



文章栏目：固体废物处理与资源化

DOI 10.12030/j.cjee.202001001

中图分类号 X825

文献标识码 A

王丽霞, 杜子文, 封莉, 等. 连续施用城市污泥后林地土壤中重金属的含量变化及生态风险[J]. 环境工程学报, 2021, 15(3): 1092-1102.

WANG Lixia, DU Ziwen, FENG Li, et al. Eco-environmental risk assessment of urban sludge application in forest land[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2021, 15(3): 1092-1102.

连续施用城市污泥后林地土壤中重金属的含量变化及生态风险

王丽霞^{1,2}, 杜子文^{1,2}, 封莉^{1,2}, 孙德智^{1,2}, 张立秋^{1,2}, 刘永泽^{1,2,*}

1. 北京林业大学环境科学与工程学院, 北京 100083

2. 北京市水体污染源控制技术重点实验室, 北京 100083

第一作者: 王丽霞 (1995—), 女, 硕士研究生。研究方向: 固体废弃物处理处置与资源化利用。E-mail: wanglixia1122@foxmail.com

*通信作者: 刘永泽 (1986—), 男, 博士, 副教授。研究方向: 污泥处理处置与资源化、废水处理与资源化等。E-mail: liuyongze@bjfu.edu.cn

摘要 将堆肥污泥施用于林地能够增加土壤肥力, 促进林木增长, 具有广阔的应用前景, 但污泥中所含重金属进入土壤环境后的积累特征及所引起的生态风险问题亦备受关注。连续 5 年将污泥堆肥产品施用于林地并对相应林地土壤重金属含量进行了同步监测, 采用单因子指数法和潜在生态危害指数法分析评价了污泥堆肥泥质、污泥堆肥不同施用比例以及是否连续施肥等因素对土壤重金属环境风险的影响; 并利用相关分析和基于相关系数的聚类分析揭示了土壤重金属来源与施用污泥的关系。结果表明, 污泥堆肥中的 Hg、Cd、Zn、As、Pb 存在较大生态风险; 污泥堆肥施用比例为 10% 和 20% 时, 产生的生态风险较低, 而施肥比例为 30% 和 40% 时的生态风险较大。施用污泥堆肥后土壤中重金属含量具有一定的累积效应, 但均未超过《土壤环境质量标准 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》(GB 15618-2018)($6.5 \leq \text{pH} \leq 7.5$) 限定的含量。土壤重金属累积模型预测结果表明, 施肥比例为 10% 的林地连续施肥 11 年后, 土壤重金属含量将会超标, 即 10 年内连续施肥较为安全。连续施肥后的林地土壤重金属含量间相关性分析表明, 土壤中的重金属并非全部来源于堆肥污泥, 大气沉降、降水、土壤母质等因素也影响了土壤的重金属含量。本研究可为林地施用污泥产品提供参考。

关键词 污泥堆肥产品; 重金属; 风险评价; 相关分析; 土壤污染物预测模型

随着城市污水处理量的大幅度增加, 城市污泥产量亦逐年提高, 由此带来的城市污泥的处理处置已经成为日益突出的难题。据统计, 2020 年我国城市污泥产量将突破 $6.00 \times 10^7 \sim 9.00 \times 10^7 \text{ t}^{[1]}$ 。城市污泥的最终处置方式主要为土地利用、焚烧、填埋、建材利用等。其中, 污泥林地利用具有诸多优势, 可以充分利用污泥中的营养元素及有机质, 达到增加土壤肥力、改善植物生长状况等目的^[2-3]; 同时, 此处置方式还能避免污泥进入食物链, 从而避免对人群健康的影响^[4]。但是, 城市污泥中存在的重金属是制约其土地利用的主要因素^[5-6]。有研究^[7]表明, 城市污泥中的重金属会

收稿日期: 2020-01-01; 录用日期: 2020-10-17

基金项目: 国家水体污染控制与治理国家科技重大专项 (2018ZX07301007)

以不同的形态存在于土壤环境中。其中，Cu、Cd 以及 Hg 等毒性较强的重金属以残渣态存在，而 Zn 和 Ni 主要以不稳定态存在。重金属在土壤中的累积可能导致超标，进而危及到土壤环境安全。因此，污泥产品施用于林地后带来的重金属环境风险问题值得关注。

为评价污泥产品在林地中长期施用可能带来的生态环境风险，本研究连续 5 年将城市污水处理厂污泥堆肥产品施用于供试林地，结合施肥过程中连续 5 年监测的土壤重金属 (Cu、Zn、Hg、Cr、Cd、Pb、As、Ni 等) 含量变化数据，分析污泥堆肥泥质、不同的施肥比例以及连续追肥等因素对土壤重金属产生的环境风险影响；并依据数学模型预测多年连续施肥给土壤带来的环境风险，以期为城市污水处理厂污泥的林地利用提供参考。

1 材料与方法

1.1 实验区域及施肥规划

本研究实验区域位于北京市大兴区永定河沙荒地平原造林场地，林地种植的树种主要为白皮松、红花洋槐等具备防风固沙功能的典型树种。白皮松 5 年的监测数据相较于红花洋槐的监测数据更为全面，因此，以该区域种植的白皮松作为研究树种。采用北京市某城市污水处理厂经过堆肥处理后的污泥堆肥产品 (含水率 40%) 进行林地施肥，施肥方式采用环状沟施，即距树基 (滴水线树冠垂直下来到地面的线) 40~60 cm 处分别挖出深度为 20、30、40、50 cm 的施肥环沟进行施肥。施用污泥堆肥产品的重金属含量和施肥日期见表 1。白皮松林地按照施肥比例分为 4 个地块，每个地块设置生长条件相同的供试样树 10 颗；4 个地块中施用污泥堆肥产品与表层土壤的掺混质量比分别为 10%、20%、30%、40% (如图 1 所示)，以保证施肥比例 10%~40% 地块中每颗树所施用的干污泥量分别为 0.045、0.090、0.135、0.180 t，该施用量符合标准 [8] 中施用量不应超过 30 t·hm⁻² (以干污泥计) 的规定。

