doi:10.6041/j.issn.1000-1298.2025.09.063

基于源导向的沼肥施用区域土壤重金属来源解析与风险评估

宋世圣[1]　张唐娟[2]　胡宝娥[3]　冉　毅[4]　牛文娟[1]　王媛媛[1]　艾　平[1]

(1.华中农业大学工学院, 武汉 430070; 2.武汉市农业科学研究院, 武汉 430300;
3.汉川市农业农村局, 汉川 432300; 4.农业农村部成都沼气科学研究所, 成都 610041)

摘要: 通过连续 4 a(2019—2023 年)的设施温室上海青-茄子轮作试验,设置 BF85、BF170、BF340、BF680 沼肥施用量水平,系统探究不同负荷沼肥连续施用对土壤重金属含量的影响,采用改进地累积指数法评估土壤重金属富集水平,结合相关性分析-正定矩阵因子分解法(PMF)解析污染源,基于土壤健康模型量化致癌与非致癌风险,并确定优先管控因子。结果表明:连续施用沼肥主要造成了土壤 Cu、Zn 含量累积,但各处理改进地累积指数均低于 1,整体污染水平为无至轻微富集;源解析结果共识别出 4 类污染源:沼肥源(Cu、Zn)、农业投入源(Pb)、母质-灌溉水混合源(Cr)和自然母质源(As、Cd、Hg),其中母质-灌溉水混合源对土壤重金属的贡献率最大,沼肥源随着沼肥施用量的增加,对重金属的贡献率也随之增加;土壤健康风险评估结果显示,As 为致癌风险(CR)主导因子(儿童 TCR 达 1.91×10^{-4}),非致癌风险(HI)虽处可接受水平(HI 小于 1),但儿童暴露风险显著高于成人($P<0.05$);优先控制因子分析表明 As 为首要管控因子,混合源与自然母质源均为试验区的重要管控源,应基于重金属差异化毒理特征进行差异化管控。研究结果为沼肥安全施用与土壤重金属协同管控提供了科学依据。

关键词: 沼肥; 土壤重金属; 来源解析; 风险评估; 主控因子; 源导向

中图分类号: X53; S216.4　　**文献标识码**: A　　**文章编号**: 1000-1298(2025)09-0729-11　　**OSID**:

Source Analysis and Risk Assessment of Soil Heavy Metals in Area of Biogas Digestate Fertilizer Application Based on Source-oriented Analysis

SONG Shisheng[1]　ZHANG Tangjuan[2]　HU Baoe[3]　RAN Yi[4]　NIU Wenjuan[1]　WANG Yuanyuan[1]　AI Ping[1]

(1. *College of Engineering, Huazhong Agricultural University, Wuhan* 430070, *China*
2. *Wuhan Academy of Agricultural Sciences, Wuhan* 430300, *China*
3. *Hanchuan Agriculture and Rural Affairs Bureau, Hanchuan* 432300, *China*
4. *Biogas Institute of Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Chengdu* 610041, *China*)

Abstract: A four-year (2019—2023) greenhouse rotation experiment was conducted to systematically investigate the effects of continuous application of varying amounts of biogas digestate fertilizer (BF) on the heavy metal content in soil. Four levels of BF (85 kg/hm^2, 170 kg/hm^2, 340 kg/hm^2, and 680 kg/hm^2) were used to assess heavy metal accumulation in the soil. The improved geo-accumulation index (I_m), combined with correlation analysis and positive matrix factorization, was employed to analyze contamination sources and identify priority control factors. The results showed that continuous application of BF primarily led to the accumulation of Cu and Zn in the soil. However, the I_m values for all treatments were below 1, indicating minimal to slight enrichment and overall low levels of pollution. Four types of pollutant sources were identified: the BF source (Cu, Zn), agricultural input source (Pb), geology - irrigation water mixing source (Cr), and natural geology source (As, Cd, Hg). The mixing source was the most significant contributor to soil heavy metals, while the contribution from the BF source was increased with the increase of application rates. Soil health risk assessment revealed that As was the dominant carcinogenic risk factor, with the total cancer risk (TCR) for children reaching as high as

收稿日期: 2025-02-12　修回日期: 2025-02-28

基金项目: 国家自然科学基金项目(31972611)、四川省自然科学基金项目(2023NSFSC1253)和重庆市乡村振兴项目(xczx0036)

作者简介: 宋世圣(1998—),男,博士生,主要从事沼液沼渣肥料化利用研究,E-mail: song17512513328@163.com

通信作者: 艾平(1976—),女,教授,博士,主要从事农业废弃物资源化利用研究,E-mail: aiping@mail.hzau.edu.cn

1.91×10^{-4}. Although non-carcinogenic risks were within acceptable levels (HI was below 1), exposure risks for children were significantly higher than those for adults ($P < 0.05$). Priority control factor analysis indicated that As should be the primary target for control. Both the mixed source and natural geology source were important contributors in the test area, requiring differentiated management based on the toxicological characteristics of heavy metals. The research result can provide a scientific basis for the safe application of BF and the synergistic management of soil heavy metals.

Key words: biogas digestate fertilizer; soil heavy metal; source analysis; risk assessment; master factor; source-oriented

0 引言

沼气工程规模大中型化的同时,伴生的沼液、沼渣也为养殖场周边带来巨大的环境压力。沼肥(即沼液、沼渣)中含丰富的营养元素,施用后可有效调节土壤水、肥、气、热[1],合理施用将产生巨大的价值。然而,以畜禽粪便为主要原料发酵的沼肥中普遍存在重金属残留问题,长期施用可导致土壤重金属的持续性累积,进而对农产品安全生产构成潜在生态风险[2]。为解决该问题,生态环境部于 2022 年制定并印发了《“十四五”土壤、地下水和农村生态环境保护规划》,以期实现土壤质量稳中向好、重金属污染情况得到有效管控的目标。

明晰土壤重金属的主要来源及其环境风险,对于制定合适的土壤管理策略是至关重要的。文献[3]解析了菏泽油用牡丹种植区的重金属来源,并明确了 Cd 和 Hg 元素是研究区生态风险的主导元素。文献[4]分析了污灌-工业复合区农田土壤的重金属优先控制源,发现该试验区内 8 种重金属共有 4 种来源,其中工农业活动为该区土壤重金属的优先控制来源。文献[5]通过相关性分析及主成分分析对银川市土壤重金属主控因子进行分析,发现该研究区表层土壤重金属含量存在空间差异,重金属来源主要为交通-农业复合污染源。文献[6]综合分析污染因子、污染源、健康风险间的关系,得出农业源为矿库周边土壤首要控制源的结论。可是,现有研究对沼肥长期施用情境下土壤重金属累积特征的探讨仍显不足,主要围绕沼肥替代化肥[7]、土壤肥力变化[8]等方面,针对沼肥施用区重金属的根源性研究尚未见报道。因此,面向连续定位施用沼肥的农田土壤开展重金属污染评价和来源解析研究对于沼气产业绿色化、农业生产安全化具有重要意义。

本文通过连续 4 a 的定位轮作试验,解析猪粪沼肥施用下土壤重金属(Cu、Zn、Pb、Cr、Cd、As、Hg)的全量变化规律,引入改进地累积指数法进行动态风险评估,耦合相关性分析-PMF 源解析实现污染源贡献率解译,在此基础上,构建“源-汇”模型揭示重金属-污染源-人体健康风险关系,旨在为农业污染的精准治理提供多目标优化理论范式。

1 材料与方法

1.1 试验材料

为尽可能减少外源重金属影响,试验田设于华中农业大学机电训练中心的试验温室内,选取典型黄壤土为试验土壤,上海青(高积累蔬菜)与茄子(低积累蔬菜)为轮作试验作物。供试沼液、沼渣发酵原料均为猪粪,初始土壤与沼肥重金属含量(质量比)如表 1 所示。沼渣基肥以穴施方法进行,覆盖约 10 cm 厚土层,以减少养分挥发,与开穴挖出的土壤混合后隔日进行定植,自定植后第 7 天开始,每 7 d 进行一次沼液追肥,其中上海青种植共 4 次追肥,茄子共 3 次。

