MA J, WU F Y, et al. Mass balance-based inventory of heavy metals inputs to and outputs from agricultural soils in Zhejiang Province, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 649: 1269-1280.
- [8] JIANG W, HOU Q Y, YANG Z F, et al. Annual input fluxes of heavy metals in agricultural soil of Hainan Island, China[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, 21(13): 7876-7885.
- [9] XIE Y H, ZHU J, LIU S H, et al. Input and output of cadmium (Cd) for paddy soil in central south China: Fluxes, mass balance, and model predictions[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2020, 27(17): 21847-21858.
- [10] 周永章, 沈文杰, 李勇, 等. 基于通量模型的珠江三角洲经济区土壤重金属地球化学累积预测预警研究[J]. 地球科学进展, 2012, 27(10): 1115-1125. ZHOU Y Z, SHEN W J, LI Y, et al. A study of srediction and early-warning forecast on geochemical accumulation of soil heavy metals based on flux model in Pearl River Delta Economic Zone[J]. *Advances in Earth Science*, 2012, 27(10): 1115-1125.
- [11] 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.
- [12] NI R X, MA Y B. Current inventory and changes of the input/output balance of trace elements in farmland across China[J]. *PLoS One*, 2018, 13(6): 0199460.
- [13] SHI T, MA J, WU X, et al. Inventories of heavy metal inputs and outputs to and from agricultural soils: a review[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 164: 118-124.
- [14] FAN T, LONG T, LU Y, et al. Meta-analysis of Cd input-output fluxes in agricultural soil[J]. *Chemosphere*, 2022, 303: 134974.
- [15] 倪润祥. 中国农田土壤重金属输入输出平衡和风险评价研究[D]. 北京: 中国农业科学院, 2017. NI R X. Study on inventory and changes of input/output balance of heavy metals in farmland in China and heavy metals pollution risk assessment[D]. Beijing: Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2017.
- [16] 石陶然. 基于输入输出清单的浙江省农田土壤重金属预测预警及污染状况研究[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2019. SHI T R. Prediction and early-warning forecast on heavy metals and their pollution status in agricultural soils in Zhejiang Province, China based on input-output inventory[D]. Yangling: Northwest A&F University, 2019.
- [17] 中华人民共和国国家统计局. 中国统计年鉴2021[M]. 北京: 中国统计出版社, 2021: 138-263. National Bureau of Statistics of the People's Republic of China. China statistical yearbook 2021[M]. Beijing: China Statistics Press, 2021: 138-263.
- [18] 崔姗姗, 李占彬, 朱平, 等. 贵州遵义地区镉大气沉降通量与表层

- 土壤分布特征[J]. 环境化学, 2022, 41(4): 1324–1334. CUI S S, LI Z B, ZHU P, et al. Atmospheric deposition flux of cadmium and distribution characteristics of surface soil in Zunyi, Guizhou[J]. *Environmental Chemistry*, 2022, 41(4): 1324–1334.
- [19] 中华人民共和国生态环境部. 中国生态环境状况公报 2020[R]. 北京: 中华人民共和国生态环境部, 2020: 8–10. Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. Bulletin on the state of the ecology and environment in China 2022[R]. Beijing: Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, 2020: 8–10.
- [20] CASTILLO S, DE LA ROSA J D, DE LA CAMPA A M S, et al. Heavy metal deposition fluxes affecting an Atlantic coastal area in the south-west of Spain[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 77: 509–517.
- [21] PEARSON C, HOWARD D, MOORE C, et al. Mercury and trace metal wet deposition across five stations in Alaska: controlling factors, spatial patterns, and source regions[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(10): 6913–6929.
- [22] HALSTEAD M J R, CUNNINGHAME R G, HUNTER K A. Wet deposition of trace metals to a remote site in Fiordland, New Zealand[J]. *Atmospheric Environment*, 2000, 34(4): 665–676.
- [23] HOVMAND M F, KEMP K, KYSTOL J, et al. Atmospheric heavy metal deposition accumulated in rural forest soils of Southern Scandinavia [J]. *Environmental Pollution*, 2008, 155(3): 537–541.
- [24] HU G P, BALASUBRAMANIAN R. Wet deposition of trace metals in Singapore[J]. *Water Air and Soil Pollution*, 2003, 144(1): 285–300.
- [25] MIJIC Z, STOJIC A, PERISIC M, et al. Seasonal variability and source apportionment of metals in the atmospheric deposition in Belgrade[J]. *Atmospheric Environment*, 2010, 44(30): 3630–3637.
- [26] MONTOYA-MAYOR R, FERNANDEZ-ESPINOSA A J, SEJJO-DELGADO I, et al. Determination of soluble ultra-trace metals and metalloids in rainwater and atmospheric deposition fluxes: a 2-year survey and assessment[J]. *Chemosphere*, 2013, 92(8): 882–891.
- [27] PENEZIC A, MILINKOVIC A, ALEMPIJEVIC S B, et al. Atmospheric deposition of biologically relevant trace metals in the eastern Adriatic coastal area[J]. *Chemosphere*, 2021, 283: 68–96.