表 1 污泥堆肥产品重金属含量

Table 1 Heavy metal content in sludge composting products

施肥日期	mg·kg ⁻¹							
	Zn	Cd	Hg	Pb	As	Cr	Cu	Ni
2015年5月	580	0.12	5.81	15	6.08	45	29.1	133
2016年6月	1 000	1.42	7.76	46	8.79	101	28.4	219
2017年11月	708	1.21	3.89	19	1.78	72	22.7	148
2018年10月	486	<5	6.24	25	7.47	49	21.9	181

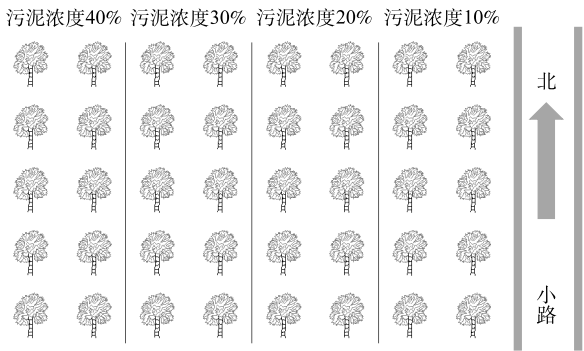


图 1 实验区域示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental area

1.2 样品采集与预处理

林地每个地块采用 S 形布点方式选择 3 棵样树进行取样，采集后混匀合为 1 个土壤样品，避免土壤重金属含量的不均质性所带来的分析误差。利用土钻采集 0~20 cm 深度的土壤样品，装入样品袋。将湿润土壤样品摊成 2 cm 厚的薄层于阴凉通风处风干，拣出碎石、砂砾及植物残体等杂质；再将风干样品用研磨棒压碎，拣出杂质并用四分法分取压碎样，全部过 20 目尼龙筛，再过 100 目尼龙筛后待测。土壤样品按不同污泥堆肥施用比例、不同取样深度进行编号存放。

1.3 样品处理与测定

准确称取土壤样品 0.1 g，置于溶样杯后，用少量水润湿，在通风橱中逐步缓慢加入 4 mL 浓盐酸、2 mL 浓硝酸、2 mL 氢氟酸。样品与消解液充分混匀后移至消解管中，加盖置于微波消解转盘

上,采用梯度升温的方法(第1步10 min从室温升温至100℃,保持3 min;第2步10 min从100℃升温至150℃,保持3 min;第3步5 min从150℃升温至190℃,保持45 min;第4步风冷15 min)进行消解。待管内温度降至室温后从通风橱中取出,缓慢泄压放气,打开消解管盖。将消解后的混合液倒出后,用去离子水清洗消解罐2~3次并收集清洗液,用0.45 μm的聚四氟乙烯膜过滤,收集滤液用去离子水定容至50 mL,于4℃下保存待测。其中,Hg含量采用微波消解-原子荧光法进行测定^[9-10],Cu、Zn、Cr、Cd、Pb、As、Ni等7种重金属含量采用微波消解-电感耦合等离子体质谱法测定^[11-12]。

1.4 分析方法

研究区域白皮松林地施用的污泥堆肥采用《城镇污水处理厂污泥处置林用泥质标准》^[8]进行评价。自2015年5月至2018年10月每年施肥1次,共施肥4次,至2019年5月共连续监测5次。监测施肥前后林地土壤重金属含量,所得结果参考《土壤环境质量标准 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》^[13](6.5<pH<7.5)中8种重金属的污染风险筛选值作为参比值。在尚未被污染的林地施肥选择污染风险筛选值作为参比,可提前关注到土壤重金属的潜在风险,一旦超标代表可能存在污染风险,而土壤中污染物低于或者等于风险筛选值时,土壤污染风险则低,一般可忽略。

本研究采用单因子指数法对林地土壤进行环境质量评价,并采用潜在生态危害指数法进一步探究施肥林地土壤中重金属产生的潜在生态风险。单因子评价计算公式^[14]见式(1)。

$$P_i = \frac{C_i}{S_i} \quad (1)$$

式中: C_i 为单项指标*i*在不同环境介质中的监测数据; S_i 为单项污染指标*i*的环境质量标准。

当 P_i 值大于1时,认为存在一定的环境影响;当 P_i 值小于1时,认为在该指标方面不存在环境影响;当 P_i 值介于0.7与1之间时,则认为该指标处于警戒范围。潜在生态危害指数法评价公式^[15]见式(2)。计算之后,得到 F_{EI} 和 F_{RI} 值,参照风险等级标准(见表2)进行评价。

$$F_{RI} = \sum_{i=1}^m F_{EI_r}^i = \sum_{i=1}^m T_r^i \frac{C_r^i}{S_r^i} \quad (2)$$

式中: F_{RI} 为综合生态风险指数; F_{EI} 为某一重金属的潜在生态风险指数; T_r^i 为某一重金属的生物毒性响应系数,据文献^[15]可知,Zn=1、Cr=2、Cu=Pb=Ni=5、As=10、Cd=30、Hg=40; C_r^i 为某一重金属的环境暴露值; S_r^i 为重金属的参比值,参比标准选用《土壤环境质量标准 农用地 土壤污染风险管控标准(试行)》^[13]中土壤污染风险筛选值。

本研究采用土壤污染物残留量预测模型。此模型可根据重金属在土壤中的迁移转化规律和土壤的自净能力,通过对重金属的输入量、输出量、残留率和污染趋势的研究来计算施肥后土壤中重金属的残留量,符合研究需求^[16-18]。