表 1 初始土壤与所施沼肥重金属含量

Tab. 1 Heavy metal content of initial soil and BF mg/kg

参数	初始土壤	2019 上海青—2020 茄子栽培		2020 上海青栽培		2021 茄子—2023 茄子栽培	
		沼渣	沼液	沼渣	沼液	沼渣	沼液
Cu 含量	28.0 ± 0.7	150.3 ± 8.6	3.3 ± 0.6	139.5 ± 2.9	0	106.0 ± 6.5	0
Zn 含量	88.0 ± 2.2	485.0 ± 25.1	2.7 ± 0.6	456.0 ± 7.3	2.8 ± 0.9	692.0 ± 97.6	4.0 ± 1.6
Pb 含量	28.0 ± 0.7	1.1 ± 0.4	0.1	0.1	0	1.0 ± 0.3	0.2 ± 0.1
Cr 含量	72.0 ± 1.8	5.0 ± 1.0	3.7 ± 1.2	0	0	0	0
Cd 含量	0.1	0.3 ± 0.1	0.10 ± 0.01	0.1	0	0.06 ± 0.01	0
As 含量	9.7 ± 0.2	0.30 ± 0.03	0	0.4 ± 0.1	0	0.5 ± 0.1	0
Hg 含量	0.20 ± 0.01	0.01	0.01	0.009	0.004 ± 0.001	0.02 ± 0.01	0.04 ± 0.01

1.2　作物栽培小区划定及试验组设定

试验设计采取完全随机区组方案，试验单元规格设定为 2.2 m × 2.0 m，各处理单元间设置 50 cm 深的 PVC 板隔离，可有效避免溶质迁移。采取上海青-茄子轮作制度（图 1），上海青于每年 10—12 月栽培，休耕后在 4—8 月种植茄子。



（a）上海青　　（b）茄子

图 1　试验作物栽培

Fig. 1　Cultivation of test crops

氮源替代施肥通常被认为是一种提高土壤质量和作物产量的有效施肥方式[9]，因此沼肥处理根据常规园艺氮肥施用量（170 kg/hm^2）分别设置 BF85（85 kg/hm^2）、BF170（170 kg/hm^2）、BF340（340 kg/hm^2）、BF680（680 kg/hm^2）4 个水平，以沼渣为基肥，沼液作追肥，具体施用方案如表 2 所示。因其它试验需求，2020 年茄子种植的基肥施用量占总氮量的 90%，追肥占 10%；试验设计包含双对照体系，化肥组（CF）采用尿素、过磷酸钙和硫酸钾，其养分输入量与 BF170 保持计量平衡，空白组（CK）全程无外源养分输入，各处理设置单次重复，总计 12 组试验。

表 2　种植试验不同沼肥处理施肥方案

Tab. 2　Fertilizer programme for different BF treatments in planting tests　　kg/hm^2

蔬菜	沼肥处理	折算总氮施用量				
		基肥量	追肥量 1	追肥量 2	追肥量 3	追肥量 4
上海青	BF85	38.25	8.5	12.75	12.75	12.75
	BF170	76.5	17.0	25.5	25.5	25.5
	BF340	153	34	51	51	51
	BF680	306	68	102	102	102
茄子	BF85	29.75	21.25	17	17	
	BF170	59.5	42.5	34	34	
	BF340	119	85	68	68	
	BF680	238	170	136	136	

1.3　土壤重金属含量测定

每轮蔬菜栽培试验前后，基于五点法利用土钻收集各小区 0 ~ 20 cm 表层土壤样品，取样后及时翻耕、平整土壤，确保取样处土壤与周围水平一致。沼液、沼渣及土壤样品均送至中沼生物能源检测公司按照 HJ 491—2019、GB/T 17141—1997、HJ 680—2013 中检测方法测定重金属含量。

1.4　数据分析

1.4.1　改进的地累积指数评价方法

将内梅罗指数引入地累积指数评价法的计算公式中，对地累积指数法优化，结果可更好地反映试验区土壤重金属污染水平[10]，改进后的计算公式为

$$P_{ave} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\frac{C_i}{KB} \tag{1}$$

$$P_{max} = \frac{C_{max}}{KB} \tag{2}$$

$$I_m = \mathrm{lb}\sqrt{\frac{P_{ave}^2 + P_{max}^2}{2}} \tag{3}$$

式中　P_{ave}——重金属含量变化指数均值

C_i——取样点 i 处重金属含量，mg/kg

K——变动转换系数，取 1.5

B——初始土壤重金属含量，mg/kg

P_{max}——重金属含量最大处变化指数

C_{max}——重金属最大含量，mg/kg

I_m——改进的地累积指数，其污染分级标准参考文献[10]

1.4.2　正定矩阵因子分解（PMF）模型

PMF 模型作为一种受约束的多变量受体模型，通过非负最小二乘优化将原始数据矩阵解耦为 3 组子矩阵[11]，其表示形式为

$$X_{ij} = \sum_{k=1}^{p}(G_{ik}F_{kj}) + E_{ij} \tag{4}$$

式中　X_{ij}——元素 j 在样品 i 中的含量，mg/kg

p——污染源数量

G_{ik}——样品 i 在污染源 k 中含量，mg/kg

F_{kj}——污染源 k 中元素 j 的含量，mg/kg

E_{ij}——残差，mg/kg

1.4.3　土壤健康风险评估模型

土壤健康风险评估模型采用美国环境保护局推荐的健康风险模型[12-17]，其计算公式为

$$A_{ig} = \frac{B_i R_g E_f E_d}{B_w A_t} \times 10^{-6} \tag{5}$$

$$A_{id} = \frac{B_i S_a S_L A_f E_f E_d}{B_w A_t} \times 10^{-6} \tag{6}$$

$$A_{ih} = \frac{B_i R_h E_f E_d}{P_f B_w A_t} \tag{7}$$

$$HI = \sum HQ = \sum \frac{A_i}{D_i} \tag{8}$$

$$TCR = \sum CR = \sum A_i S_i \tag{9}$$

式中　A_{ig}、A_{id}、A_{ih}——重金属 i 经口、皮肤、呼吸的日均摄入量，mg/（kg·d）

B_i——重金属 i 含量实测值，mg/kg

R_g、R_h——土壤摄入、吸入速率，mg/d

E_f——暴露频率,d/a

E_d——暴露期,a

B_w——体质量,kg

A_t——平均暴露时间,d

S_a——皮肤暴露面积,m^2

S_L——皮肤粘附系数,mg/cm^2

A_f——皮肤吸收因子

P_f——颗粒物释放因子,m^3/kg

HQ、HI——单一、综合非致癌风险指数

CR、TCR——单一、综合致癌风险指数

D_i——重金属 i 参考剂量,mg/(kg·d)

