

松阳县典型中轻度污染耕地镉输入输出平衡研究

徐火忠¹, 吴东涛², 李贵松¹, 吴林土¹, 叶春福¹,
郭彬³, 马嘉伟^{4,5}, 叶正钱^{4,5}, 柳丹^{4,5}

(1. 松阳县农业农村局, 浙江 松阳 323400; 2. 丽水市土肥植保能源总站, 浙江 丽水 323000; 3. 浙江省农业科学院, 浙江 杭州 310021; 4. 浙江农林大学 环境与资源学院, 浙江 杭州 311300; 5. 浙江农林大学 浙江省土壤污染生物修复重点实验室, 浙江 杭州 311300)

摘要: 【目的】为准确了解浙江省丽水市松阳县农田土壤中镉(Cd)污染来源并制定修复对策。【方法】2017-2019年, 以浙江省丽水市松阳县典型耕地为研究对象, 通过采集当地的投入品和农作物, 连续3 a监测重金属Cd的输入和输出量。【结果】2017-2019年, 研究区肥料与大气沉降是Cd的主要农业污染来源, 占比分别为49.78%和40.16%、50.20%和39.14%、34.04%和48.09%; 投入品每年Cd的总输入量分别占土壤Cd总量的0.18%、0.17%和0.14%。水稻*Oryza sativa*、油菜*Brassica napus*与茶*Camellia sinensis*的Cd年总输出量分别为2 820.00、2 706.00和2 629.50 mg·hm⁻²·a⁻¹, 年平均输出量为2 718.50 mg·hm⁻²·a⁻¹, 年平均输出量总体较为平稳。2017-2019年间Cd年输入量和输出量均逐年降低, 但Cd年输出量均大于Cd年输入量, 其原因可能是Cd在植物中出现了富集。【结论】该地区Cd的农业污染来源主要为肥料和大气沉降, 环境及农投品整体属于清洁水平, 但大气沉降量有上升的趋势, 因此需对该区域继续实施长期监测; 植物的年输出量均大于投入品的输入量, 因此需避免秸秆直接还田, 并及时修复当地受污染的土壤以及种植的植物。图1表5参25

关键词: 耕地土壤; 重金属; 镉污染; 输入输出; 松阳县

中图分类号: X53 文献标志码: A 文章编号: 2095-0756(2021)06-1231-07

Input and output balance of cadmium (Cd) in cultivated land with moderate pollution in Songyang County

XU Huozhong¹, WU Dongtao², LI Guisong¹, WU Lintu¹, YE Chunfu¹,
GUO Bin³, MA Jiawei^{4,5}, YE Zhengqian^{4,5}, LIU Dan^{4,5}

(1. Agricultural and Rural Bureau of Songyang County, Songyang 323400, Zhejiang, China; 2. Soil Fertilizer and Plant Protection Station of Lishui City, Lishui 323000, Zhejiang, China; 3. Zhejiang Academy of Agricultural Sciences, Hangzhou 310021, Zhejiang, China; 4. College of Environment and Resources, Zhejiang A&F University, Hangzhou 311300, Zhejiang, China; 5. Key Laboratory of Soil Contamination Bioremediation of Zhejiang Province, Zhejiang A&F University, Hangzhou 311300, Zhejiang, China)

Abstract: [Objective] This study is aimed at an accurate interpretation of the source of Cd pollution in farmland soil so as to put forward relevant suggestions for soil heavy metal remediation. [Method] An investigation was conducted of the input and output of heavy metal Cd in a typical piece of cultivated land in Songyang County of Zhejiang Province for three consecutive years by collecting local inputs and crops. [Result] During the period time from 2017 to 2019, fertilizer and atmospheric deposition were the main

收稿日期: 2020-11-24; 修回日期: 2021-03-15

基金项目: 浙江省重点研发计划项目(2018C03028)

作者简介: 徐火忠(ORCID: 0000-0003-3718-642X), 从事土壤重金属污染评价及修复研究。E-mail: 475469834@qq.com。通信作者: 柳丹(ORCID: 0000-0003-1102-6639), 教授, 博士生导师, 从事重金属污染修复研究。E-mail: liudan7812@aliyun.com

agricultural pollution sources of Cd, accounting for 49.78% and 40.16%, 50.20% and 39.14%, 34.04% and 48.09% respectively whereas the total input of Cd accounted for 0.18%、0.17% and 0.14% of the total soil Cd, respectively. The total output of Cd from rice, rape and tea were 2820.00, 2706.00 and 2629.50 $\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, respectively, with an average of 2718.50 $\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ and a relatively stable overall annual average output and the annual input and output decreased year by year, but the annual output was greater than the annual input, which may attribute to the enrichment of plant species. [Conclusion] It is advisable to devote efforts in the continuous implementation of long-term supervision over the atmospheric deposition in the region, the avoidance of direct return of straws to the field, the effective utilization of resources, and the timely restoration of the local contaminated soil and plants. [Ch, 1 fig. 5 tab. 25 ref.]