土壤污染物在土壤中*n*年内的累积量的计算模式^[14]见式(3)。

$$W_n = BK^n + RK \frac{1-K^n}{1-K} \quad (3)$$

$$R = \frac{XM}{G} \quad (4)$$

式中: W 为污染物在土壤中年残留量,mg·kg⁻¹; n 为污染年限; B 为区域土壤背景值,mg·kg⁻¹; E 为土壤污染物对单位土壤的年输入量,mg·kg⁻¹; K 为土壤污染物的残留率; X 为

表2 潜在生态危害系数和危害指数与污染程度关系
Table 2 Relationship between potential ecological hazard coefficient and hazard index and pollution degree

污染程度	潜在生态风险指数EI	综合生态风险指数RI
低	≤40	≤150
中等	40~80	150~300
可接受	80~160	300~600
高风险	160~320	600~1200
非常高	>320	>1200

污泥中污染物含量, $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; G 为耕作层单位土壤质量, $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}$; M 为每年的污泥施用量, $\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}$ 。依照文献 [18] 可知, 盆栽实验所得不同重金属的年残留率为 $\text{Cu}=\text{Pb}=\text{Cr}=\text{Cd}=\text{As}=99\%$ 、 $\text{Zn}=95\%$ 、 $\text{Hg}=86\%$ 。

2 结果与讨论

2.1 林地施用污泥堆肥产品泥质分析

研究区域连续 4 年施用的污泥堆肥中重金属含量变化如图 2 所示, 参考的标准为《城镇污水处理厂污泥处置林用泥质标准》[8]。由图 2 可以看出, 8 种重金属 Cu 、 Zn 、 Hg 、 Cr 、 Cd 、 Pb 、 As 、 Ni 的 P_i 值均小于 1, 这表明重金属的含量均未超过《城镇污水处理厂污泥处置林用泥质标准》[8] 的标准值。同时, 堆肥污泥中重金属含量基本稳定。其中, Hg 的 P_i 值处于 0.26~0.52, P_i 值小于 1, 这表明 Hg 未产生污染。

图 3 显示了林地施用污泥堆肥产品的重金属潜在风险。可以看出, Hg 在 8 种重金属之间产生的潜在生态风险的贡献率最大, 最高可达 87.35%; Cd 的 P_i 值为 0.06~0.25, 其对重金属综合生态风险的贡献率也逐年增加, 在 2018 年高达 28%。因此, 当污泥施用到林地后, 需重点关注 Hg 和 Cd 可能带来的污染和风险。此外, P_i 值排序为 $\text{Hg}>\text{Zn}>\text{Pb}>\text{Cu}>\text{Cd}>\text{As}>\text{Cr}>\text{Ni}$, 这说明 Hg 、 Zn 、 Pb 的 P_i 值相对较高; 而按照潜在生态风险贡献率排序 $\text{Hg}>\text{Cd}>\text{As}>\text{Pb}>\text{Cu}>\text{Zn}>\text{Cr}>\text{Ni}$ 来看, Hg 、 Cd 、 As 、 Pb 的潜在风险相对较大, 其贡献率分别为 75.56%、12.53%、3.60%、3.46%。

2.2 不同施肥比例地块中的重金属风险评价

施用不同比例堆肥污泥后, 林地土壤中重金属 P_i 值变化如图 4 所示, 参考标准为《土壤环境质量标准 农用地 土壤污染风险管控标准 (试行)》[13] ($6.5\leq\text{pH}<7.5$)。由图 4 可以看出, 施肥之后土壤中 8 种重金属的 P_i 值基本都高于本底值。这说明污泥堆肥产品的施用会导致土壤中重金属含量的增加。但是, 8 种重金属的 P_i 均小于 1, 这表明首次施肥后的 1 年内重金属的含量均未超标, 符合土壤环境质量标准的要求。值得注意的是, Cd 和 Zn 的含量超过了警戒限, 这表明堆肥污泥的施用对土壤中 Cd 、 Zn 含量影响较大, 可能会产生风险。由 2015 年 5 月与 2016 年 4 月的监测结果中可以看出, 土壤中重金属含量随着施肥比例的增加而递增, 2015 年 5 月 Cd 含量增长最为明显。在 4 种施肥比例下, Cd 的 P_i 值分别为 0.047、0.357、0.643、0.997, 虽未造成污染, 但 Cd 的 P_i 值在 40% 的污泥施用比例下已接近 1, 可能会产生污染风险。4 次监测结果表明, 施用污泥比例较高 (30% 和 40%) 的地块, 重金属 P_i 值均较高, 即可能会产生风险。此外, 在 8 种重金属中, Hg 、 Zn 、 Cd 的 P_i 值相对较高, 最高值分别达到了 0.505、0.898、0.996。