S_i——重金属 i 斜率因子,kg·d/mg

1.4.4 源导向的人体健康风险评估

基于 PMF 模型获取的各污染源的重金属贡献率,结合土壤健康风险评估结果,可计算得到不同污染源对人体健康风险的贡献率[18],其计算公式为

$$HQ_j = \sum F_{ij} HQ_i \tag{10}$$

$$CR_j = \sum F_{ij} CR_i \tag{11}$$

$$D_{j,HQ} = \frac{HQ_j}{HI} \tag{12}$$

$$D_{j,CR} = \frac{CR_j}{CR} \tag{13}$$

式中 HQ_j、CR_j——污染源 j 非致癌、致癌风险指数

F_{ij}——重金属 i 在污染源 j 的贡献率

HQ_i、CR_i——重金属 i 非致癌、致癌风险指数

$D_{j,HQ}$、$D_{j,CR}$——污染源 j 非致癌、致癌风险贡献率

1.4.5 数据处理

本研究采用 SPSS 26.0 进行数据描述性统计,Origin 2024 进行图件绘制,EPA PMF 5.0 进行重金属 PMF 源解析。

2 结果与分析

2.1 连续施用沼肥下土壤重金属含量时序演变特征

连续施用沼肥下土壤重金属含量变化如图 2 所示,不同小写字母表示各处理间存在显著差异($P < 0.05$),沼肥处理(BF)的 Cu 含量较不施肥处理

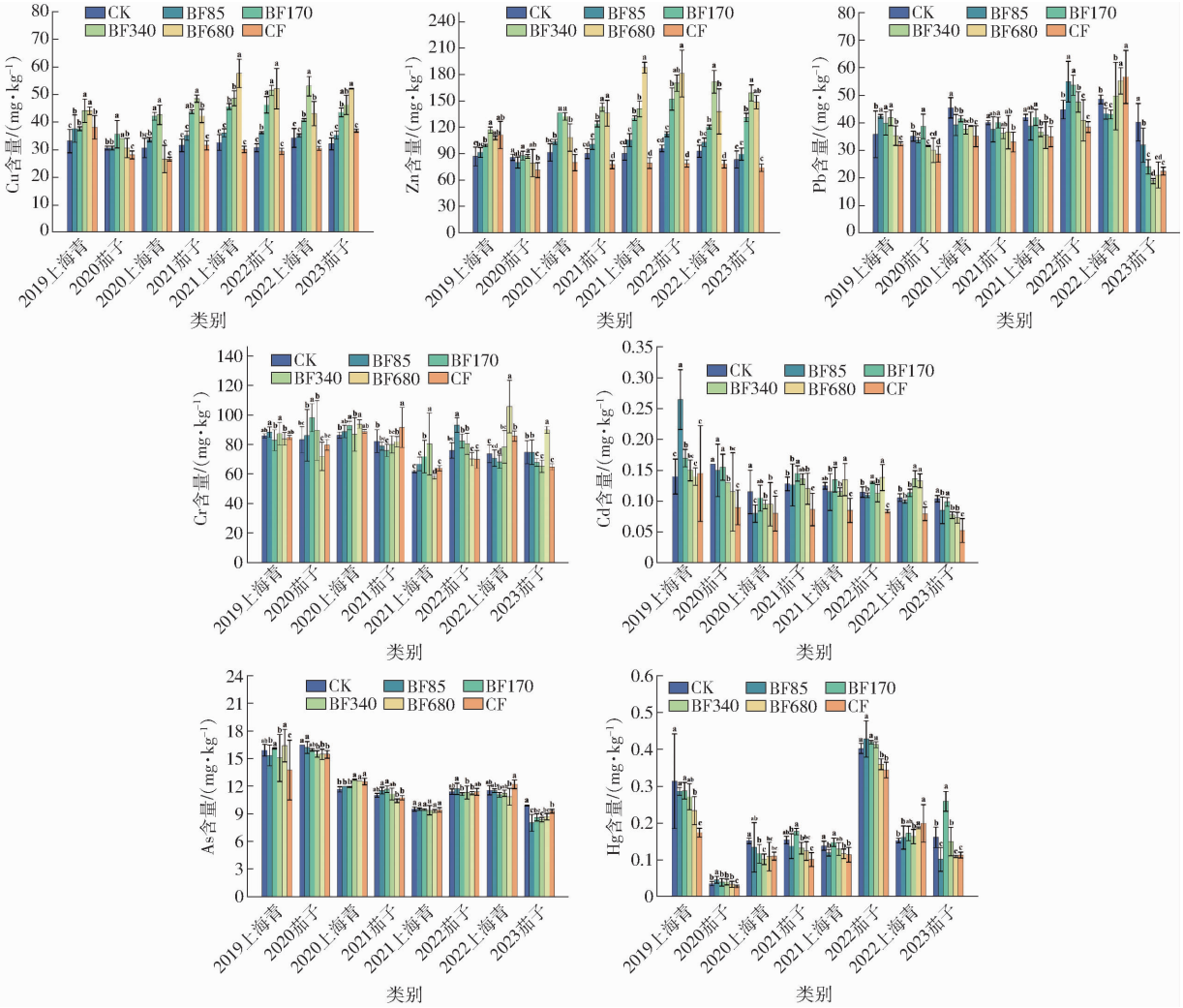

图2 土壤各重金属含量时序变化特征

Fig. 2 Characteristics of temporal variation of soil heavy metal contents

(CK)、化肥处理(CF)高,且随年限其差异性愈加明显,这是因为沼肥中含有少量 Cu,施用后会相应提高含量。富集系数通常表示作物对土壤重金属的摄取能力,可反映重金属元素在土壤与作物植株间的迁移情况[19],如表 3 所示,2019 年上海青—2020 年上海青种植期间的 Cu 富集系数显著大于其它年份,说明该阶段作物生长过程中植株由土壤中吸收的 Cu 元素较多,导致 Cu 含量呈现短暂下降、之后持续增加的趋势,土壤重金属累积存在滞后性。Zn 变化规律与 Cu 类似,BF 土壤 Zn 含量增幅在 15.63% ~95.77%之间,而 CK、CF 土壤 Zn 含量均保持较低水平,且时间序列上没有明显的变化趋势。

表 3　作物对不同重金属元素的富集系数

Tab.3　Crop accumulation coefficients for different heavy metals

类别	Cu	Zn	Pb	Cr	Cd	As	Hg
2019 上海青	$(0.37\pm0.01)^{a}$	$(0.70\pm0.05)^{a}$	0^{b}	$(0.04\pm0.01)^{a}$	$(2.01\pm0.40)^{b}$	0^{b}	$(0.17\pm0.07)^{bc}$
2020 茄子	(新冠肺炎疫情原因,作物数据缺失)						
2020 上海青	$(0.37\pm0.01)^{a}$	$(0.44\pm0.10)^{b}$	0^{b}	0^{c}	$(1.16\pm0.43)^{bc}$	0^{b}	$(0.39\pm0.25)^{a}$
2021 茄子	0.02^{d}	$(0.15\pm0.04)^{c}$	0.01^{b}	0^{c}	$(0.55\pm0.24)^{c}$	0^{b}	$(0.07\pm0.06)^{cd}$
2021 上海青	$(0.24\pm0.01)^{b}$	$(0.53\pm0.16)^{b}$	$(0.02\pm0.01)^{a}$	0.01^{b}	$(4.19\pm2.07)^{a}$	0^{b}	$(0.25\pm0.14)^{b}$
2022 茄子	0.09^{c}	$(0.54\pm0.13)^{b}$	0^{b}	0^{c}	$(0.74\pm0.46)^{c}$	0^{b}	$(0.06\pm0.02)^{cd}$
2022 上海青	0.12^{c}	$(0.24\pm0.08)^{c}$	0^{b}	0^{c}	$(0.22\pm0.07)^{c}$	0.01^{a}	$(0.18\pm0.08)^{bc}$
2023 茄子	$(0.14\pm0.01)^{c}$	$(0.24\pm0.21)^{c}$	0^{b}	0^{c}	$(1.09\pm0.72)^{bc}$	0^{b}	0^{d}

注:同列不同小写字母表示组间存在显著差异($P<0.05$)。

CK 的 Pb 含量相对较高,而 BF 与 CF 均较低,造成此现象的原因是肥料中的硫化物、磷酸盐等可与 Pb 元素产生络合反应[20],影响 Pb 元素的迁移转化。随着沼肥施用量的增加,表现为低量处理 Pb 含量多于过量处理,因为 Pb 在自然状态下不易释放,可长期稳定于沉积物中,常量施肥会增加 Pb 的含量,过量则会降低其含量,这与文献[21]结果相一致。BF85、BF170 的 Cr 含量较初始值无显著变化,说明适量施用沼肥对土壤 Cr 含量增加无明显促进作用,而 BF680 的 Cr 含量较初始值的增幅达 25.05%,可能过量施用沼肥改变了土壤 pH 值、表面电荷、离子强度等性质,影响了土壤对重金属的吸附行为。

