

DOI: 10.5846/stxb201304080636

李大明, 柳开楼, 黄庆海, 余喜初, 叶会财, 胡惠文, 徐小林. 长期施用猪粪红壤稻田土壤 Cu、Zn 累积规律. 生态学报, 2015, 35(3): 709-716.

Li D M, Liu K L, Huang Q H, Yu X C, Ye H C, Hu H W, Xu X L. Accumulation dynamic of soil Cu and Zn under long-term application of pig manure in red paddy field. Acta Ecologica Sinica, 2015, 35(3): 709-716.

长期施用猪粪红壤稻田土壤 Cu、Zn 累积规律

李大明, 柳开楼, 黄庆海*, 余喜初, 叶会财, 胡惠文, 徐小林

江西省红壤研究所, 国家红壤改良工程技术研究中心, 南昌 331717

摘要:为揭示长期施用猪粪红壤稻田土壤 Cu、Zn 累积规律, 以设立于 1981 年的红壤稻田有机肥定位试验为载体, 选取 PM1(早稻施猪粪和紫云英)、PM2(早稻施紫云英+晚稻施猪粪)、GMS(早稻施紫云英+晚稻秸秆还田)和 NPK(早稻施化肥)等处理为对象, 分析了不同试验年限土壤全量和有效态 Cu、Zn 含量。结果表明:长期施用猪粪显著提高了土壤 Cu、Zn 含量;连续施用猪粪 30 a 后, 土壤全量 Cu、Zn 含量分别增加了 7.69—9.52 mg/kg 和 22.42—35.46 mg/kg;生物有效性显著增加, 有效态 Cu、Zn 含量占全量 Cu、Zn 的比例分别由 15%和 5%增加到 51%和 27%。猪粪年度内的施用时间对土壤 Cu 的累积没有显著影响, 早稻施用猪粪加剧了土壤 Zn 的累积。土壤铜、锌累积分为两个差异显著的阶段, 1981—2002 年为缓慢增长期, 2002—2010 年为快速增长期, 这可能与 2002 年后施用的猪粪中 Cu、Zn 含量增高有关。以研究的结果推算, 红壤稻田鲜猪粪施用量在 $9.5 \text{ t hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 以下, 50 a 内不会造成土壤 Cu、Zn 含量超标。

关键词: Cu; Zn; 累积规律; 猪粪; 长期定位试验; 红壤稻田

Accumulation dynamic of soil Cu and Zn under long-term application of pig manure in red paddy field

LI Daming, LIU Kailou, HUANG Qinghai*, YU Xichu, YE Huicai, HU Huiwen, XU Xiaolin

National Engineering and Technology Research Center for Red Soil Improvement, Jiangxi Institute of Red Soil, Nanchang 331717, China

Abstract: As an organic fertilizer, pig manure has long history of application in paddy fields and it can increase soil organic carbon content, improve soil nutrient and increase crop yield. With the development of rural economics and the sharply increased demand for pig meat, intensive pig farms have become the main style of raising pigs and the resulting large amounts of pig manure have become a potential risk to the rural environment. The reuse of the pig manure was the inevitable choice to alleviate this environment risk. However, the plentiful application of feedstuffs with additives high in Cu and Zn bring a threat in the use of pig manure in agriculture. So, it is important to discover the accumulation dynamics and chemical characteristics of Cu, Zn and evaluate the carrying capacity of pig manure in paddy fields. The present study analyzed the total and available soil Cu and Zn content after different application times of pig manure in an organic fertilizer field experiment carried out from 1981. The treatments included combined green manure (22500 kg/hm^2) and pig manure (22500 kg/hm^2) in early rice (PM1), combined green manure (22500 kg/hm^2) in early rice and pig manure (22500 kg/hm^2) in later rice (PM2), combined green manure (22500 kg/hm^2) in early rice and rice straw returning (4500 kg/hm^2) in later rice (GMS), nitrogen- phosphorus- potassium fertilization (NPK). The results showed that long-term application of pig manure increased soil Cu and Zn content significantly, total Cu and Zn increased 7.69—9.52 mg/kg and 22.42—35.46 mg/kg after 30 year continuous application of pig manure, respectively. The proportion of available Cu and Zn content

基金项目:公益性行业(农业)科研专项(201203030, 201003016); 国家自然科学基金(41301269); 国家重点基础研究发展计划(973 计划)子课题(2011CB100501-S06)