Key words: cultivated soil; heavy metal; the pollution of Cd; input and output; Songyang

近年来, 中国部分区域重金属污染日趋严重, 耕地土壤点位超标率达 19.4%^[1-3], 约 0.1 亿 hm^2 农田受到了污染^[4], 基本丧失农作物生产的能力^[5]。重金属污染已经成为影响产地环境质量, 农产品安全的突出问题^[6]。农田生态系统中土壤重金属主要的输入途径包括大气降尘^[7]、有机或无机肥^[8]、畜禽粪便^[9]、农药^[10]、污水灌溉^[11]等; 主要的输出途径包括地表径流^[12]、土壤渗流^[13]和作物收获^[14]。因此利用重金属输入输出平衡方法分析农田土壤中重金属输入、输出途径, 并进行量化分析^[15], 及时了解农田土壤中重金属污染及平衡情况, 掌握重金属元素的积累趋势, 对农田土壤污染风险评估和质量管理具有重要意义^[16]。该方法通过收集和计算不同来源的排放因子和活动水平, 估算各类污染源的排放量, 从而计算其贡献率^[17-18]。本研究以浙江省丽水市松阳县某典型耕地为例, 连续 3 a 开展农田土壤中镉 (Cd) 的输入输出平衡研究, 为进一步开展农田重金属污染控制提供数据支持。

1 材料与方 法

1.1 研究区域概况

研究区位于浙江省丽水市松阳县靖居包村, $28^{\circ}14'\sim 28^{\circ}37'N$, $119^{\circ}10'\sim 119^{\circ}42'E$ 。该区域属于亚热带季风气候, 年平均气温为 $14.2\sim 17.7\text{ }^{\circ}\text{C}$, $\geq 10\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的年活动积温为 $4\ 453\sim 5\ 634\text{ }^{\circ}\text{C}$, 全年无霜期为 $206\sim 236\text{ d}$, 年平均降水量为 $1\ 511\sim 1\ 844\text{ mm}$, 年平均雨日为 171 d 。其农业基础设施条件较好, 主要种植作物为水稻 *Oryza sativa* 和茶 *Camellia sinensis*, 其中, 稻田水稻季肥料施用情况为 $450\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ 尿素+过磷酸钙 $300\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ +复合肥 $300\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$; 稻田油菜 *Brassica napus* 季肥料施用情况为尿素 $300\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ +复合肥 $750\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$; 茶园施用尿素 $600\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ +复合肥 $750\text{ kg}\cdot\text{hm}^{-2}$ 。该研究区稻田与茶园种植面积比约 4:6。

1.2 样品采集与制备

1.2.1 土壤样品采集 在靖居包村划定的耕地范围, 采用网格法定点采集耕层土壤样品, 根据具体地形、作物布局、土地利用状况对土壤采样布点进行疏密调整, 利用全球定位系统 (GPS) 对采样点坐标定位。通过梅花点法采集周围半径约 5 m 区域内的 5 个采样点, 深度为 0~20 cm 的表层土壤, 各约 1.0 kg。将 5 个采样点土壤样品进行混合装袋, 并且利用 GPS 获取采样点的经纬度坐标, 做好采样记录, 共采集土壤样品 37 份。测定土壤化学性质与重金属镉 (Cd)、铅 (Pb) 和砷 (As) 全量。

1.2.2 干湿沉降 在研究区域内布设观测点, 在距离研究区较远处设置对照点, 收集大气干湿沉降样品。降尘缸固定放置于距地面 5 m 处, 采样点附近无高大建筑物, 并避开局部污染源。前期准备集成缸 (内径 20 cm, 高 50 cm 的圆筒形玻璃集尘缸)。将集尘缸带到指定地点收集样品, 记录放缸时间、地点、序号 (雨季及时更换新缸)。隔 2 个月定期更换降尘缸 1 次, 取缸时核对地点、缸号、时间, 罩上塑料袋带回实验室。自 2017 年 1 月初开始采集, 周期 3 a。