BF 的 Cd 含量则与本试验沼肥(表 2)有关,由于沼肥中的 Cd 含量较高,导致 2019 上海青—2020 茄子期间土壤 Cd 含量先增至较高水平;而随着年份增加,Cd 含量逐渐减少,这是因为施用沼肥更利于 Cd 向稳定态转化,减小重金属危害。不同处理的土壤 As 含量变化较小,整体趋于稳定,各处理变化规律基本一致,说明沼肥的施用并未造成土壤 As 元素的明显累积。CK 与 BF 的 Hg 含量变化规律相似,说明沼肥连续定位施用并不是 Hg 含量增加的主要原因。除 2019 上海青、2022 茄子栽培的土壤 Hg 含量出现异常值外,其它季的 Hg 含量均保持在较低水平,且多数低于试验初始值,这可能与实际播种、耕地方式有关[22],导致外部 Hg 进入土壤系统使 Hg 含量出现异常。

此外,各重金属在试验过程中均不同程度出现 CF 处理重金属含量低于 CK 的现象,这是因为一方面本试验所用尿素可促进作物对重金属的吸收,稀释土壤重金属的浓度,所用硫酸钾可减弱土壤对重金属的吸附作用[23];另一方面尿素等碱性化肥的施入可在短期内中和土壤酸性,抑制重金属的活化作用,协同作用使 CF 处理的土壤重金属含量较低。

2.2　试验区土壤重金属改进地累积指数分析

基于改进地累积指数的土壤重金属污染评估结果表明(图 3),试验区土壤各重金属污染水平整体处于无污染至轻微富集区间,具体而言 Cu、Zn 的 I_m 在第 3 季种植后 BF 处理的组间差异明显且与沼肥施用量相关,而 CK 及 CF 处理无污染,这说明沼肥连续施用显著影响了土壤 Cu、Zn 含量变化。对于 Pb 元素,所有处理的 I_m 均低于 0.6,其时间序列变化呈现显著阶段性特征:前 6 季呈线性递增趋势,第 7 季后转为递减模式,污染程度较低,连续施肥 4 a 后 CK 处理的 I_m 大于 BF、CF 处理,这说明施用沼肥并非是造成土壤 Pb 累积的主要原因。通过处理组与对照组 I_m 动态曲线的相似性分析,发现 Cr、Cd、As、Hg 元素的 I_m 时间序列在 BF、CF 处理与 CK 间均呈现高度同步性。其中 Cd(图 3e)和 Hg(图 3g)曲线拟合优度最高($R^2\geqslant0.91$ 和 $R^2\geqslant0.86$),说明其含量波动主要受自然地质过程主导,与施肥管理无显著关联。基于风险阈值评估体系,虽然部分点位在特定时段出现 I_m 高于无污染阈值现象($I_m\geqslant0$),但其持续时间低于风险管控标准。这说明在现行沼肥施用强度下($\leqslant680$ kg/hm^2),土壤系统重金属累积风险仍处于可控范围内,为沼肥资源化利用可持续性提供了科学依据。

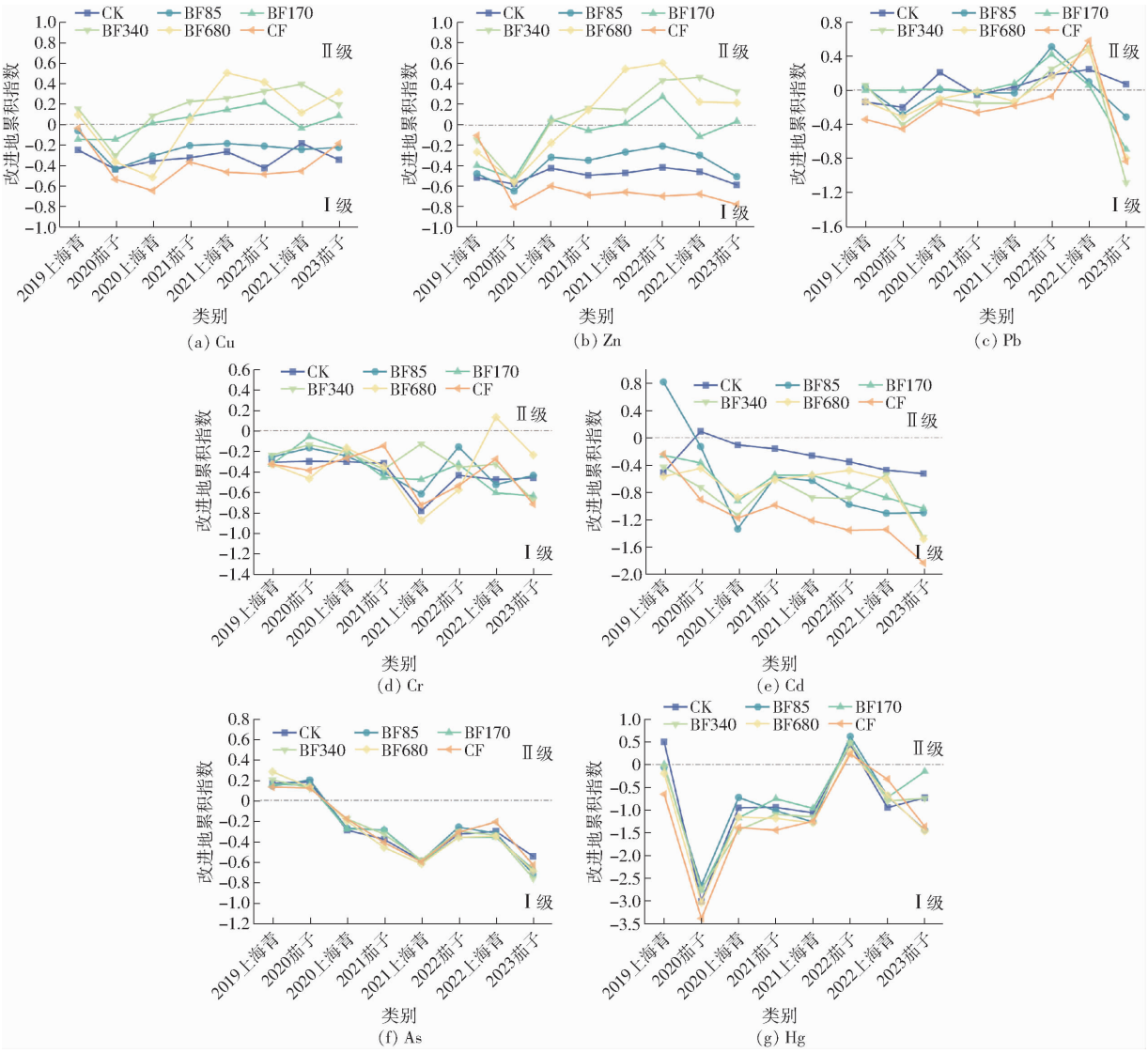

图 3 试验区土壤重金属富集风险评价结果

Fig. 3 Heavy metal accumulation risk assessment results for test area soil

2.3 沼肥施用区域土壤重金属相关性分析

基于 Pearson 相关分析的土壤重金属同源性研究结果如图 4 所示。就 BF85 处理组而言(图 4a),Pb 与 Hg 呈现极强的共线性($r=0.92$),Zn－Pb($r=0.73$)及 As－Cr($r=0.6$)、As－Cd($r=0.69$)等元素也表现显著正相关。这一特征聚类模式表明 Zn－Pb－Hg 可能具有同源性,As－Cr－Cd 则可能源自另一独立源。As－Pb 相关系数仅为 0.23,表明两类元素群存在显著异源性。BF170 处理组中的 Cu－Zn 相关系数达 0.92,这是因为沼肥本身含有高浓度 Cu、Zn,在 170 kg/hm^{2}的沼肥施用量下,导致土壤 Cu 与 Zn 表现较强的同源性。该处理 As－Cr($r=0.72$)、As－Cd($r=0.78$)的相关性仍维持较高水平,但 As－Cu、As－Zn 的负相关关系进一步证实 As－Cr－Cd 的输入路径独立于沼肥施用体系。