为进一步确认土壤中重金属的潜在风险, 对首次施肥的土壤进行了潜在生态风险评价, 结果

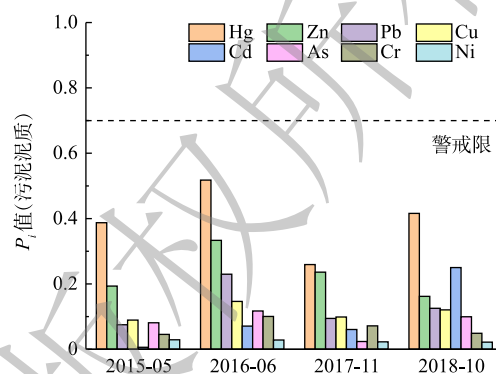


图 2 污泥重金属 P_i 值变化

Fig. 2 P_i change of sludge heavy metals

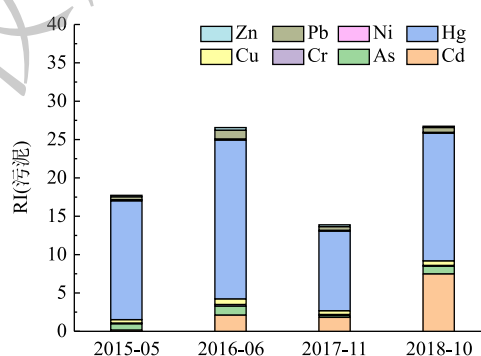


图 3 污泥重金属潜在风险

Fig. 3 Potential risk map of sludge heavy metals

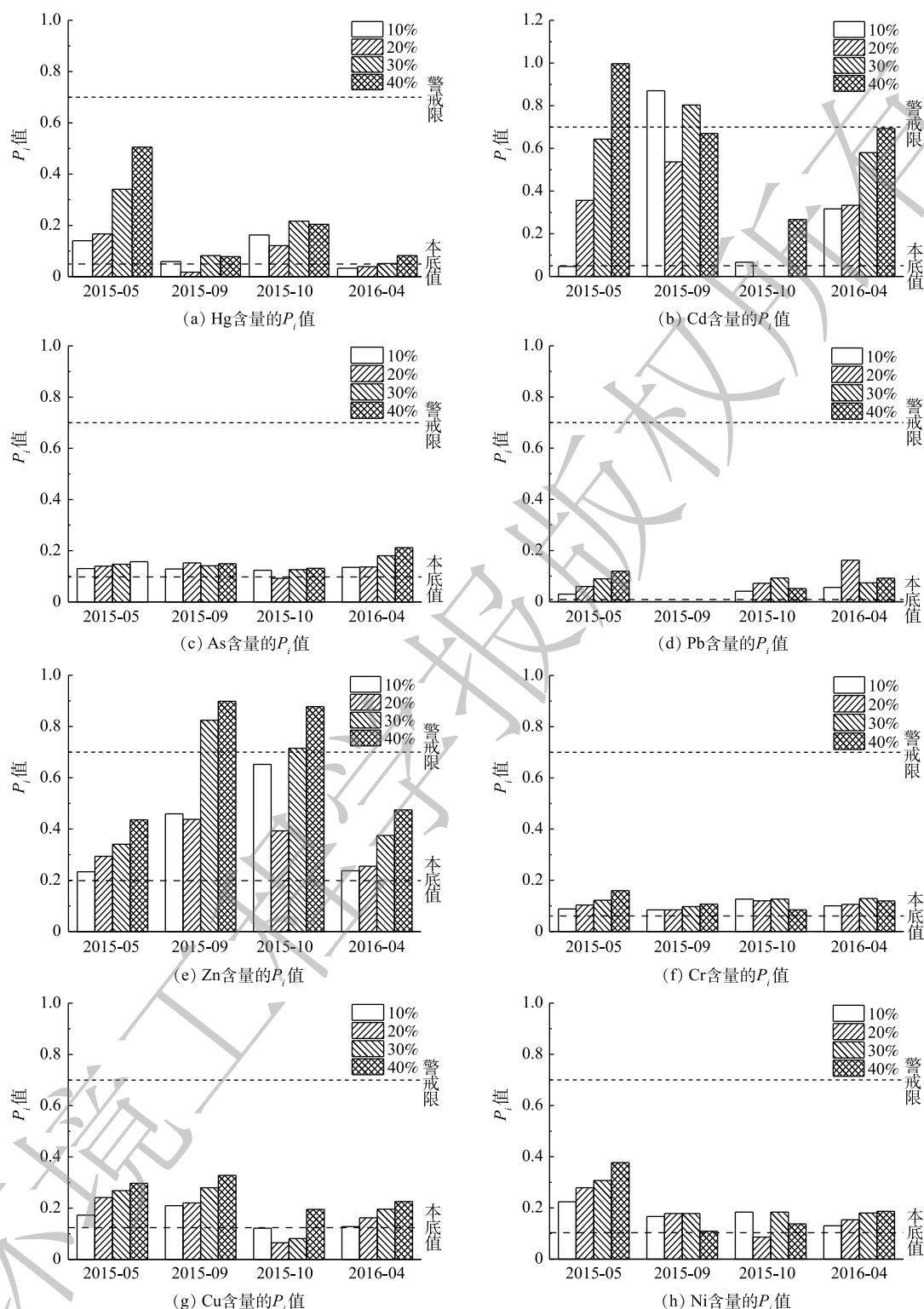


图4 林地施用不同比例污泥的重金属 P_i 值变化

Fig. 4 P_i Change in heavy metal caused by application of different proportions of sludge in forest land

如图5所示。由图5可知,各重金属的综合生态风险指数RI值均远小于150, EI值均小于40,这表明首次施用污泥堆肥产品后,土壤重金属处于低风险阶段;而施肥地块RI值均高于土壤本底RI值,这表明污泥的施用会导致土壤中重金属的累积。与图4所反映出的规律相似,在刚施肥和

施肥1年后,重金属潜在生态风险随着污泥施用比例的增加而增加,在施用比例为30%和40%的地块中,重金属综合生态风险相对较大,其RI最大值分别为38.31、56.39;而施肥比例为10%和20%的地块中最大RI值分别为32.24和22.16。此外,在土壤本底值中,Cd的潜在风险贡献为25.25%,而在施肥后Cd的潜在风险贡献率高达80.94%,Hg的贡献率从33.10%增长至68.33%。这表明在污泥施用前后,Hg、Cd产生的风险变化较大。本研究获得的结果与谌思嘉^[18]的研究结果相符,均表明污泥林地利用过程中Hg、Cd属于具备极高生态风险的重金属。综上所述,当施肥比例为10%和20%时,重金属的潜在风险相对较低,可以进行连续施肥;而施肥比例为30%和40%时,重金属的潜在风险较大,不宜继续连续施肥。