1.2.3 肥料与农药 在每季作物种植前和种植过程中, 在当地农户家收集或去市场购买当地常用的化肥与农药, 各 10 个样品, 记录收集到的样品品牌、生产地等。每份样品 1.0~1.5 kg。

1.2.4 灌溉水样品 先用该地的水样冲洗塑料瓶 3 次, 再用塑料瓶伸入取样点水面以下 0.1 m 处采集 1 L 水样。2017~2019 年, 每年定期采集灌溉水 20 个样品。

1.2.5 水稻、油菜和茶 由于收割时水稻、油菜的根部仍留在土中，因此未取植物根部。采集稻米与稻秆、油菜籽与油菜秆、茶叶与茶枝条。每个样品约 1.0 kg。

1.3 样品处理与分析

土壤样品风干后，剔除残渣及可见侵入体，过 2 mm 筛后研磨，再过 100 目筛，装入样品袋备用。分析样品的理化性质，利用氟化氢-硝酸-高氯酸的混合物消化土壤样品，测定重金属全量，同时使用标准样品，每种元素标准误差小于 10% 时结果可信。大气降尘样品参照 GB/T 15265-1994《环境空气降尘的测定 重量法》测定湿沉降和干沉降。肥料中重金属测定参考 GB/T 23349-2009《肥料中砷、镉、铅、铬、汞生态指标》。农药中重金属测定参考 GB/T 20770-2008《粮谷中 46 种农药及相关化学品残留量的测定》中的液相色谱串联质谱法。灌溉水样品采用硝酸消解，消解方法参考 HJ 677-2013《水质 金属总量的消解 硝酸消解法》，消解后混合液体待测。植物样品经过研磨后加入硝酸、过氧化氢的混合酸液，静置过夜后消解 10 h，冷却定容待测，通过石墨炉原子吸收光谱法 (GFAAS, PerkinElmer AA800, 美国) 分析测定镉质量浓度。大气降尘、肥料、农药、稻米和稻秆、茶叶和茶枝条的加标回收率均小于 10%。

1.4 输入输出量计算方法

1.4.1 镉输入计算 该地区大气干湿沉降、肥料和农药投入、灌溉水是地区农田土壤重金属的主要输入源。各污染源输入农田土壤重金属的计算公式如下： $A_a = A_d + C_w \times S$ ； $A_f = C_f \times N_f$ ； $A_i = C_i \times W$ ； $A_p = C_p \times N_p$ ； $A_{total} = A_a + A_f + A_i + A_p$ 。其中， A_{total} 为总输入量， A_a 、 A_f 、 A_i 和 A_p 分别为大气沉降、肥料、灌溉水和农药 4 种投入品的 Cd 输入量， A_d 为干沉降 Cd 输入量； S 为年降水量， W 为灌溉水施用量， N_p 为施肥量或施用农药量； C_w 为湿沉降时 Cd 的质量浓度， C_f 、 C_i 和 C_p 分别为肥料中 Cd 质量分数、灌溉水中 Cd 质量浓度和农药中的 Cd 质量分数。

1.4.2 镉输出计算 选择农作物收获和秸秆移除计算农田土壤 Cd 的输出量。该研究区稻田与茶园种植面积比约 4:6，所以按下列公式进行计算： $O_r = (W_r \times C_r + W_{rs} \times C_{rs}) \times 40\%$ ； $O_v = (W_v \times C_v + W_{vs} \times C_{vs}) \times 40\%$ ； $O_t = (W_t \times C_t + W_{ts} \times C_{ts}) \times 60\%$ ； $O_{total} = O_r + O_v + O_t$ 。其中， O_{total} 为总输出量， O_r 、 O_v 和 O_t 分别为水稻、油菜和茶叶的 Cd 输出量； W_r 和 W_{rs} 分别为稻米和稻秆的年产量， W_v 和 W_{vs} 为油菜籽和油菜秆的年产量， W_t 和 W_{ts} 为茶叶和茶枝条的年产量； C_r 和 C_{rs} 分别为稻米和稻秆中 Cd 的平均质量分数， C_v 和 C_{vs} 分别为油菜籽和油菜秆中 Cd 的平均质量分数， C_t 和 C_{ts} 分别为茶叶和茶枝条中 Cd 的平均质量分数。