BF340 处理的相关性矩阵与 BF170 具有高度一致性,其中 Cu－Zn 相关系数保持在 0.93($P<$

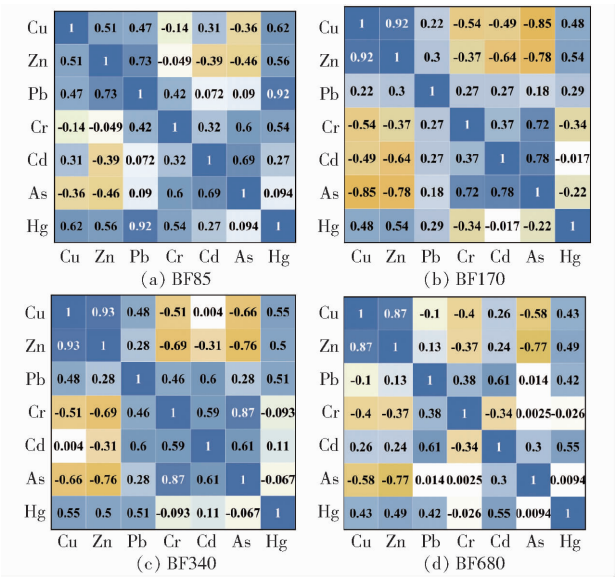

图 4 沼肥施用区域土壤重金属的相关系数

Fig. 4 Correlation coefficient of heavy metal contents in soil of BF application area

0.001)，与土壤监测数据（图 2）显示的同步积累特征相吻合。As－Cr（r = 0.87）、Cr－Cd（r = 0.59）的稳定关联模式表明该 3 种元素可能受控于长期稳定的地质源输入，而非农艺管理措施。在沼肥过量处理组 BF680 中，虽然 Cu－Zn 仍呈现显著正相关（r = 0.87），进一步印证了土壤 Cu、Zn 元素来源于沼肥。但 As－Cr（r = 0.002 5）、Cr－Cd（r = －0.34）的相关性显著弱化甚至呈负相关，这表明 BF 处理区域土壤 As、Cd、Cr 可能受多种污染源综合影响。

2.4　沼肥施用区域土壤重金属来源源解析

PMF 模型共解析出 4 个因子（图 5），图中数字表示各重金属和各污染源的源贡献值，各 BF 处理因子载荷呈现高度一致性，说明各 BF 水平的污染源结构具有同源性。

BF85 的源解析结果中 4 个因子的贡献率分别为因子 1（15.48%）、因子 2（23.12%）、因子 3（41.40%）和因子 4（20.00%），其中 Zn、Cu 在因子 1 上有较高载荷，大量研究表明 Cu、Zn 累积与肥料长期输入相关[24]，因此推测因子 1 为沼肥源。因子 2 的主要负载元素 Pb 的贡献率为 39.01%，Pb 的主要来源之一为农药与塑料薄膜等农业生产品的投入[25]，长期使用会导致土壤 Pb 累积，印证其农业投入源属性。因子 3 为土壤重金属的最大污染来源，其中 Cr 为其主要代表元素，有研究认为 Cr、Cd、As 等元素的相关分布与成土过程相关[26]，但 Cr 作为因子 3 的代表元素，其因子贡献率高于 Cd 与 As，这说明因子 3 并非单一的来自母质源。文献[27]研究发现含 Cr 的灌溉用水可直接污染土壤，是设施农业土壤 Cr 富集的重要原因之一，而武汉市集中用水水源地的土壤 Cr 含量较高，存在轻微的潜在生态风险[28]，因此推测因子 3 为自然母质和灌溉水的混合源。因子 4 贡献成分较为丰富，Cd、As、Hg 元素均有较大贡献，根据图 3 其时间序列与 CK 处理的高度同步性，符合母质源特征。

BF170 沼肥源贡献率为 20.33%，较 BF85 增幅达 31.33%，其中 Cu、Zn 贡献率分别为 37.42%、47.38%，农业投入源贡献率为 17.05%，自然母质与灌溉水混合源的贡献率为 33.45%，以 Cr 贡献率最高，为 35.51%，自然母质源贡献率仅次于混合源，为 29.16%。在沼肥用量持续增加的条件下，BF340 处理沼肥源贡献率进一步增加至 23.13%，农业投入源贡献率为 13.54%，Pb 贡献率高达 66.7%，以 Cr 为代表元素混合源贡献率为

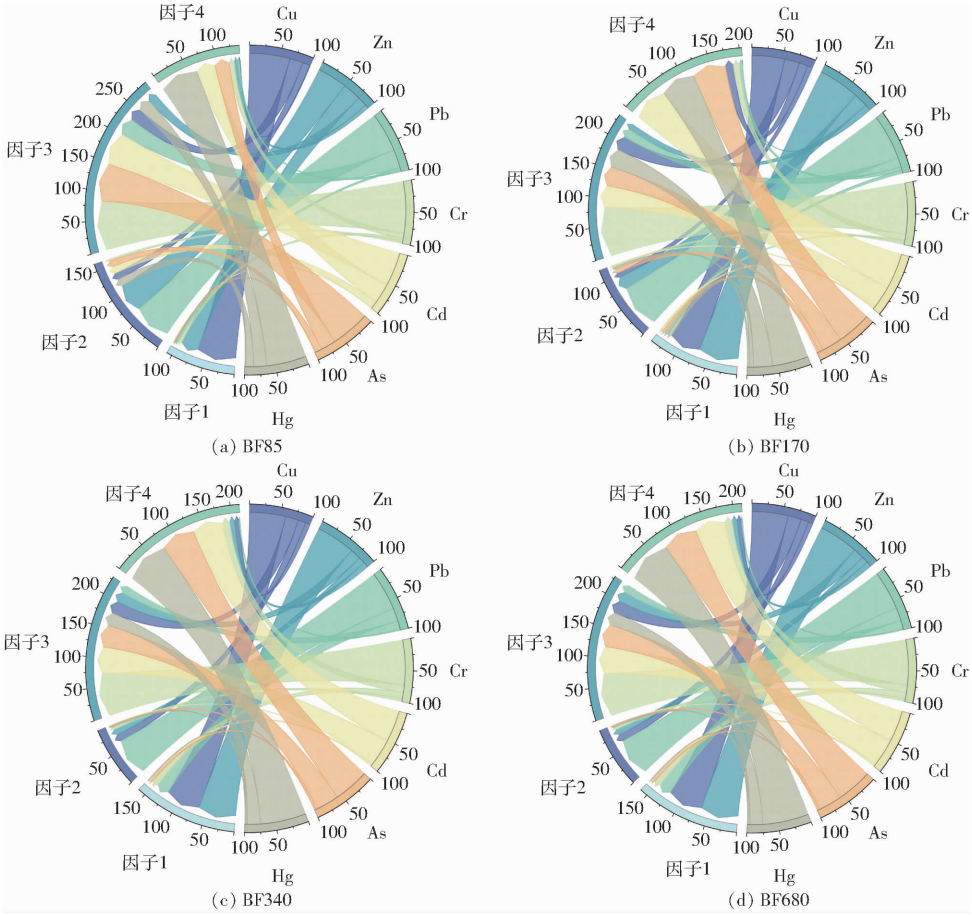

图 5　沼肥施用区域土壤重金属来源解析

Fig. 5　Source analysis of heavy metals in soil within BF area

32.75%,而自然母质源贡献率为 30.58%。BF680 沼肥源贡献率增至 27.56%,为土壤重金属的第二大污染来源,农业投入源贡献率为 17.17%,代表元素 Pb 贡献率为 52.64%,混合源贡献率为 30.66%,以 Cr 贡献率最高,为 39.21%。

根据 PMF 模型解析结果可知,对于沼肥源而言,BF 处理贡献率从小到大依次排序为 BF680(27.56%)、BF340(23.13%)、BF170(20.33%)、BF85(15.48%),沼肥输入量与重金属源贡献率呈显著正相关关系,虽未超出土壤污染风险值,但仍带来了一定的重金属污染风险,建议基于生命周期评价方法优化沼肥生产工艺,重点监控其原料端的 Cu、Zn 阈值控制。