2.3 林地连续施肥地块重金属风险评价

图6为连续5年施用10%配比污泥林地的重金属 P_i 值变化图。由图6(b)可知,Cd的 P_i 值在2017年12月超过了1;8种重金属的 $P_i < 1$,满足标准要求。但Cd和Zn在2017年和2018年均出现 P_i 值大于0.7,超过警戒限,这表明堆肥污泥的施用对土壤中Cd和Zn含量影响较大。此外,从长期来看,重金属 P_i 值基本全部大于本底 P_i 值,且重金属含量呈现递增趋势。这表明污泥的施用确实是土壤中重金属累积的重要原因之一。堆肥污泥的施用虽然并未使得重金属含量超标,但从图6中可以发现,Cd、As、Hg、Zn的 P_i 值较高,需进一步评价这些重金属存在的潜在生态风险。

8种重金属的综合风险RI值随时间变化如图7所示。从图7中可以看出,8种重金属潜在生态风险指数 $EI < 40$ 、综合生态风险指数 $RI < 150$,表明其处于低风险阶段;但从连续5年的监测结果可以看出,风险总体呈现增加趋势,这表明重金属在表层土壤中产生了累积,但仍处于低风险范围。综合生态风险在施肥当年呈现先增后减的趋势(如2015年5月—2016年4月),这可能是由于降水导致重金属向外迁移所致。由于施肥方式采用环状施肥,重金属向外迁移的范围较小,故本研究中监测到施肥环内外和不同深度(0~60 cm)土层土壤中各重金属含量均未超标。但Cd的风险相对较高,在施肥比例为10%的地块中,深度为40 cm的施肥环内与环外Cd的含量分别为0.221和0.207 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,60 cm的施肥环内与环外分别为0.207和0.290 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,接近于标准值^[13],因此,需重点防范Cd可能带来的风险。此外,虽然每年采样时间不同,但重金属的综合生态风险在年内呈现先增后减的趋势,因此,每年取样时间的不同对研究的影响较小。8种重金属潜在风险贡献率的顺序为 $\text{Cd} > \text{Hg} > \text{As} > \text{Ni} > \text{Cu} > \text{Zn} > \text{Pb} > \text{Cr}$ 。其中,Cd、Hg、As的贡献率相对较大,平均可达50.74%、22.09%、10.41%。堆肥污泥施用后Cd的贡献率从未使用污泥前的25.25%增加到了施肥后的89.07%。这表明施肥对重金属中Cd含量的影响很大,施肥后土壤中Cd可能产生风险。

2.4 连续施肥后林地土壤中重金属含量预测结果及风险分析

以林地土壤重金属本底值为背景值,采用土壤污染物累积模型对施肥比例为10%的林地土壤中重金属含量随施用年限的累积情况进行预测。施肥第1年至第4年采用实际污泥堆肥泥质预测重金属含量,而后采用其中含量最高1年的重金属进行预测,结果如表3所示。由表3可以看出,在连续施用堆肥污泥产品11年后,土壤中Zn和Cd的含量超过了2018年发布的《土壤环境质量标准 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》^[12]($6.5 < \text{pH} < 7.5$)。这表明,在这种施肥条件下可能存在污