1.5 数据分析

采用 Excel 2010 进行监测数据的预处理，用 SPSS 16.0 分析数据。

2 结果与分析

2.1 土壤基本理化性质与重金属污染情况

研究区土壤 pH 为 4.11~6.59，有机质质量分数为 6.77~27.49 g·kg⁻¹，碱解氮为 63.00~206.96 mg·kg⁻¹，有效磷为 12.5~49.5 mg·kg⁻¹，速效钾为 37.5~112.5 mg·kg⁻¹，土壤 Cd、Pb 和 As 质量分数均值分别为 0.31、70.31、3.41 mg·kg⁻¹。根据 GB 15618-2018《农用地土壤污染风险管控标准》中 Cd、Pb、As 的风险筛选值进行计算，该区域表层土壤污染重金属 Pb 与 As 均未超标，Cd 属于轻度污染范围。

2.2 2017-2019 年研究区 Cd 输入分析

2.2.1 大气干湿沉降输入分析 根据松阳县的年平均降水量 (1 650 mm) 计算大气干湿沉降输入 (表 1)。2017-2019 年，Cd 的干湿沉降年输入量分别为 502.95、451.95、484.50 mg·hm⁻²·a⁻¹。

2.2.2 肥料输入分析 依据 GB 38400-2019《肥料中有毒有害物质的限量要求》中，Cd 的限量标准值 (10 mg·kg⁻¹)，研究区的肥料均未超出标准值。其中 2017-2019 年尿素 Cd 的质量分数平均值分别为 0.01、0.07 和 0.04 mg·kg⁻¹，过磷酸钙中的 Cd 分别为 2.77、0.40 和 0.22 mg·kg⁻¹，复合肥中的 Cd 分别为 0.33、0.56 和 0.33 mg·kg⁻¹。根据稻田和茶园种植面积比例进行计算，该地区 2017-2019 年肥料 Cd 的年输入量分别为 623.49、579.57、342.99 mg·hm⁻²·a⁻¹ (表 2)。总体来说，由肥料带来的 Cd 年输入量逐年降低。

2.2.3 灌溉水输入分析 2017-2019 年的灌溉水 Cd 输入见表 3。依据 GB 5084-2021《农田灌溉水质标准》，采集的水样数据均没有超过国家标准值，属清洁水平。根据 2017 年采集 20 份灌溉水样的结果，未检出 Cd 的有 9 份，其他 11 份 Cd 镉质量浓度平均值为 0.21 μg·L⁻¹；2018 年采集的 20 份灌溉水样 Cd 镉质量

表1 2017–2019年大气干湿沉降镉年输入量

Table 1 Cd input of atmospheric dry and wet deposition in 2017–2019

年份	降水中Cd质量浓度/($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}\cdot\text{a}^{-1}$)	Cd年输入量/($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)		总计/($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)
		湿沉降	干沉降	
2017	0.02±0.00 a	308.55±56.30 a	194.40±14.00 a	502.95±63.30 a
2018	0.02±0.00 a	268.95±16.86 a	183.00±12.52 a	451.95±29.38 a
2019	0.02±0.00 a	343.20±18.28 a	141.30±12.62 a	484.50±30.90 a

说明：不同小写字母表示在0.05水平上差异显著

表2 2017–2019年研究区稻田与茶园化肥中镉年输入量

Table 2 Cd annual chemical fertilizer input of paddy field and tea garden in demonstration area from 2017 to 2019

年份	类别	Cd年输入量/($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)			合计/($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	总计/($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)
		尿素	过磷酸钙	复合肥		
2017	稻田	3.00±0.23 b	332.40±47.20 a	137.34±25.60 a	472.74±59.13 a	623.49±102.35 a
	茶园	3.60±0.32 b	0	147.15±30.26 a	150.75±38.80 a	
2018	稻田	19.95±1.93 a	48.48±3.20 b	235.20±54.60 a	303.63±44.96 ab	579.57±65.05 a
	茶园	23.94±3.72 a	0	252.00±58.50 a	275.94±42.26 a	
2019	稻田	12.00±2.01 ab	26.88±3.20 b	139.86±23.60 a	178.74±57.48 b	342.99±37.26 a
	茶园	14.40±1.80 ab	0	149.85±16.00 a	164.25±34.84 a	

说明：不同小写字母表示在0.05水平上差异显著

表3 2017–2019年灌溉水和农药镉年输入量

Table 3 Cd content of irrigation water and pesticides from 2017–2019

年份	灌溉水		农药	
	平均质量浓度/($\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)	年输入量/($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	平均质量分数/($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	年输入量/($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)
2017	0.21±0.04 a	126.00±14.60 a	0.07±0.01 a	0.05±0.01 a
2018	0.21±0.02 a	123.00±19.90 a	0.09±0.01 a	0.06±0.01 a
2019	0.30±0.02 a	180.00±6.00 a	0.06±0.03 a	0.05±0.00 a