2.5 土壤重金属健康风险评估

基于美国环境保护局(USEPA)健康风险评估模型的非致癌风险分析表明,各重金属经多途径暴露的非致癌风险指数(HI)从大到小依次为 As、Cr、Pb、Cu、Hg、Zn、Cd(表 4),尽管 As 的 HI 极显著高于其他元素($P < 0.01$),但所有元素的 HI 均低于 USEPA 风险阈值(HI 为 1),表明在现有暴露场景下不会对儿童及成人造成显著健康风险。沼肥施用量(85 ~ 680 kg/hm^2)与 HI 呈弱正相关,这主要是因为沼肥中丰富的官能团可与重金属离子反应产生稳定的络合物,降低重金属生物有效性[20],提高土壤生态安全性,因此本试验各 BF 处理的施用量虽成倍增加,但各重金属 HI 的增幅却并不显著。

表 4 沼肥施用区域土壤重金属非致癌风险指数

Tab.4 Non-carcinogenic health risk value of soil heavy metals in area of BF application

组别	元素	非致癌风险指数(儿童)			非致癌风险指数(成人)		
		经口摄入	皮肤摄入	呼吸摄入	经口摄入	皮肤摄入	呼吸摄入
BF85	Cu	8.37×10^{-3}	2.59×10^{-8}	3.27×10^{-7}	7.15×10^{-4}	1.36×10^{-8}	2.15×10^{-7}
	Zn	3.18×10^{-3}	1.48×10^{-8}	1.25×10^{-7}	3.04×10^{-4}	7.72×10^{-9}	8.17×10^{-8}
	Pb	1.11×10^{-1}	6.90×10^{-7}	4.35×10^{-6}	1.06×10^{-2}	3.60×10^{-7}	2.84×10^{-6}
	Cr	2.61×10^{-1}	1.21×10^{-5}	1.08×10^{-3}	2.49×10^{-2}	6.35×10^{-6}	7.03×10^{-4}
	Cd	1.25×10^{-3}	1.16×10^{-7}	4.93×10^{-6}	1.20×10^{-4}	6.10×10^{-8}	3.22×10^{-6}
	As	3.87×10^{-1}	8.78×10^{-7}	3.71×10^{-5}	3.70×10^{-2}	4.59×10^{-7}	2.42×10^{-5}
	Hg	5.80×10^{-3}	7.67×10^{-8}	7.96×10^{-7}	5.53×10^{-4}	4.02×10^{-8}	5.20×10^{-7}
BF170	Cu	1.01×10^{-2}	3.12×10^{-8}	3.93×10^{-7}	8.58×10^{-4}	1.63×10^{-8}	2.58×10^{-7}
	Zn	3.98×10^{-3}	1.85×10^{-8}	1.56×10^{-7}	3.8×10^{-4}	9.65×10^{-9}	1.02×10^{-7}
	Pb	1.11×10^{-1}	6.90×10^{-7}	4.35×10^{-6}	1.06×10^{-2}	3.60×10^{-7}	2.84×10^{-6}
	Cr	2.58×10^{-1}	1.20×10^{-5}	1.07×10^{-3}	2.47×10^{-2}	6.29×10^{-6}	6.96×10^{-4}
	Cd	1.25×10^{-3}	1.16×10^{-7}	4.93×10^{-6}	1.20×10^{-4}	6.10×10^{-8}	3.22×10^{-6}
	As	3.87×10^{-1}	8.78×10^{-7}	3.71×10^{-5}	3.70×10^{-2}	4.59×10^{-7}	2.42×10^{-5}
	Hg	6.44×10^{-3}	8.51×10^{-8}	8.84×10^{-7}	6.14×10^{-4}	4.46×10^{-8}	5.77×10^{-7}
BF340	Cu	1.11×10^{-2}	3.43×10^{-8}	4.33×10^{-7}	9.44×10^{-4}	1.80×10^{-8}	2.84×10^{-7}
	Zn	4.52×10^{-3}	2.10×10^{-8}	1.78×10^{-7}	4.32×10^{-4}	1.10×10^{-8}	1.16×10^{-7}
	Pb	1.03×10^{-1}	6.42×10^{-7}	4.05×10^{-6}	9.86×10^{-3}	3.35×10^{-7}	2.64×10^{-6}
	Cr	2.61×10^{-1}	1.21×10^{-5}	1.08×10^{-3}	2.49×10^{-2}	6.35×10^{-6}	7.03×10^{-4}
	Cd	1.15×10^{-3}	1.07×10^{-7}	4.54×10^{-6}	1.10×10^{-4}	5.61×10^{-8}	2.96×10^{-6}
	As	3.83×10^{-1}	8.69×10^{-7}	3.67×10^{-5}	3.67×10^{-2}	4.54×10^{-7}	2.40×10^{-5}
	Hg	5.80×10^{-3}	7.67×10^{-8}	7.96×10^{-7}	5.53×10^{-4}	4.02×10^{-8}	5.20×10^{-7}
BF680	Cu	1.05×10^{-2}	3.24×10^{-8}	4.10×10^{-7}	8.94×10^{-4}	1.70×10^{-8}	2.69×10^{-7}
	Zn	4.39×10^{-3}	2.04×10^{-8}	1.73×10^{-7}	4.20×10^{-4}	1.07×10^{-8}	1.13×10^{-7}
	Pb	1.01×10^{-1}	6.28×10^{-7}	3.96×10^{-6}	9.65×10^{-3}	3.28×10^{-7}	2.58×10^{-6}
	Cr	2.64×10^{-1}	1.22×10^{-5}	1.09×10^{-3}	2.51×10^{-2}	6.41×10^{-6}	7.10×10^{-4}
	Cd	1.15×10^{-3}	1.07×10^{-7}	4.54×10^{-6}	1.10×10^{-4}	5.61×10^{-8}	2.96×10^{-6}
	As	3.83×10^{-1}	8.69×10^{-7}	3.67×10^{-5}	3.67×10^{-2}	4.54×10^{-7}	2.40×10^{-5}
	Hg	5.16×10^{-3}	6.83×10^{-8}	7.08×10^{-7}	4.92×10^{-4}	3.58×10^{-8}	4.63×10^{-7}

根据美国环境保护局的健康风险模型计算得到的儿童与成人的致癌风险指数(CR)显示(图 6),各元素对儿童和成人的 CR 最大的均为 As,说明 As 是最主要的致癌因子,儿童与成人 Pb、Cr 和 Cd 的 CR 均值均小于 10^{-5} 数量级,无致癌风险,As 的 CR 均值大于 10^{-5},其中儿童 As 的 CR 均值大于 10^{-4},存在人体可耐受的致癌风险。儿童平均致癌风险总指数(TCR)为 1.91×10^{-4},成人的 TCR 为 2.2×10^{-5},

儿童的 TCR 远大于成人，说明儿童对重金属敏感程度较高，相较于成人更易受到重金属的有害影响，这与文献[6]结论一致。

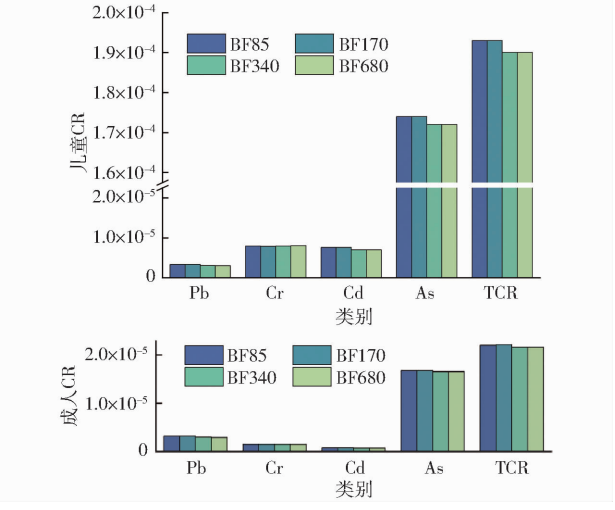

图 6　沼肥施用区域土壤重金属致癌风险评估

Fig. 6　Carcinogenic risk assessment of soil heavy metals in BF application areas

2.6　基于源导向的土壤重金属优先控制因子分析

因重金属对儿童群体的健康风险显著高于成人，本研究选取儿童健康风险为范例，结合 PMF 解析结果，构建重金属-污染源-健康风险的响应模型（图 7）。对各处理而言，因子 3（混合源）和因子 4（自然母质源）对致癌与非致癌风险的贡献率均居于主导地位，合计贡献率均超过 80%，相较而言因子 1（沼肥源）对 HI（3.76% ~ 8.87%）和 CR（1.83% ~6.47%）的贡献率最低，这主要归因于其标志性元素 Cu、Zn 相较 As、Cr 等元素具有更低的毒性参数（参考剂量与斜率因子）。随沼肥施用量从 85 kg/hm^2 增至 680 kg/hm^2，沼肥源对 HI、CR 的贡献率呈显著增长趋势（$P < 0.05$），虽未成为首要风险源，但其累积效应提示需建立动态监测机制，可通过优化施肥方案、调整种植结构等农艺措施降低潜在风险。