- [28] EYRIKH S, SHOL L, SHINKARUK E. Assessment of mercury concentrations and fluxes deposited from the atmosphere on the territory of the yamal-nenets autonomous area[J]. *Atmosphere*, 2022, 13(1): 33–49.
- [29] SPROVIERI F, PIRRONI N, BENCARDINO M, et al. Five-year records of mercury wet deposition flux at GMOS sites in the Northern and Southern hemispheres[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, 17(4): 2689–2708.
- [30] WIKLUND J A, KIRK J L, MUIR D C G, et al. Atmospheric trace metal deposition to remote Northwest Ontario, Canada: anthropogenic fluxes and inventories from 1860 to 2010[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 749: 142–162.
- [31] DUAN J C, TAN J H. Atmospheric heavy metals and arsenic in China: situation, sources and control policies[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 74: 93–101.
- [32] KEMPTER H, KRACHLER M, SHOTYK W, et al. Validating modelled data on major and trace element deposition in southern Germany using Sphagnum moss[J]. *Atmospheric Environment*, 2017, 167: 656–664.
- [33] STEINNES E, BERG T, UAAERUD H T. Three decades of atmospheric metal deposition in Norway as evident from analysis of moss samples[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, 412: 351–358.
- [34] LAZO P, STAFILOV T, QARRI F, et al. Spatial distribution and temporal trend of airborne trace metal deposition in Albania studied by moss biomonitoring[J]. *Ecological Indicators*, 2019, 101: 1007–1017.
- [35] SCHILLING J S, LEHAN M E. Bioindication of atmospheric heavy metal deposition in the Southeastern US using the moss *Thuidium delicatulum*[J]. *Atmospheric Environment*, 2002, 36(10): 1611–1618.
- [36] 吴婷婷, 范思铭, 边涛, 等. 苔藓植物在大气污染监测中的最新应用进展[J]. 首都师范大学学报(自然科学版), 2018, 39: 1–14. WU T T, FAN S M, BIAN T, et al. Application of bryophytes in monitoring air pollution[J]. *Journal of Capital Normal University (Natural Science Edition)*, 2018, 39: 1–14.
- [37] 联合国粮食及农业组织. 农业系列统计数据库[DB/OL].[2022–10–25]. <https://www.fao.org/home/zh>. Food and Agriculture Organization. FAOSTAT.[DB/OL].[2022–10–25]. <https://www.fao.org/home/zh>.
- [38] 叶雪珠, 陈德, 肖文丹, 等. 不同类型农药中重金属分布特征及风险分析[J/OL]. 农药学学报, [https://kns.cnki.net/kcms2/article/abstract?v=3uoqIhG8C44YLTlOAI7TRKu87-SJxoEJu6LL9TJzd50mdV-T8bEx2utKqDISaLKEdQ2kVgBZmPaLmLty3XxvmuzLCvZ-ujPkC&-uniplatform=NZKPT\[2023-02-28\]](https://kns.cnki.net/kcms2/article/abstract?v=3uoqIhG8C44YLTlOAI7TRKu87-SJxoEJu6LL9TJzd50mdV-T8bEx2utKqDISaLKEdQ2kVgBZmPaLmLty3XxvmuzLCvZ-ujPkC&-uniplatform=NZKPT[2023-02-28]). YE X Z, CHEN D, XIAO W D, et al. Distribution characteristics and risk analysis of heavy metals in pesticides[J/OL]. *Chinese Journal of Pesticide Science*, [https://kns.cnki.net/kcms2/article/abstract?v=3uoqIhG8C44YLTlOAI7TRKu87-SJxoEJu6LL9TJzd50mdVT8bEx2utKqDISaLKEdQ2kVgBZmPaLmLty3XxvmuzLCvZ-ujPkC&-uniplatform=NZKPT\[2023-02-28\]](https://kns.cnki.net/kcms2/article/abstract?v=3uoqIhG8C44YLTlOAI7TRKu87-SJxoEJu6LL9TJzd50mdVT8bEx2utKqDISaLKEdQ2kVgBZmPaLmLty3XxvmuzLCvZ-ujPkC&-uniplatform=NZKPT[2023-02-28]).
- [39] SPISSO A, PACHECO P H, GOMEZ F J V, et al. Risk assessment on irrigation of *Vitis vinifera* L. cv malbec with Hg contaminated waters [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(12): 6606–6613.
- [40] 中华人民共和国生态环境部. 中国生态环境统计年报 2020[R]. 北京: 中华人民共和国生态环境部, 2020: 9–10. Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. Annual report on the statistic of the ecology and environment in China 2020[R]. Beijing: Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, 2020: 9–10.
- [41] 王骞, 张刚. 中国污水排水量估算初步研究[C]//. 中国环境科学学会 2021 年科学技术年会论文集(II). 2021: 59–67. WANG Q, ZHANG G. Preliminary study on estimation of mercury discharge from sewage wastewater in China[C]//. Proceedings of the 2021 Annual Scientific and Technical Conference of the Chinese Society For Environmental Sciences(II). 2021: 59–67.