说明：不同小写字母表示在0.05水平上差异显著

浓度平均值为 $0.21 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ；2019年只有1份水样检测出Cd，质量浓度为 $0.30 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 。根据风险评估标准，将唯一检测值作为平均质量浓度，根据当地实际情况，年均灌溉水量为 $6\ 000 \text{ m}^3\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ ，则2017–2019年，灌溉水Cd年输入量分别为126.00、123.00和180.00 $\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

2.2.4 农药输入分析 由表3可见：2017–2019年，农药中Cd的平均质量分数分别为0.07、0.09、0.06 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ，均小于国家标准值(10 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)。依据农药年均用量 $0.75 \text{ mg}\cdot\text{hm}^{-2}$ 计算输入量，则2017–2019年农药Cd的年输入量分别为0.05、0.06和0.05 $\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

2.3 2017–2019年研究区Cd输出分析

由表4可见：2017–2019年研究区Cd年总输出量分别为2 820.00、2 706.00和2 629.50 $\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ ，Cd的总输出量随着年份的增加逐年下降，但总体较平稳，平均值为2 718.50 $\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

2.4 2017–2019年研究区Cd输入输出平衡估算

对2017–2019年研究区Cd输入输出平衡估算(图1)发现：肥料和大气沉降是Cd主要的输入方式，灌溉水和农药占比较小。对3a的投入品输入分析进行比较发现：大气沉降、灌溉水的Cd输入比例呈现逐渐上升的趋势，肥料的占比是下降的趋势，农药基本保持不变；2017–2019年，肥料和大气沉降是农业污染源重要的污染方式。按照耕层土壤为 $2\ 250 \text{ t}\cdot\text{hm}^{-2}$ 、土壤总Cd质量分数为 $0.31 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 计算，2017–2019年Cd的年输入量分别占土壤总Cd量的0.18%、0.17%和0.14%，因此研究区周围环境及农投品均属清洁水平。表5结果表明：2017–2019年间，Cd年输入量和输出量均逐年降低，但年输出量均要大于年输入量。

表 4 2017–2019 年研究区不同植物部位的镉质量分数与总输出量

年份	水稻			油菜			茶			Cd总输出量/ ($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)
	Cd质量分数($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)		Cd输出量/ ($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	Cd质量分数($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)		Cd输出量/ ($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	Cd质量分数($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)		Cd输出量/ ($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$)	
	稻米	稻秆		油菜籽	油菜秆		茶叶	茶枝条		
2017	0.12±0.02 a	0.21±0.03 a	1026.00±93.27 a	0.13±0.03 a	0.63±0.06 a	723.00±82.70 a	0.09±0.02 a	0.66±0.13 a	1071.00±299.08 a	2820.00±335.05 a
2018	0.10±0.01 a	0.21±0.02 a	943.50±62.90 a	0.15±0.04 a	0.63±0.08 a	750.00±92.41 a	0.05±0.01 b	0.21±0.05 b	1012.50±99.69 a	2706.00±235.04 b
2019	0.09±0.01 a	0.22±0.04 a	985.50±75.59 a	0.05±0.01 b	0.63±0.06 a	622.50±59.32 b	0.06±0.01 b	0.21±0.07 b	1021.50±98.61 a	2629.50±223.52 b