研究进一步发现因子 2（农业投入源）的贡献率随沼肥施用量增加呈负相关，这与其载体元素 Pb 的

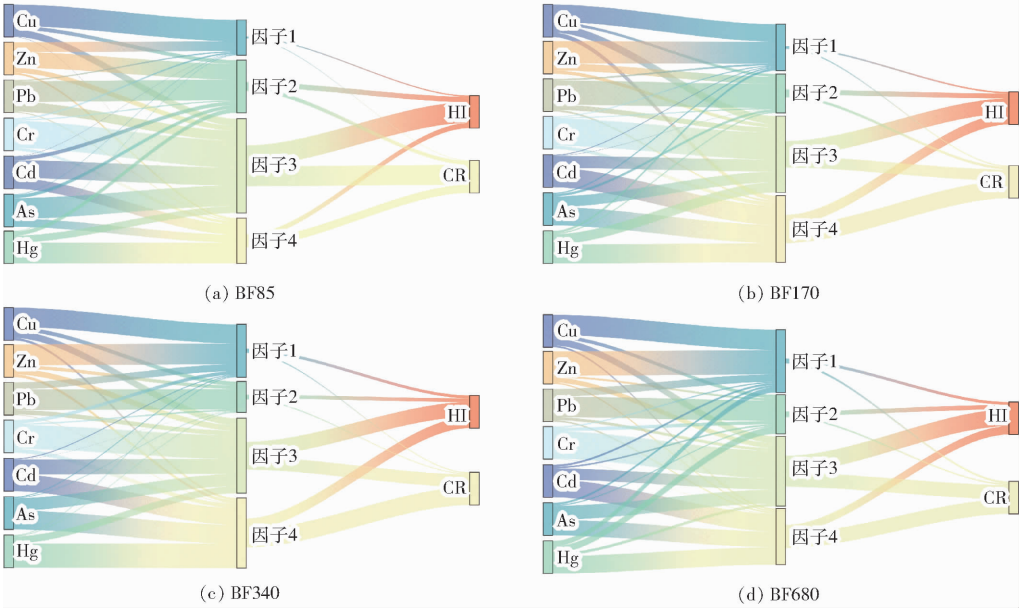

图 7　源导向的土壤重金属风险贡献率

Fig. 7　Source-oriented contribution rate of soil heavy metal risk

高毒性特征和输入量密切相关，当沼肥用量较少时，农业投入源对于人体健康风险的贡献率较高，而随着沼肥用量的增加，沼肥重金属含量远大于农药、塑料薄膜等农业投入品，导致农业投入源对 HI、CR 的贡献率持续降低，这与前述试验区的因子 2 贡献率变化规律一致（图 5）。设施温室由于处于封闭或半封闭的状态，较高频度的土地利用易造成重金属的积累。从试验区土壤重金属含量特征来看，尽管土壤 Cu、Zn 含量最高，但其健康风险指数仍处于可接受范围（HI 小于 1），而 As 在自然母质源中的生物毒性系数显著高于其他元素，这解释了尽管其含量较低，却成为致癌风险主要驱动因子的关键机制。

综上，本研究揭示了沼肥长期施用下土壤重金属的归趋特征和风险演变规律，建议在设施农业管理中建立基于重金属毒理特征的差异化管控策略：重点监控灌溉水 As、Cr 浓度，优化自然源高背景区的作物布局，同时完善沼肥重金属准入标准（特别是 Cu、Zn 限量值），可为农业废弃物资源化利用与土壤健康协同调控提供参考依据。

3　结论

（1）连续 4 a 施用猪粪沼肥显著提升了土壤 Cu、

Zn 含量(BF680 的 Zn 含量增幅达 95.77%),但所有处理的重金属含量均未超过《土壤污染风险管控标准》(GB15618—2018)筛选值。改进地累积指数 I_m 表明,Cu、Zn 呈现无污染-轻微富集($I_m \leq 1$),而 Cr、As、Cd 等元素富集效应与沼肥施用并无直接关联。

(2)相关性分析-PMF 源解析揭示,研究区土壤重金属污染来源可划分为 4 类典型污染源。其中,母质-灌溉水混合源对土壤重金属的贡献率居首,其元素分布特征与区域地质背景及灌溉水重金属含量呈现显著相关性。以 Cu、Zn 为特征污染物的沼肥源贡献率虽然仍低于混合源,但考虑到 Cu、Zn 在土壤-作物系统的迁移转化特性,在沼肥施用过程中需特别关注 Cu、Zn 在土壤环境中的累积风险及其潜在生态效应。

(3)混合源与自然母质源为人体健康风险的主要贡献源(合计贡献率大于 80%),标志性元素 As、Cr 的生物毒性系数显著高于其他元素。沼肥源对健康风险的贡献率随施用量增加呈上升趋势(由 3.76% 增至 8.87%),但其风险值仍处可接受范围(HI 小于 1)。儿童群体对 As 的致癌风险(TCR 为 1.91×10^{-4})接近可耐受阈值,高于成人(TCR 为 2.2×10^{-5}),表明儿童为敏感暴露群体。

参 考 文 献

[1] AI P, JIN K D, ALENGEBABY A, et al. Effect of application of different biogas fertilizer on eggplant production: analysis of fertilizer value and risk assessment[J]. Environmental Technology & Innovation, 2020, 19: 101019.

[2] JIAO W, CHEN W, CHANG A C, et al. Environmental risks of trace elements associated with long-term phosphate fertilizers applications: a review[J]. Environmental Pollution, 2012, 168: 44 - 53.

[3] 赵庆令, 李清彩, 安茂国, 等. 基于 PMF - PCA/APCS 与 PERI 的菏泽油用牡丹种植区表层土壤重金属潜在来源识别及生态风险评估[J]. 环境科学, 2023, 44(9): 5253 - 5263.
ZHAO Qingling, LI Qingcai, AN Maoguo, et al. Potential source identification and ecological risk assessment of heavy metals in surface soil of heze oil peony planting area based on PMF - PCA/APCS and PERI[J]. Environmental Science, 2023, 44(9): 5253 - 5263. (in Chinese)

[4] 刘德新, 孟凡磊, 段海静, 等. 基于 APCS - MLR 和 PMF 的污灌与工业复合区农田土壤重金属来源解析[J]. 环境科学, 2024, 45(8): 4812 - 4824.
LIU Dexin, MENG Fanlei, DUAN Haijing, et al. Analysis of heavy metal sources in farmland soil of sewage irrigation and industrial complex area based on APCS - MLR and PMF[J]. Environmental Science, 2024, 45(8): 4812 - 4824. (in Chinese)

[5] 赖涓涓, 杨德钰, 刘亮, 等. 银川市浅层表土重金属污染特征及源解析[J]. 中国环境科学, 2024, 44(8): 4496 - 4506.
LAI Juanjuan, YANG Deyu, LIU Liang, et al. Characteristics and source identification of heavy metal pollution in shallow topsoil in Yinchuan City[J]. China Environmental Science, 2024, 44(8): 4496 - 4506. (in Chinese)