收稿日期:2013-04-08; **网络出版日期:**2014-04-03

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: hqh0791@vip.sina.com

increased from 15% and 5% to 51% and 25% from 1981 to 2010. The pig manure application in early rice or later rice had no significant effect on the accumulation of soil Cu content, but it affected the accumulation of soil Zn significantly, the increase rate was much higher when the pig manures were applied in early rice than that of later rice. The available content of soil Cu, Zn increased more than 10 mg/kg from 2002 to 2010, which far higher than that accumulation in the former 22 years (1981 to 2002). This maybe the result of the higher content of Cu and Zn in the pig manure applied in this period and/or the saturation of soil stable state Cu and Zn. Based on the result of this study, the proper application amount of pig manure in red-soil paddy-fields is less than $9.5 \text{ t hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$, which could maintain the soil Cu, Zn content below the national standard of second grade standard ($\text{pH}<6.5$) after 50 year continuous application of pig manure.

Key Words: Cu; Zn; accumulation dynamic; pig manure; long-term field experiment; red paddy field

猪粪作为有机肥还田具有悠久的历史,众多研究表明:施用含有丰富有机质和氮、磷养分的猪粪可以显著提高土壤肥力^[1],促进作物的生长,提高作物产量^[2-3]。但是随着农村经济发展和猪肉需求的不断提高,规模化养殖已成为当前农村养猪的主体,而规模化养殖过程中产生的大量猪粪(尿)给地区生态环境带来的巨大的环境风险,实现猪粪(尿)的资源化利用则成为减轻这一环境风险的必然选择,而猪粪还田仍是最经济有效的资源化利用方法之一。然而,规模化养猪过程中大量使用含有 Cu、Zn 的饲料及添加剂使得猪粪中 Cu、Zn 含量普遍较高,这给猪粪还田利用带来了巨大的潜在风险^[4]。研究者对北京、江苏 7 省市的畜禽粪便样品分析结果表明,猪粪中的 Cu、Zn 含量普遍较高,最高浓度分别达到了 1591 和 8710 mg/kg,至少有 20%—30% 样品超出我国污泥农用标准(GB-4284—1984)^[5]。而有关猪粪农用的研究也显示,长期施用规模养殖场猪粪的农田(菜地),表层土壤中 Cu、Zn 总量升高,生物可利用态比例增加,这给农产品安全和生态环境带来了巨大的威胁^[6-9]。因此,揭示长期施用猪粪农田土壤 Cu、Zn 累积规律及形态变化特征,估算不同土壤类型农田猪粪的承载力对于制定合理的猪粪还田模式及维护区域生态环境安全具有重要意义^[10]。然而,现有大部分研究都集中在施用猪粪后土壤及作物重金属含量变化上^[6-9],仅有的关于长期施用猪粪农田重金属累积规律也集中在旱地^[11],尚缺乏长期施用猪粪红壤稻田土壤 Cu、Zn 含量演变规律研究。因此,本研究拟以设立于 1981 年的红壤稻田有机肥定位试验(包含猪粪、绿肥和水稻秸秆等有机肥种类)为对象,重点分析不同猪粪施用年限土壤 Cu、Zn 含量,旨在揭示长期施用猪粪红壤稻田土壤 Cu、Zn 累积规律,为制定合理的红壤稻田猪粪利用模式、维护地区生态环境提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 试验地概况

试验地设在江西省红壤研究所($116^{\circ}20'24'' \text{ E}$, $28^{\circ}15'30'' \text{ N}$),属中亚热带季风气候,年均降雨量 1537 mm,年蒸发量 1100—1200 mm;年均气温 $17.7\text{—}18.5^{\circ}\text{C}$,最冷月(1 月)平均气温为 4.6°C ,最热月(7 月)平均气温为 $28.0\text{—}29.8^{\circ}\text{C}$ 。海拔高度 25—30 m,为典型的低丘红壤地区,土壤类型为第四纪红黏土发育的潴育型水稻土,1981 年试验开始前该试验地为常规种植稻田,种植水稻年限在 20a 以上。试验开始时耕层土壤 pH 值 6.9 (试验 6a 后,所有处理耕层土壤 pH 值均降到 6.5 以下),有机碳 16.22 g/kg,全氮 0.95 g/kg,全磷 1.02 g/kg,全钾 15.41 g/kg,碱解氮 143.70 mg/kg,速效磷 10.30 mg/kg,速效钾 125.10 mg/kg。