说明：不同小写字母表示在0.05水平上差异显著

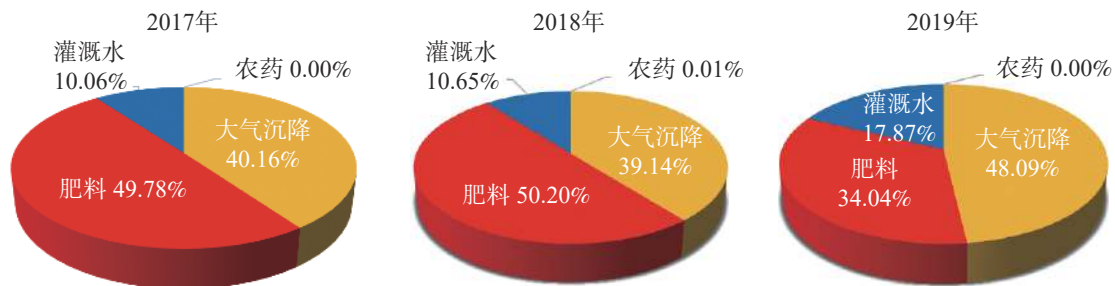


图 1 2017–2019 年研究区投入品镉输入占比比较

Figure 1 Comparison of input analysis results of demonstration area in 2017–2019

表 5 2017–2019 年镉输入与输出量各项比较

年份	Cd输入($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}$)					Cd输出($\text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}$)			
	大气沉降	肥料	灌溉水	农药	总量	水稻	油菜	茶	总量
2017	502.95±63.30 a	623.49±102.35 a	126.00±34.60 a	0.05±0.01 a	1252.50±153.37 a	1026.00±93.27 a	723.00±83.70 a	0.66±0.13 a	2820.00±335.05 a
2018	451.95±29.38 a	579.57±65.05 a	123.00±29.90 a	0.06±0.02 a	1154.58±108.72 a	943.50±62.9 a	750.00±92.41 a	0.21±0.05 b	2706.00±235.04 b
2019	484.50±30.90 a	342.99±37.26 a	180.00±6.00 a	0.05±0.02 a	1007.57±63.20 b	985.50±75.59 a	622.50±59.32 b	0.21±0.07 b	2629.50±223.52 b

说明：不同小写字母表示在0.05水平上差异显著

3 讨论

不同输入源对不同重金属污染的贡献存在一定的差异。本研究发现：2017–2019 年研究区农田土壤重金属污染主要途径是肥料与大气沉降，分别占比 34.04%~50.20% 和 39.14%~48.09%，而灌溉水仅占 10.06%~17.87%，农药仅占 0%~0.01%。

LIU 等^[19] 研究中发现：大气沉降是农田系统 Cd 污染的主要来源，大气沉降进入土壤中又会降低土壤 pH，会进一步导致 Cd 的有效态含量增加^[20]。本研究区内无工厂、高铁或高速公路等明显的污染源，因此重金属污染主要受到气候的影响^[21]。有研究指出：大气沉降通量具有明显的季节变化，通常在冬春季最大^[22]，可能与地区的冬季供暖、燃煤等人为活动密切相关^[23]。本研究区域大气沉降通量存在明显的季节变化规律，夏季湿沉降普遍高于其他季节，冬春季节干沉降较高。可能是本研究区处于亚热带季风气候，夏季充沛的降雨导致空气中的重金属通过降雨被带入农田系统中，而冬春季受供暖等活动影响 Cd 干沉降较高。

本研究区肥料投入主要以化肥为主，有研究表明：施用过磷酸钙会导致土壤中 Cd 的积累，过磷酸钙中 Cd 含量远高于其他磷肥，而尿素和复合肥中 Cd 含量均低于磷肥^[24]，这和本研究结果一致，本研究区投入品中肥料对 Cd 贡献比例较高，是 Cd 输入的主要来源之一。

本研究区施用农药所导致的 Cd 的输入占比仅为 0.01%，可忽略不计。施加的农药均为有机农药，生产过程中不涉及重金属。此外，农田年均施用量也较少，所以土壤中 Cd 含量较低。这与童文彬等^[25] 结果基本一致。

本研究区中农田系统 Cd 的输出主要通过作物收获, 作物收获引起的 Cd 输出量高于 Cd 输入量。3 种作物 Cd 输出量从大到小依次为茶叶、水稻、油菜, 且茎秆 Cd 含量远高于其他部位, 因而在制定土壤污染防治措施时, 可以将茎秆移除, 减少还田, 从而达到减少 Cd 的净输入量。

综上, 肥料与大气沉降是投入品主要污染来源, 但肥料与大气沉降总体处于安全级别。由于年降水量呈现上升趋势, 仍然建议需要继续监控大气沉降。虽然农产品为可食用级别, 但仍然需要避免秸秆直接还田, 并进行有效资源化利用, 集中收集枝条也是修复污染土壤的过程, 可以达到边生产边修复的目的。