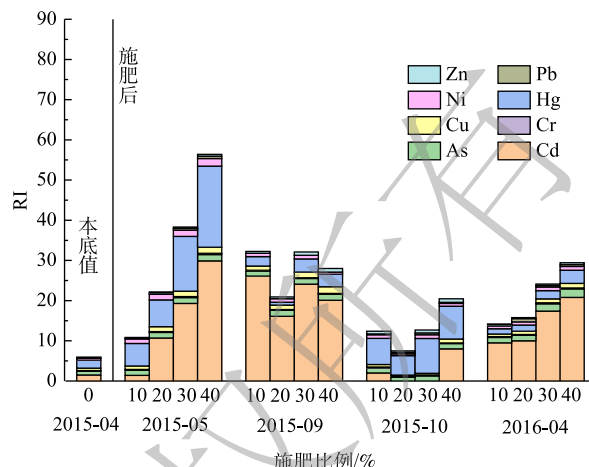
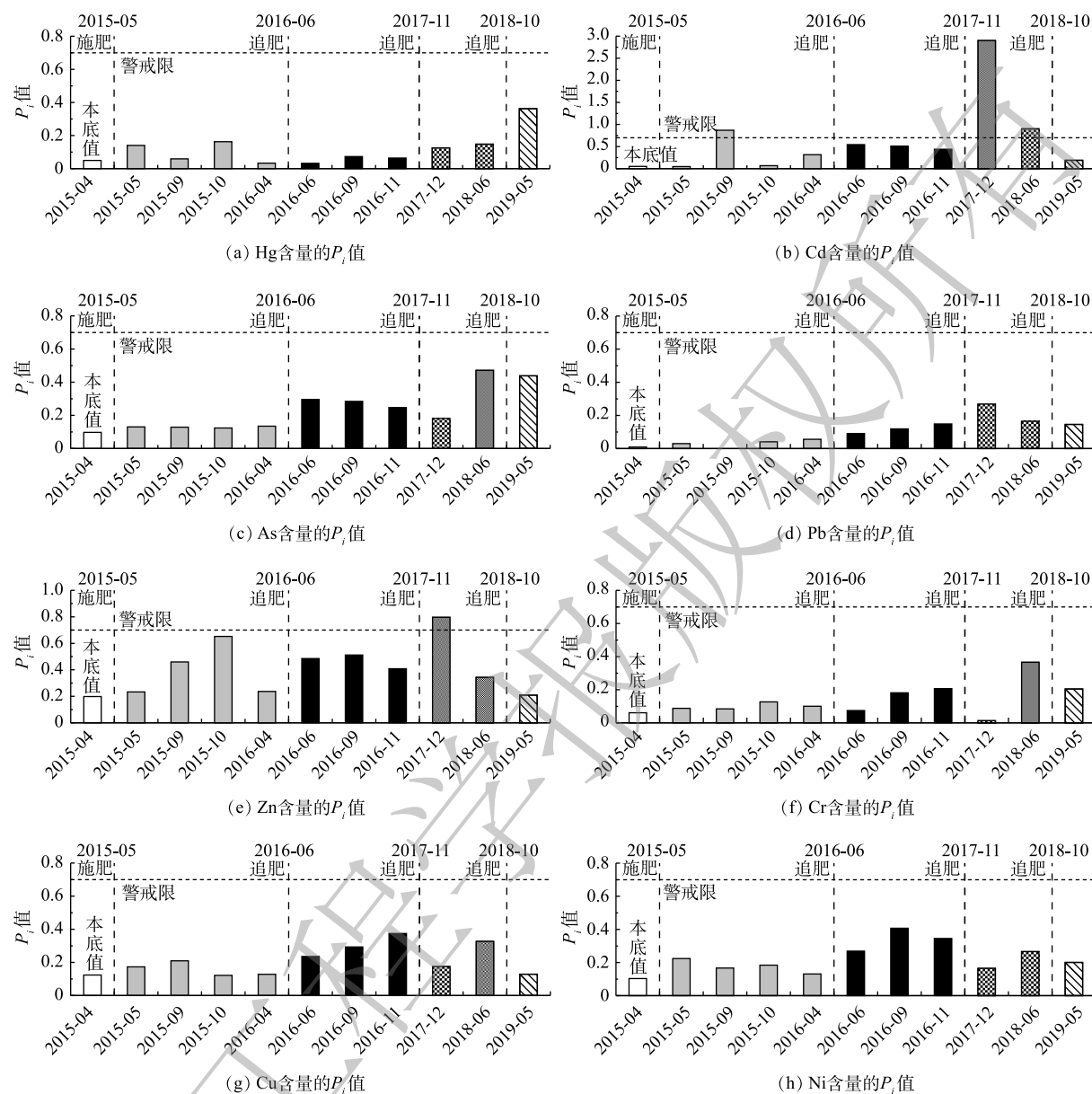


图5 林地施用不同比例污泥的重金属潜在风险

Fig. 5 Potential risk of heavy metals caused by different proportions of sludge applied in forest land

图6 施用10%配比污泥林地的重金属 P_i 值变化Fig. 6 P_i Change of heavy metal in forest land with 10% continuous application of sludge in 5 years

染风险,此时应立即停止施肥,并加强土壤环境监测,探究污染原因,采取相应措施。由此可知,施肥比例为10%配比污泥在10年之内风险较小。预测值与施肥开始的前4年实测值对比发现,Cu、As、Hg、Cr等4种重金属预测值与实测值相近或略低,但Zn、Cd、Ni、Pb等4种重金属的实测值均高于预测值。研究区域中除施肥外,其他人类活动较少,推测Zn、Cd、Ni、Pb这4种重金属除受施肥影响之外,大气沉降、降水以及土壤介质的不均匀等因素也是影响其含量变化的因素之一。因此,对于其来源需进行进一步相关分析。

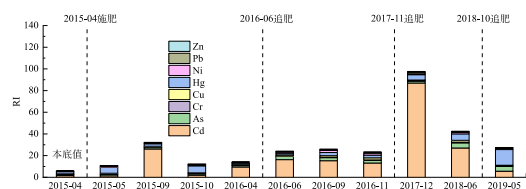


图7 施用10%配比污泥的林地重金属潜在风险

Fig. 7 Potential risk of heavy metals in forest land with 10% continuous application of sludge

表 3 10% 配比污泥堆肥施用后土壤重金属含量预测

Table 3 Prediction of soil heavy metal content after application of 10% proportioned sludge compost

		mg·m ⁻¹							
数值来源	累积施肥时间	Zn	Cd	Hg	Pb	As	Cr	Cu	Ni
预测值	第1年	64.28	0.02	0.26	1.52	3.08	13.40	16.38	11.13
	第2年	78.19	0.02	0.38	1.96	3.24	14.67	20.33	11.91
	第3年	91.41	0.03	0.48	2.41	3.39	15.92	24.25	12.69
	第4年	103.96	0.03	0.57	2.84	3.55	17.16	28.13	13.46
	第5年	128.29	0.07	0.70	4.23	3.78	20.09	34.62	14.20
	第6年	151.41	0.12	0.81	5.60	4.01	22.98	41.03	14.93
	第7年	173.37	0.16	0.90	6.96	4.24	25.84	47.39	15.65
	第8年	194.23	0.20	0.98	8.30	4.47	28.68	53.68	16.37
	第9年	214.05	0.24	1.05	9.63	4.70	31.48	59.91	17.08
	第10年	232.87	0.28	1.11	10.95	4.92	34.26	66.08	17.78
	第11年	250.76	0.32	1.16	12.25	5.14	37.01	72.18	18.48
国家标准	GB 15618-2018	250	0.3	2.4	120	30	200	100	100
	2015年4月	49.63	0.02	0.12	1.07	2.92	12.13	12.38	10.34
	2015年5月	58.32	0.01	0.34	3.58	3.91	17.60	17.29	22.40
	2016年6月	121.21	0.16	0.08	10.92	8.88	14.88	23.61	26.89
	2017年12月	199.08	0.87	0.30	32.21	5.45	2.56	17.45	16.45
	2019年5月	52.15	0.06	0.87	17.46	13.15	40.89	12.85	20.04