1.2 试验设计

以 1981 年开始的红壤有机肥定位试验为基础,选取其中的 4 个典型处理:(1)早稻施用猪粪(PM1):早稻施紫云英 22500 kg/hm^2 和猪粪 22500 kg/hm^2 ;(2)晚稻施用猪粪(PM2):早稻施紫云英 22500 kg/hm^2 晚稻施猪粪 22500 kg/hm^2 ;(3)施用绿肥和稻草(GMS):早稻施紫云英 22500 kg/hm^2 晚稻施用稻草 4500 kg/hm^2 ;(4)化肥(NPK):早稻施 N 90 kg/hm^2 、 P_2O_5 45 kg/hm^2 、 K_2O 75 kg/hm^2 (NPK),有机肥施用量均为鲜重。试验小区面积 60 m^2 ,顺序排列,3 次重复,小区间用宽 5 cm,深 50 cm 的水泥田埂隔开。另外,1981—1988 年,

PM1-GMS 处理每季(NPK 处理为晚稻季)补施化肥 N 45 kg/hm²、P₂O₅ 30 kg/hm²;1989—1995 年,PM1-GMS 每季(NPK 处理为晚稻季)在上述化肥的基础上,每季补施 K₂O 37.5 kg/hm²;1996 年早稻开始,PM1-GMS 每季(NPK 处理为晚稻季)补施的 N、P₂O₅、K₂O 施用量分别增至 69,30,67.5 kg/hm²。有机肥、磷肥和钾肥作基肥,氮肥分两次施(其中基肥 50%,追肥 50%)。2010 年施用的有机肥样品风干后 Cu、Zn 含量及养分状况见表 1。

表 1 不同有机肥 Cu、Zn 含量及养分指标

Table 1 The content of Cu, Zn and nutrient of the organic manure

有机肥种类 Organic manure	鲜样含水率 Water content/ %	Cu/ (mg/kg)	Zn/ (mg/kg)	有机碳 Organic carbon/ (g/kg)	全氮 Total N/ (g/kg)	全磷 Total P/ (g/kg)	全钾 Total K/ (g/kg)
猪粪 Pig manure	70.6	879.5	1271.4	340	6.0	4.5	5.0
稻草 Rice straw	70.0	17.3	65.4	421	3.3	1.2	7.6
紫云英 Milk vetch	85.5	27.6	47.4	467	4.0	1.1	3.5

有机肥样品为 2010 年施用的有机肥, Cu、Zn 及养分含量均为风干后含量

1.3 测定指标和参数计算方法

利用有机肥定位试验保存的原始土样(1981 年)和 1985 年(试验 5a)、1996 年(试验 16a)、2002 年(试验 22a)、2010 年(试验 30a)采集的耕层土壤样品进行土壤 Cu、Zn 含量分析,用于表示连续施用猪粪 n 年后土壤 Cu、Zn 含量,土壤样品采集于每年晚稻收获后。分析方法如下:

(1)土壤全量 Cu、Zn 含量采用王水回流消煮,电感耦合等离子发射光谱(ICP)测定(参照农业部行业标准:NY-T 1613—2008)^[12]。

(2)土壤有效 Cu、Zn 含量采用 0.1 mol/L 盐酸溶液浸提,浸提液采用电感耦合等离子发射光谱(ICP)测定(参照农业部行业标准:NY-T 1613—2008)^[12]。

(3)有机肥养分和有机碳含量测定均采用常规方法,具体参见《土壤农化分析》^[13]。

(4)土壤 Cu、Zn 累积速率和稻田猪粪承载力的计算方法:

$$HMI = \frac{HM_x - HM_y}{x - y} \quad (1)$$

$$HMT = \frac{HM_s - HM_x}{HMI} \quad (2)$$

$$HME = \frac{HMI_m - HMI_o}{AM} \quad (3)$$

$$AM_{s50} = \frac{HM_{max} - HM_z}{50 \times HME} \quad (4)$$

式中, HM_x 表示在第 x 年的土壤 Cu、Zn 含量 (mg/kg), HM_y 表示在第 y 年的土壤 Cu、Zn 含量 (mg/kg), HMI 表示土壤 Cu、Zn 累积速率 (mg kg⁻¹ a⁻¹); HMT 表示土壤 Cu、Zn 超标时间 (a), HM_s 表示土壤 Cu、Zn 含量国标超标值 (mg/kg), HME 表示单位用量猪粪对稻田重金属累积的效应 (mg kg⁻¹ a⁻¹), AM 为猪粪实际用量 (t hm⁻² a⁻¹), HMI_m 表示施用猪粪下土壤 Cu、Zn 累积速率 (mg kg⁻¹ a⁻¹), HMI_o 表示不施用猪粪下土壤 Cu、Zn 累积速率 (mg kg⁻¹ a⁻¹); HM_{max} 表示允许的土壤最大 Cu、Zn 含量 (即国标二级标准允许的最大含量, mg/kg), HM_z 表示当前土壤的 Cu、Zn 含量 (mg/kg), 50 表示施用时间为 50a, AM_{s50} 表示 Cu、Zn 含量 50a 不超标时土壤承载的最大鲜猪粪量 (t hm⁻² a⁻¹)。

1.4 数据分析与统计

所有数据均采用 Excel 2003 进行处理,统计分析采用 SPSS 11.0 软件进行,差异显著性检验采用最小显著差法 (Fisher's LSD) 于 $P < 0.05$ 水平上进行,图表采用 Origin 8.0 作图软件完成。

2 结果分析

2.1 长期施用猪粪红壤稻田土壤全量铜和有效铜含量变化规律

施用猪粪对红壤性水稻土的全量铜和有效铜含量均有显著影响(图1,图2)。试验前22a连续施用猪粪尚未对土壤全量铜造成显著影响(图1)。而在施用猪粪30a后,土壤全铜含量显著增加,分别为29.64 mg/kg和31.47 mg/kg,显著高于不施猪粪处理($P<0.05$)。不施猪粪处理(GMS和NPK)土壤全量铜的含量没有显著变化($P>0.05$)。猪粪年度内的施用时间对土壤全量铜的累积没有显著影响。因此,长期持续施用猪粪显著增加了红壤稻田表层土壤全量铜含量,且主要归因于最近8年的猪粪施用,而不施猪粪稻田土壤全铜含量基本保持稳定。

在试验30a后,施用猪粪处理土壤有效铜的含量显著增加,PM1和PM2处理分别增加了13.55 mg/kg和10.94 mg/kg(图2),而不施猪粪处理土壤有效铜含量虽有增加的趋势,但差异不显著。连续施用猪粪22a后,土壤有效铜的含量显著大于不施猪粪处理,并且这种差异在试验30a后进一步扩大,施用猪粪的PM1和PM2处理土壤有效铜含量分别比单施化肥处理高11.03 mg/kg和8.42 mg/kg。猪粪年度内的施用时间(早稻施用或晚稻施用)对土壤有效铜的累积也没有显著影响。随着试验年限的增加,各个处理土壤有效铜含量占土壤全铜含量的比例均呈现逐步增加的趋势,其中连续施用猪粪30a后PM1和PM2处理土壤有效铜含量占全铜含量比例分别为57%和45%,显著高于对应的不施猪粪处理(表2)。这表明长期施用猪粪可以显著增加土壤有效铜的含量,且增加速度在连续施用22a后显著加快;长期施用猪粪土壤有效铜含量占全铜含量比例明显上升。

2.2 长期施用猪粪红壤稻田土壤全锌和有效锌含量变化规律

施用猪粪显著影响红壤稻田土壤全锌和有效锌的含量(图3,图4)。随着试验年限的增加,施用猪粪处理稻田土壤全锌含量显著增加,而不施猪粪处理稻田土壤全锌含量没有显著变化;在连续施用猪粪30a后,PM1和PM2处理土壤全锌含量分别为66.78 mg/kg和55.54 mg/kg,显著高于对应的不施猪粪处理(图3)。与土壤全铜含量变化趋势不同的是,土壤全锌累积还受到猪粪施用时间的影响,早稻施猪粪处理土壤全锌累积量更大,在施用16a后和30a后差异达到显著性;而施用化肥也对土壤全量锌累积有明显影响,在连续施肥30a后,施化肥处理的土壤全量锌含量显著高于不施猪粪有机肥处理(GMS)。结果表明:长期施用猪粪显著增加土壤全锌含量,不施猪粪处理土壤全锌没有显著变化;早稻施用猪粪土壤全锌的累积量要高于对应的晚