4 结论

本研究区中 2017–2019 年 Cd 的年输入量分别占土壤总 Cd 量的 0.18%、0.17% 和 0.14%, 占比小, 表明投入品属清洁水平。投入品输入具体表现为肥料中 Cd 的年输入量呈现降低的趋势, 大气沉降和灌溉水的年输入量呈现上升的趋势, 农药占比可忽略不计。其中施用磷肥导致土壤中 Cd 的含量降低, 大气沉降主要源于气候。2017–2019 年研究区内的 Cd 年输出量总体比较平稳, 平均为 $2\ 718.50\ \text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 。其中, 茶叶 Cd 年输出量最高, 为 $1\ 012.50\sim 1\ 071.00\ \text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 水稻 Cd 年输出量居中, 为 $943.50\sim 1\ 026.00\ \text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$, 油菜 Cd 年输出量最低, 为 $622.50\sim 750.00\ \text{mg}\cdot\text{hm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$ 。2017–2019 年间 Cd 年输入量和输出量均逐年降低, 说明对农投品的监控存在一定的作用, 但各年输出量均大于年输入量, 其原因可能是 Cd 在植物中出现了富集情况, 因此需及时对植物进行修复。

5 参考文献

- [1] 陈世宝, 王萌, 李杉杉, 等. 中国农田土壤重金属污染防治现状与问题思考[J]. 地学前缘, 2019, 26(6): 35–41.
CHEN Shibao, WANG Meng, LI Shanshan, *et al.* Current status of and discussion on farmland heavy metal pollution prevention in China [J]. *Earth Sci Front*, 2019, 26(6): 35–41.
- [2] CHEN Junren, SHAFI M, LI Song, *et al.* Copper induced oxidative stresses, antioxidant responses and phytoremediation potential of Moso bamboo (*Phyllostachys pubescens*) [J]. *Sci Rep*, 2015, 5: 13554. doi: 10.1038/srep13554.
- [3] 陈能场, 郑煜基, 何晓峰, 等. 《全国土壤污染状况调查公报》探析[J]. 农业环境科学学报, 2017, 36(9): 1689–1692.
CHEN Nengchang, ZHENG Yuji, HE Xiaofeng, *et al.* Analysis of the bulletin of national soil pollution survey [J]. *J Agro-Environ Sci*, 2017, 36(9): 1689–1692.
- [4] TENG Yangguo, NI Shijun, WANG Jinsheng. A geochemical survey of trace elements in agricultural and non-agricultural topsoil in Dexing area, China [J]. *J Geochem Exp*, 2010, 104(3): 118–127.
- [5] 陈卫平, 杨阳, 谢天, 等. 中国农田土壤重金属污染防治挑战与对策[J]. 土壤学报, 2018, 55(2): 261–272.
CHEN Weiping, YANG Yang, XIE Tian, *et al.* Challenges and countermeasures for heavy metal pollution control in farmlands of China [J]. *Acta Pedol Sin*, 2018, 55(2): 261–272.
- [6] ZARCINAS B A, CHE F I, MCLAUGHLIN M J, *et al.* Heavy metals in soils and crops in southeast Asia [J]. *Environ Geochem Health*, 2004, 26(3): 343–357.
- [7] YI Kexin, FAN Wang, CHEN Jiayu. Annual input and output fluxes of heavy metals to paddy fields in four types of contaminated areas in Hunan Province, China [J]. *Sci Total Environ*, 2018, 634: 67–76.
- [8] BELON E, BOISSON M, DEPORTES I Z, *et al.* An inventory of trace elements inputs to French agricultural soils [J]. *Sci Total Environ*, 2012, 439(15): 87–95.
- [9] JIANG Wei, HOU Qingye, YANG Zhongfang, *et al.* Annual input fluxes of heavy metals in agricultural soil of Hainan Island, China [J]. *Environ Sci Pollut Res*, 2014, 21(13): 7876–7885.
- [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 Yongzhang, SHEN Wenjie, LI Yong, *et al.* A study of prediction and early-warning forecast on geochemical accumulation of soil heavy metals based on flux model in Pearl River delta Economic zone (China) [J]. *Adv Earth Sci*, 2012, 27(10): 1115–1125.
- [11] NICHOLSON F A, MCIWEM S R S, ALLOWAY B J, *et al.* Quantifying heavy metal inputs to agricultural soils in England and Wales [J]. *Water Environ J*, 2006, 20(2): 87–95.