注：2015年4月的实测值为本底。

2.5 林地土壤中重金属含量间的相关性

为探究施肥林地土壤中的重金属是否全部来源于施肥污泥，对土壤中各重金属含量进行了相关分析(方差齐性时 ($P>0.05$), 采用 Pearson 积差相关系数；方差非齐性时, 采用 Spearman 秩相关系数), 结果见表 4。

施肥林地土壤中重金属的来源之间具有显著相关性。根据表 4 可以看出，As 与 Cr 之间，

表 4 白皮松林地土壤中重金属的相关性

Table 4 Correlation of heavy metals in the soil of *Pinus bungeana* forest

重金属元素	Cd	As	Cr	Hg	Ni	Pb	Zn	Cu
Cd	1	0.046	-0.233	0.124	-0.06	-0.072	0.734*	0.686*
As	0.046	1	0.783**	0.468	0.524	0.485	0.548	-0.139
Cr	-0.233	0.783**	1	0.591	0.344	0.504	0.249	-0.27
Hg	0.124	0.468	0.591	1	-0.277	0.818**	0.366	0.131
Ni	-0.06	0.524	0.344	-0.277	1	-0.066	0.299	-0.141
Pb	-0.072	0.485	0.504	0.818**	-0.066	1	0.319	0.168
Zn	0.734*	0.548	0.249	0.366	0.299	0.319	1	0.461
Cu	0.686*	-0.139	-0.27	0.131	-0.141	0.168	0.461	1

注：*在0.05下显著，** 0.01下显著。

Cd与Zn、Cu之间，Hg与Pb之间重金属含量显著相关，表明其来源相似。值得注意的是，Ni与Cd、Cu、Pb、Hg 4种重金属之间，Cr与Cd、Cu 2种重金属之间，As与Cu之间，Cd与Pb之间呈负相关性；其他重金属之间呈现正相关，表明Ni、Cr、As与Cd、Cu、Pb、Hg来源差异极大，其中Cd与Pb之间的来源也具有较大差异。而Hg与其他重金属之间无显著相关性，这表明Hg与其他重金属的来源差异较大。其主要原因是：由于林地土壤黏性较差，孔隙度大，Hg易释放到空气中所致^[19]。

污泥堆肥的连续施用是导致表层土壤中重金属累积的重要因素之一，但不排除其他因素也会对表层土壤重金属产生影响。因此，利用表8中相关系数对表层土壤中重金属进行聚类分析，结果如图8所示。由图8可以看出，Hg与Pb的聚类显示距离最短，而相关分析结果也显示Hg与Pb呈显著正相关，故可以表明，林地施肥后，Hg与Pb的含量来源是极其相似的。同样，Cd、Cu、Zn的聚类显示距离较短，Ni、As、Cr的聚类显示距离也相对较短。因此，根据聚类分析树状图将土壤重金属分为3类：第1类是Zn、Cd、Cu；第2类是Hg、Pb；第3类是Ni、As、Cr。该结果表明，Zn、Cd、Cu之间，Hg、Pb之间，Ni、As、Cr之间重金属的来源是具有相似性的。有研究^[20-21]发现，国内土壤中Zn、Cd、Cu主要来自于施肥等农业活动，部分地区还来源于工业活动，甚至以后者为主；Hg则主要来源于工业活动及其产生的大气沉降，局部地区叠加高Hg农药的贡献；Pb的来源则比较复杂，主要来自工业、交通和垃圾堆肥等；As、Cr、Ni则主要受土壤母质控制。根据本研究对林地施肥土壤重金属的相关性和聚类分析，可推测林地土壤中重金属的来源包括：Ni、As、Cr的含量主要受土壤母质的影响，并叠加施肥的影响；而Hg、Pb则主要是受到污泥施用、大气沉降等多因素作用的共同影响；Zn、Cd、Cu在污泥中含量相对较高，且林地受人为影响较小，故Zn、Cd、Cu在土壤中的含量主要是受到施肥的影响。

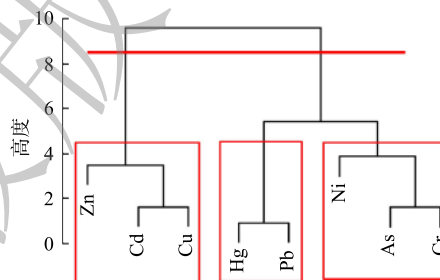


图8 林地土壤中重金属聚类图

Fig. 8 Heavy metal clustering map in forest soil

3 结论

- 1) 对污泥堆肥产品泥质分析发现，污泥中Hg、Cd、Zn、As、Pb可能存在污染风险。
- 2) 施肥比例为10%和20%时产生的潜在生态风险较低，可进行连续施肥；而施肥比例为30%和40%时产生的潜在生态风险较大，不宜连续施肥。
- 3) 连续5年施肥，林地土壤中除Cd在2017年12月超标外，其余重金属均未超标，但重金属含量呈累积趋势。经模型预测，在施肥比例为10%的林地土壤中，连续施用10年是安全的。
- 4) 对重金属进行的相关分析及聚类分析结果表明，林地土壤中重金属的来源并非全部源于施肥污泥。土壤中Zn、Cd、Cu含量主要受施肥影响，Hg和Pb受施肥以及大气沉降等综合作用影响，而Cr、Ni、As主要来源于土壤母质。

参考文献

- [1] 张冬,董岳,黄瑛,等. 国内外污泥处理处置技术研究与应用现状[J]. 环境工程, 2015, 33(1): 600-604.
- [2] 尹军,谭学军,张立国. 城市污水污泥的土地利用[J]. 吉林建筑工程学院学报, 2003, 20(1): 1-6.
- [3] 赵广琦,沈烈英,王智勇,等. 城市污泥堆肥对12种花灌木生长的影响[J]. 西北林学院学报, 2011, 26(5): 87-90.