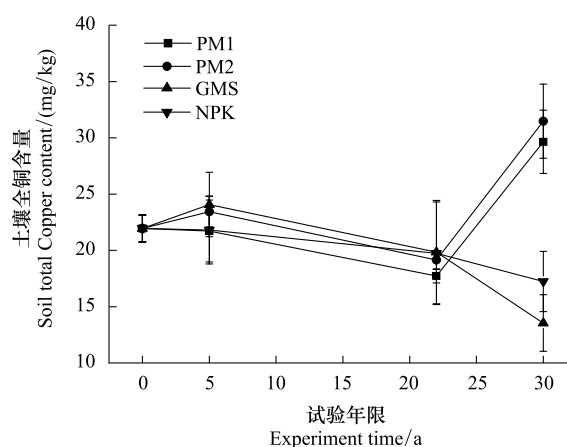


图1 不同猪粪施用年限土壤全铜含量变化规律

Fig.1 The dynamic of soil total copper content in different experiment time

PM1: 早稻施猪粪 22500 kg/hm² 和紫云英 22500 kg/hm²; PM2: 晚稻施猪粪 22500 kg/hm² + 早稻施紫云英 22500 kg/hm²; GMS: 早稻施紫云英 22500 kg/hm² + 晚稻施用稻草 4500 kg/hm²; NPK: 早稻施 N 90 kg/hm²、P₂O₅ 45 kg/hm²、K₂O 75 kg/hm²

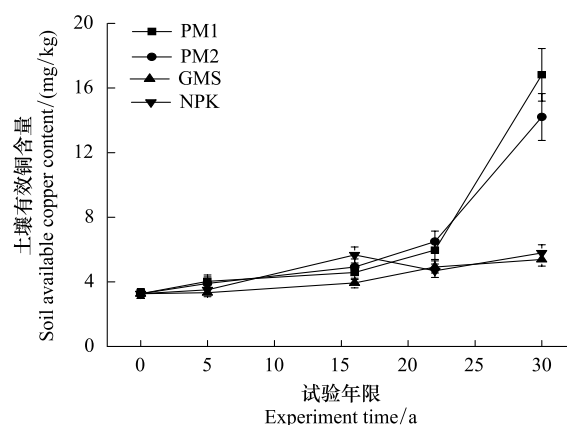


图2 不同猪粪施用年限土壤有效铜含量变化规律

Fig.2 The dynamic of soil available copper content in different experiment time

稻施用猪粪。

表 2 不同试验年限土壤有效态 Cu、Zn 分别占全量 Cu、Zn 比例

Table 2 The proportion of available Cu and Zn in total Cu and Zn at different experiment time, respectively

重金属种类 Heavy metal species	试验年限 Experiment time /a	土壤有效态 Cu、Zn 占全量 Cu、Zn 比例 The proportion of available Cu, Zn in total Cu, Zn/%			
		PM1	PM2	GMS	NPK
Cu	0	14.9	14.9	14.9	14.9
	5	18.6	16.7	13.8	16.1
	22	33.7	33.9	24.8	23.7
	30	56.7	45.1	39.8	33.6
Zn	0	5.3	5.3	5.3	5.3
	5	5.6	5.0	3.7	3.5
	22	9.8	7.4	5.0	4.8
	30	27.9	27.4	7.0	5.9

PM1: 早稻施猪粪 22500 kg/hm²和紫云英 22500 kg/hm²; PM2: 晚稻施猪粪 22500 kg/hm²+早稻施紫云英 22500 kg/hm²; GSM: 早稻施紫云英 22500 kg/hm²+晚稻施用稻草 4500 kg/hm²; NPK: 早稻施 N 90 kg/hm²、P₂O₅ 45 kg/hm²、K₂O 75 kg/hm²