- [12] 张昱, 胡君利, 白建峰, 等. 电子废弃物拆解区周边农田土壤重金属污染评价及成因解析[J]. 生态环境学报, 2017, **26**(7): 1228 – 1234.
ZHANG Yu, HU Junli, BAI Jianfeng, *et al.* Contamination assessment and genesis analysis of heavy metals in farmland soils around a waste electrical and electronic equipment's disassembling area [J]. *Ecol Environ Sci*, 2017, **26**(7): 1228 – 1234.
- [13] XIA Xueqi, YANG Zhongfang, CUI Yujun, *et al.* Soil heavy metal concentrations and their typical input and output fluxes on the southern Song-nen Plain, Heilongjiang Province, China [J]. *J Geochem Exp*, 2014, **139**: 85 – 96.
- [14] DOABI S A, KARAMI M, AFYUNI M, *et al.* Regional-scale fluxes of zinc, copper, and nickel into and out of the agricultural soils of the Kermanshah province in western Iran [J]. *Environ Monit Assess*, 2016, **188**: 216. doi: [10.1007/s10661-016-5225-3](https://doi.org/10.1007/s10661-016-5225-3).
- [15] 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 Taoran. *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.
- [16] 黄颖. 不同尺度农田土壤重金属污染源解析研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2018.
HUANG Ying. *The Exploring of Heavy Metal Pollution Source Apportionment in Various Scale of Agricultural Soils*[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2018.
- [17] 李娇, 吴劲, 蒋进元, 等. 近十年土壤污染物源解析研究综述[J]. 土壤通报, 2018, **49**(1): 232 – 242.
LI Jiao, WU Jin, JIANG Jinyuan, *et al.* Review on source apportionment of soil pollutants in recent ten years [J]. *Chin J Soil Sci*, 2018, **49**(1): 232 – 242.
- [18] 杨硕, 阎秀兰, 冯依涛. 河北曹妃甸某农场农田土壤重金属空间分布特征及来源分析[J]. 环境科学学报, 2019, **39**(9): 3064 – 3072.
YANG Shuo, YAN Xiulan, FENG Yitao. Spatial distribution and source identification of heavy metals in the farmland soil of the Caofeidian in Hebei Province [J]. *Acta Sci Circumstantiae*, 2019, **39**(9): 3064 – 3072.
- [19] LIU Ping, ZHAO Haijun, WANG Lili, *et al.* Analysis of heavy metal sources for vegetable soils from Shandong Province, China [J]. *Agric Sci China*, 2011, **10**(1): 109 – 119.
- [20] 杨梦丽, 马友华, 黄文星, 等. 土壤 Cd 和 Pb 有效态与全量和 pH 相关性研究[J]. 广东农业科学, 2019, **46**(4): 80 – 86.
YANG Mengli, MA Youhua, HUANG Wenxing, *et al.* Study on the correlation between available state, total amount and pH of soil Cd and Pb [J]. *Guangdong Agric Sci*, 2019, **46**(4): 80 – 86.
- [21] 朱鹏, 刘洋, 陈良华, 等. 岷江下游农田生态系统重金属铅镉锌的输入源格局[J]. 农业环境科学学报, 2013, **32**(9): 1814 – 1820.
ZHU Peng, LIU Yang, CHEN Lianghua, *et al.* Input pattern of sources for Pb, Cd and Zn in the agricultural ecological system in the lower reaches(Wutongqiao Section) of Minjiang River [J]. *J Agri-Environ Sci*, 2013, **32**(9): 1814 – 1820.
- [22] HUANG Wen, DUAN Dandan, ZHANG Yulong, *et al.* Heavy metals in particulate and colloidal matter from atmospheric deposition of urban Guangzhou, South China [J]. *Mar Pollut Bull*, 2014, **85**(2): 720 – 726.
- [23] 张国忠, 黄威, 潘月鹏, 等. 河北典型农田大气重金属干沉降通量及来源解析[J]. 中国生态农业学报, 2019, **27**(8): 1245 – 1254.
ZHANG Guozhong, HUANG Wei, PAN Yuepeng, *et al.* Dry deposition flux of atmospheric heavy metals and its source apportionment in a typical farmland of Hebei Province [J]. *Chin J Eco-Agric*, 2019, **27**(8): 1245 – 1254.
- [24] 陈芳, 董元华, 安琼, 等. 长期肥料定位试验条件下土壤中重金属的含量变化[J]. 土壤, 2005, **37**(3): 308 – 311.
CHEN Fang, DONG Yuanhua, AN Qiong, *et al.* Changes of soil heavy metal content in long-term fertilization trial [J]. *Soils*, 2005, **37**(3): 308 – 311.
- [25] 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 Wenbin, GUO Bin, LIN Yicheng, *et al.* Assessment of input-output patterns of Cd and Pb of typical heavy metal polluted agricultural land in Quzhou [J]. *J Nucl Agric Sci*, 2020, **34**(5): 1061 – 1069.