- [4] BENBRANHIM M, DENAIX L, THOMAS A L, et al. Metal concentrations in edible mushrooms following municipal sludge application on forest land[J]. *Environmental Pollution*, 2006, 144(1): 847-854.
- [5] 吕彦. 城市污水厂污泥土地利用重金属迁移规律研究[D]. 上海: 同济大学, 2004.
- [6] 魏亮亮, 王胜, 薛茂, 等. 城镇污泥胞外聚合物对重金属吸附特征及机制[J]. *哈尔滨工业大学学报*, 2018, 50(8): 188-198.
- [7] 胡忻, 陈茂林, 吴云海, 等. 城市污水处理厂污泥化学组分与重金属元素形态分布研究[J]. *农业环境科学学报*, 2005, 24(2): 387-391.
- [8] 中华人民共和国住房和城乡建设部. 城镇污水处理厂污泥处置林地用泥质: CJ/T 362-2011[S]. 北京, 2011.
- [9] 中华人民共和国环境保护部. 土壤和沉积物 汞、砷、硒、铋、锑的测定微波消解/原子荧光法: HJ 680-2013[S]. 北京, 2013.
- [10] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 土壤质量 总汞、总砷、总铅的测定 原子荧光法 第一部分: 土壤中总汞的测定: GB/T 22105.1-2008[S]. 北京, 2008.
- [11] 中华人民共和国环境保护部. 土壤和沉积物12种金属元素的测定 王水提取-电感耦合等离子体质谱法: HJ 803-2016[S]. 北京, 2016.
- [12] 中华人民共和国环境保护部. 土壤和沉积物 金属元素总量的消解 微波消解法: HJ 832-2017[S]. 北京, 2017.
- [13] 中华人民共和国生态环境部, 国家市场监督管理总局. 土壤环境质量标准 农用地土壤污染风险管控标准(试行): GB 15618-2018[S]. 北京, 2018.
- [14] 范拴喜. 土壤重金属污染与控制[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2011: 190-191.
- [15] 徐争启, 倪师军, 庾先国, 等. 潜在生态危害指数法评价中重金属毒性系数计算[J]. *环境科学与技术*, 2008, 31(2): 112-115.
- [16] 翟羽佳. 城市污泥堆肥林业利用环境风险评价[D]. 北京: 北京林业大学, 2014.
- [17] 湛思嘉, 封莉, 左壮, 等. 污泥堆肥用于沙荒地造林过程中土壤重金属潜在生态风险评价[C] //中国环境科学学会, 中国环境科学研究院. 2016全国水环境污染控制与生态修复技术高级研讨会论文集. 云南, 2016: 102-108.
- [18] 湛思嘉. 污泥堆肥用于永定河沙荒地造林环境生态风险评价[D]. 北京: 北京林业大学, 2017.
- [19] 李其林. 区域生态系统土壤和作物中重金属的特征研究: 以重庆为例[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2010: 43-73.
- [20] 陈雅丽, 翁莉萍, 马杰, 等. 近十年中国土壤重金属污染源解析研究进展[J]. *农业环境科学学报*, 2019, 38(10): 2219-2238.
- [21] 翁莉萍, 陈雅丽, 彭皓, 等. 近十年中国土壤重金属污染源解析研究进展[C] // 中国化学会环境化学专业委员会, 中国环境科学学会环境化学分会. 第十届全国环境化学大会: 第十分会重金属的环境行为与解析摘要集. 天津, 2019: 4.

(责任编辑: 金曙光)

Eco-environmental risk assessment of urban sludge application in forest land

WANG Lixia^{1,2}, DU Ziwen^{1,2}, FENG Li^{1,2}, SUN Dezhi^{1,2}, ZHANG Liqui^{1,2}, LIU Yongze^{1,2,*}

1. College of Environmental Science and Engineering, Beijing Forestry University, Beijing 100083, China

2. Beijing Key Laboratory of Water Pollution Control Technology, Beijing 100083, China

*Corresponding author, E-mail: liuyongze@bjfu.edu.cn

Abstract The usage of sludge as fertilizers for forest land can improve the soil fertility and the plant growth, but the environmental risks of sludge usage are still unclear due to the relative high concentration of heavy metals in the sludge. Based on the five-year data of heavy metal concentration in the soil after the use of sludge as fertilizers, the single-factor index method and the potential risk hazard index method were used to investigate the effects of sludge properties, sludge dosage and continuous fertilization on the environmental risks of heavy metal in this study. The correlation analysis was also conducted to investigate the relationship between the change of heavy metal in soil and the use of sludge. The results showed that Hg, Cd, Zn, As and Pb in sludge had greater environmental risks, compared to other heavy metals. When the sludge dosage was 10% and 20%, the environmental risks were low. However, the risk to the environment was greater when the sludge dosage was 30% and 40%. The monitoring results showed that the heavy metals in the soil has accumulated but not exceeded Soil Environmental Quality Risk Control Standards for Soil Contamination of Agricultural Land (GB 15618-2018) ($6.5 \leq \text{pH} < 7.5$) in five years. According to the prediction model of soil pollutant accumulation, it showed that the heavy metal concentration in the soil would exceed the standard in the 11th year when the fertilization ratio was 10%, indicating that fertilization was safer in 10 years. Based on the correlation analysis, heavy metals in soil might be affected by various factors such as fertilizer sludge, atmospheric sedimentation, precipitation, and soil parent material. This study can provide a reference for the application of sludge products in forest land to avoid the risk of heavy metals.

Keywords sludge composting products; heavy metals; risk assessment; correlation analysis; prediction model of soil pollutant accumulation