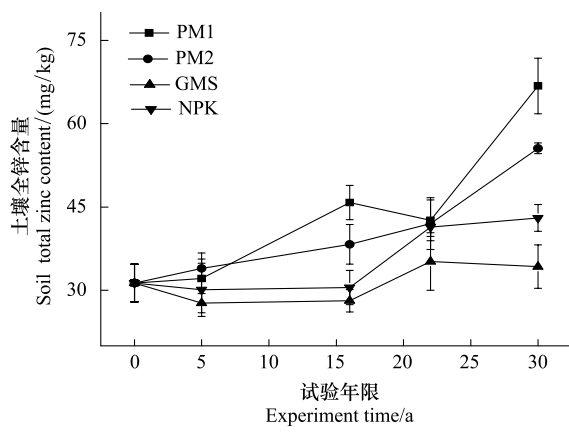


图 3 不同猪粪施用年限土壤全锌含量变化规律

Fig.3 The dynamic of soil total Zinc in different experiment time

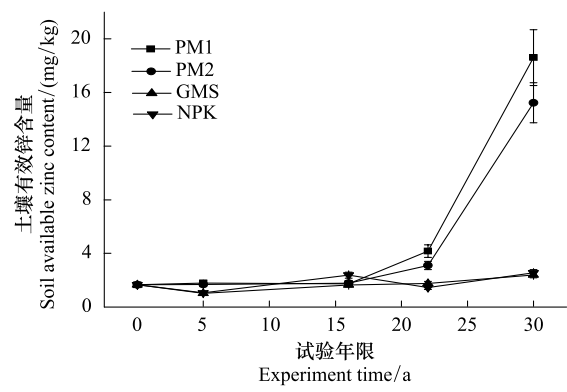


图 4 不同猪粪施用年限土壤有效锌含量变化规律

Fig.4 The dynamic of soil available Zinc in different experiment time

与土壤全量锌累积规律基本一致,施用猪粪处理的土壤有效锌含量呈现逐步增加的趋势,而不施猪粪的有机肥处理和化肥处理土壤有效锌含量基本保持稳定(图 4)。在连续施用猪粪 22a 后,土壤有效锌的含量呈现快速增长的趋势,8a 间 PM1 和 PM2 处理土壤有效锌含量分别增加:14.43 mg/kg 和 12.14 mg/kg,显著高于此前 22a 增加的 2.52 mg/kg 和 1.44 mg/kg(图 4)。试验 30a 后,施用猪粪的 PM1 和 PM2 处理土壤有效锌的含量分别比单施化肥处理高 16.06 mg/kg 和 12.69 mg/kg($P<0.01$)。早稻施用猪粪比晚稻施用猪粪土壤有效锌的累积量没有显著差异($P<0.05$)。本研究中,随着试验年限的增加,各个处理土壤有效锌含量占土壤全锌含量的比例也呈现出逐步增加的趋势,其中以施用猪粪处理更为明显,连续施用猪粪 30a 后 PM1 和 PM2 处理土壤有效锌含量占全锌含量比例分别为 28%和 27%,显著高于对应的不施猪粪处理(表 2)。这一结果表明:长期施用猪粪显著增加土壤有效锌含量,尤其是在连续施用 22a 后(2002 年以后)有效锌的累积量显著增加;长期施用猪粪红壤稻田土壤有效锌含量占全锌含量比例显著提高。

2.3 长期施用猪粪红壤稻田土壤铜、锌累积速率

从土壤 Cu、Zn 的累积速率来看,在试验 30a 间,存在两个差异明显的阶段,从 1981—2002 年施用猪粪处理土壤 Cu、Zn 含量变化幅度较小,而 2002—2010 年间,土壤 Cu、Zn 含量呈现快速增长的现象,Cu、Zn 的累积速率分别为 1.49—1.54 mg kg⁻¹ a⁻¹和 1.69—3.02 mg kg⁻¹ a⁻¹,显著高于此前的累积速率(表 3)。本研究中,不

施猪粪处理土壤铜未出现明显的累积现象;而单施化肥处理(NPK)的土壤锌在2002—2010年也出现较为明显的累积现象,累积速率为 $1.58 \text{ mg kg}^{-1} \text{ a}^{-1}$,这可能与化肥中含有一定量的锌有关,对应的施绿肥和秸秆处理土壤锌未出现明显的累积现象(表3)。

本研究中两个每年施用猪粪 22500 kg/hm^2 处理的红壤稻田土壤Cu、Zn含量均未超过我国土壤环境质量标准中的二级标准(GB15618—1995),尚未形成明显的重金属污染。但是土壤Cu、Zn在连续施用猪粪22a后(即2002年以后)快速增长的现象也暗示,长期持续施用猪粪可能会造成土壤Cu、Zn的快速累积。