[6] 马杰,王胜蓝,秦启荧,等.基于源导向的锰矿尾矿库周边土壤重金属风险评估[J].环境科学,2024,45(12):7166 - 7176.
MA Jie, WANG Shenglan, QIN Qiying, et al. Risk assessment of heavy metals in soil surrounding manganese tailings pond based on source-oriented analysis[J]. Environmental Science, 2024, 45(12): 7166 - 7176. (in Chinese)

[7] 王思齐, 张忠兰, 史淑一, 等. 沼渣肥替代化肥对苹果产量和品质的影响[J]. 中国沼气, 2018, 36(4): 74 - 79.
WANG Siqi, ZHANG Zhonglan, SHI Shuyi, et al. Effect of biogas residue fertilizer on the yield and fruit quanlity of apple trees[J]. China Biogas, 2018, 36(4): 74 - 79. (in Chinese)

[8] 金柯达, 彭宇志, 杨高中, 等. 蔬菜栽培中连续施用猪粪沼肥的肥效与重金属风险研究[J]. 农业机械学报, 2023, 54(8): 359 - 370.
JIN Keda, PENG Yuzhi, YANG Gaozhong, et al. Fertilizer efficiency and heavy metal risk analysis of continuous application of biogas fertilizer in vegetable cultivation[J]. Transactions of the Chinese Society for Agricultural Machinery, 2023, 54(8): 359 - 370. (in Chinese)

[9] CHEN Y, JIANG Z Q, OU J M, et al. Nitrogen substitution practice improves soil quality of red soil (Ultisols) in South China by affecting soil properties and microbial community composition[J]. Soil & Tillage Research, 2024, 240: 106089.

[10] 刘子赫, 孟瑞红, 代辉祥, 等. 基于改进地累积指数法的沉积物重金属污染评价[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(9): 2157 - 2164.
LIU Zihe, MENG Ruihong, DAI Huixiang, et al. Evalution of heavy metals pollution in surface sediments using an improved geo-accumulation index method[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2019, 38(9): 2157 - 2164. (in Chinese)

[11] 马杰, 沈智杰, 张萍萍, 等. 基于 APCS - MLR 和 PMF 模型的煤矸山周边耕地土壤重金属污染特征及源解析[J]. 环境科学, 2023, 44(4): 2192 - 2203.
MA Jie, SHEN Zhijie, ZHANG Pingping, et al. Pollution characteristics and source apportionment of heavy metals in farmland soils around the gangue heap of coal mine based on APCS - MLR and PMF receptor model[J]. Environmental Science, 2023, 44(4): 2192 - 2203. (in Chinese)

[12] USEPA. Soil screening guidance: technical background document[R]. Research Triangle Park: USEPA, 1996.

[13] CHEN R H, CHEN H Y, SONG L T, et al. Characterization and source apportionment of heavy metals in the sediments of

Lake Tai (China) and its surrounding soils [J]. Science of the Total Environment, 2019, 694: 133819.
[14] YANG S Y, ZHAO J, CHANG S X, et al. Status assessment and probabilistic health risk modeling of metals accumulation in agriculture soils across China: a synthesis[J]. Environment International, 2019, 128: 165 - 174.
[15] HUANG Y N, DANG F, LI M, et al. Environmental and human health risks from metal exposures nearby a Pb - Zn - Ag mine, China[J]. Science of the Total Environment, 2020, 698: 134326.
[16] HUANG J L, WU Y Y, SUN J X, et al. Health risk assessment of heavy metal(loid)s in park soils of the largest megacity in China by using Monte Carlo simulation coupled with positive matrix factorization model[J]. Journal of Hazardous Materials, 2021, 415: 125629.
[17] 王锐, 邓海, 贾中民, 等. 汞矿区周边土壤重金属空间分布特征、污染与生态风险评价[J]. 环境科学, 2021, 42(6): 3018 - 3027.
WANG Rui, DENG Hai, JIA Zhongmin, et al. Spatial distribution characteristics, pollution, and ecological risk assessment of soil heavy metals around mercury mining areas[J]. Environmental Science, 2021, 42(6): 3018 - 3027. (in Chinese)
[18] MA J, CHU L J, SUN J, et al. Health risk assessment of trace metal(loid)s in agricultural soils based on Monte Carlo simulation coupled with positive matrix factorization model in Chongqing, southwest China[J]. Journal of Mountain Science, 2024, 21(1): 100 - 112.
[19] PENG Y S, YANG R D, JIN T, et al. Risk assessment for potentially toxic metal(loid)s in potatoes in the indigenous zinc smelting area of northwestern Guizhou Province, China[J]. Food and Chemical Toxicology, 2018, 120: 328 - 339.
[20] ZIRKLER D, PETERS A, KAUPENJOHANN M. Elemental composition of biogas residues: variability and alteration during anaerobic digestion[J]. Biomass & Bioenergy, 2014, 67: 89 - 98.
[21] 李轶, 巩俊璐, 张辉, 等. 不同施肥处理对污灌区土壤中 Pb, Cu 和 Zn 的影响[J]. 沈阳农业大学学报, 2017, 48(6): 731 - 736.
LI Yi, GONG Junlu, ZHANG Hui, et al. Effects of different fertilization treatments on Pb, Cu and Zn forms in soil from sewage irrigation area[J]. Journal of Shenyang Agricultural University, 2017, 48(6): 731 - 736. (in Chinese)
[22] 韦美溜, 周浪, 黄燕玲, 等. 贵州省水田土壤-水稻 Hg 含量特征与安全种植区划[J]. 环境科学, 2024, 45(5): 3005 - 3015.
WEI Meiliu, ZHOU Lang, HUANG Yanling, et al. Hg content characteristics and safe planting zoning of paddy soil and rice in Guizhou Province[J]. Environmental Science, 2024, 45(5): 3005 - 3015. (in Chinese)
[23] YANG Y J, XIONG J, CHEN R J, et al. Excessive nitrate enhances cadmium (Cd) uptake by up-regulating the expression of OsIRT1 in rice (*Oryza sativa*)[J]. Environmental and Experimental Botany, 2016, 122:141 - 149.
[24] 张丽芳, 夏文建, 张文学, 等. 长期施用猪粪和化肥对稻田土壤 Cu、Zn 和 Cd 含量及有效性的影响[J]. 农业环境科学学报, 2022, 41(9): 1944 - 1954.
ZHANG Lifang, XIA Wenjian, ZHANG Wenxue, et al. Effects of long-term application of pig manure and chemical fertilizers on soil Cu, Zn, and Cd contents and their availability in paddy soil[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2022, 41(9): 1944 - 1954. (in Chinese)
[25] 孟敏, 杨林生, 韦炳干, 等. 我国设施农田土壤重金属污染评价与空间分布特征[J]. 生态与农村环境学报, 2018, 34(11): 1019 - 1026.
MENG Min, YANG Linsheng, WEI Binggan, et al. Contamination assessment and spatial distribution of heavy metals in greenhouse soils in China[J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2018, 34(11): 1019 - 1026. (in Chinese)
[26] CHAI L, WANG Y, WANG X, et al. Pollution characteristics, spatial distributions, and source apportionment of heavy metals in cultivated soil in Lanzhou, China[J]. Ecological Indicators, 2021, 125: 107507.
[27] 陈玉鹏, 梁东丽, 刘中华, 等. 大棚蔬菜土壤重金属污染及其控制的研究进展与展望[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(1): 9 - 17.
CHEN Yupeng, LIANG Dongli, LIU Zhonghua, et al. Analysis of present situation and control of heavy metal pollution in vegetable greenhouse soils[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2018, 37(1): 9 - 17. (in Chinese)
[28] 朱静, 侯耀宗, 邹书成, 等. 武汉集中式饮用水源地土壤重金属的时空分布特征及生态风险评价[J]. 环境科学, 2021, 42(7): 3215 - 3222.
ZHU Jing, HOU Yaozong, ZOU Shucheng, et al. Spatio-temporal distribution characteristic and risk assessment of heavy metals in soils around centralized drinking water sources in Wuhan[J]. Environmental Science, 2021, 42(7): 3215 - 3222. (in Chinese)