- [42] PEREZ-LOPEZ R, ALVAREZ-VALERO A M, NIETO J M. Changes in mobility of toxic elements during the production of phosphoric acid in the fertilizer industry of Huelva (SW Spain) and environmental impact of phosphogypsum wastes[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2007, 148(3): 745–750.

- [43] 农业农村部. 肥料登记管理办法[EB/OL]. (2022-01-07)[2022-11-25]. http://www.zfs.moa.gov.cn/flfg/202201/t20220127_6387831.htm. Ministry of Agriculture and Rural Affairs. Fertilizer registration measures for the management[EB/OL]. (2022-01-07)[2022-11-25]. http://www.zfs.moa.gov.cn/flfg/202201/t20220127_6387831.htm.
- [44] 农业农村部. “十四五”全国农业绿色发展规划[EB/OL]. (2021-08-23)[2022-11-25]. http://www.gov.cn/zhengce/zhengceku/2021-09/07/content_5635867.htm. Ministry of Agriculture and Rural Affairs. The 14th Five-Year Plan for national agricultural green development[EB/OL]. (2021-08-23)[2022-11-25]. http://www.gov.cn/zhengce/zhengceku/2021-09/07/content_5635867.htm.
- [45] 叶雪珠, 肖文丹, 赵首萍, 等. 浙江省商品有机肥中重金属含量变化趋势及风险管控对策[J]. 植物营养与肥料学报, 2020, 26(5): 954-965. YE X Z, XIAO W D, ZHAO S P, et al. Variations of heavy metal contents and the risk management of commercial organic fertilizers in Zhejiang Province[J]. *Journal of Plant Nutrition and Fertilizers*, 2020, 26(5): 954-965.
- [46] 漆世英, 余少乐, 吴娟, 等. 养殖业抗生素-重金属复合污染治理研究进展[J]. 中国生态农业学报(中英文), 2022, 30(6): 1014-1026. QI S Y, YU S L, WU J, et al. Advance in treatment of co-contamination of antibiotics and heavy metals from stock breeding[J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2022, 30(6): 1014-1026.
- [47] 潘寻, 韩哲, 贾伟伟. 山东省规模化猪场猪粪及配合饲料中重金属含量研究[J]. 农业环境科学学报, 2013, 32(1): 160-165. PAN X, HAN Z, BEN W W. Heavy metal contents in pig manure and pig feeds from intensive pig farms in Shandong Province, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, 32(1): 160-165.
- [48] 苏成文, 崔金霞, 陈焱, 等. 潍坊市畜禽粪污土地承载力分析与风险评估[J]. 中国猪业, 2020, 15(6): 77-87, 91. SU C W, CUI J X, CHEN Y, et al. Analysis and risk assessment on land bearing capacity of livestock manure in Weifang City[J]. *China Swine Industry*, 2020, 15(6): 77-87, 91.
- [49] 倪治华, 孙万春, 林辉, 等. 浙江省畜禽粪源有机肥质量安全风险与控制对策[J]. 浙江农业学报, 2020, 32(2): 299-307. NI Z H, SUN W C, LIN H, et al. Quality risk assessment and management of manure based organic fertilizers in Zhejiang[J]. *Acta Agriculturae Zhejiangensis*, 2020, 32(2): 299-307.
- [50] 李雅婷, 杨军, 雷梅, 等. 北京市城市污泥土地利用的重金属污染风险评估[J]. 中国给水排水, 2015, 31(9): 117-120. LI Y B, YANG J, LEI M, et al. Pollution risk assessment of heavy metals in sewage sludge for land application in Beijing[J]. *China Water & Wastewater*, 2015, 31(9): 117-120.
- [51] 焦海林. 城市生活污水和污泥中的重金属[J]. 化学工程与装备, 2019(8): 319-321. JIAO H L. Heavy metals in urban domestic sewage and sludge[J]. *Chemical Engineering & Equipment*, 2019(8): 319-321.
- [52] 张贺飞, 徐燕, 曾正中, 等. 国外城市污泥处理处置方式研究及对我国的启示[J]. 环境工程, 2010, 28(增刊1): 434-438. ZHANG H F, XU Y, ZENG Z Z, et al. Municipal sludge treatment way overseas and its enlightenment to China[J]. *Environmental Engineering*, 2010, 28(Suppl1): 434-438.
- [53] 徐万强, 孙世友, 茹淑华, 等. 我国畜禽养殖业中重金属污染状况及其治理防控[J]. 河北农业科学, 2020, 24(5): 75-81. XU W Q, SUN S Y, RU S H, et al. Characteristics and control of heavy metals pollution from livestock and poultry breeding industry in China[J]. *Journal of Hebei Agricultural Sciences*, 2020, 24(5): 75-81.

(责任编辑:叶飞)