2.4 长期施用猪粪红壤稻田Cu、Zn超标风险分析

以本定位试验中2002—2010年土壤重金属的年均累积速率为依据,按照现有猪粪施用量(即 $22.5 \text{ t hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$),常规施肥(以本试验NPK处理为参考值)稻田的Cu和Zn含量分别在21.6年和66.5年后达到国家土壤质量二级标准,即达到污染水平(表4)。从本试验的结果可以看出,长期施用猪粪土壤Cu超标的风险较大,而锌超标的风险相对较小。以本试验土壤Cu的累积速率为依据,要维持土壤Cu含量在50a内不超标,红壤稻田最多施用猪粪 $9.73 \text{ t hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 。

表3 不同试验阶段土壤铜、锌累积速率

Table 3 The accumulation speed of soil Copper and Zinc in different experiment period

试验阶段 Experiment period	年份 Year	土壤铜、锌累积速率 Accumulation speed of soil Copper and Zinc ($\text{mg kg}^{-1} \text{ a}^{-1}$)			
		PM1	PM2	GMS	NPK
全铜 Total Copper	1981—2002	—	—	—	—
	2002—2010	1.490	1.541	—	—
	1981—2010	0.256	0.317	—	—
全锌 Total Zinc	1981—2002	0.512	0.485	0.176	—
	2002—2010	3.024	1.693	—	1.583
	1981—2010	1.182	0.807	0.098	0.390

“—”表示累积速率为负值

表4 长期施用猪粪红壤稻田Cu、Zn超标时间及猪粪承载力

Table 4 The time to exceed the standard of soil Cu and Zn and pig manure bearing capacity of red paddy field

重金属种类 Heavy metal species	土壤Cu、Zn累积速率 Accumulation speed of soil Copper and Zinc/ ($\text{mg kg}^{-1} \text{ a}^{-1}$)	土壤Cu、Zn超标时间 The time to exceed the standard of soil Copper and Zinc(a)	红壤稻田鲜猪粪承载力 The pig manure bearing capacity of red paddy field/ ($\text{t hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$)
Cu	1.52	21.6	9.73
Zn	2.36	66.5	29.94

土壤重金属累积速率和超标时间以本试验2002—2010年的土壤Cu、Zn变化规律为依据计算,土壤Cu、Zn超标值为国标二级标准($\text{pH} < 6.5$),红壤稻田承载的最大鲜猪粪用量为连续施用50a土壤Cu、Zn含量不超标的估测值

3 讨论

3.1 长期施用猪粪对土壤Cu、Zn含量的影响

猪粪作为重要的有机肥资源在培肥土壤及提高作物产量等方面的显著作用已成为共识^[14-16]。然而,长期施用猪粪带来的潜在的环境风险也逐渐引起研究者的关注,而对土壤重金属累积的影响则是研究者关注的焦点之一^[8-10]。本研究中,连续施用猪粪30a后,土壤全量Cu、Zn含量增加,土壤有效态Cu、Zn含量占全量Cu、Zn含量的比例显著上升,生物有效性明显增强,这与此前报道一致^[6-8,17]。不过,施用猪粪30a后,土壤Cu、Zn的含量均低于我国土壤环境质量标准中的二级标准(GB 15618—1995),尚未形成污染;但值得注意的是,2002—2010年间土壤Cu、Zn含量快速增加的现象暗示存在较大的Cu、Zn污染的风险。以本定位试验中2002—2010年土壤重金属的年均累积速率为依据,再连续施用猪粪12a(猪粪施用量为 $22.5 \text{ t hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$)土壤

铜含量将达到我国土壤环境质量标准中的二级标准(GB 15618—1995);而 Zn 则在 44a 后达到污染水平,污染风险相对较小。因此,控制土壤 Cu 的累积是制定红壤稻田猪粪施用标准重点考虑的因素。红壤稻田施用鲜猪粪 $9.5 \text{ t hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 以下,在 50a 内不会造成土壤 Cu 污染;并可以提供 N、P 养分和水稻生长所需的 Cu、Zn 等土壤微量元素,改善土壤微量元素供应特征,有助于实现红壤稻田的养分平衡^[17],实现猪粪的资源化利用。

研究还发现,早稻施猪粪处理土壤全锌累积量要大于对应的晚稻施用猪粪处理,这可能与晚稻生长季水稻的生物量大、产量高,随水稻收获而离开稻田的锌相对较多有关。此外,早稻生长季,气温相对偏低,水稻吸收有效态锌的量相较于晚稻偏少,导致有效锌转换为稳定态锌的比例加大,这可能也是导致早稻施用猪粪土壤全锌的累积量偏大的原因之一。

3.2 长期施用猪粪红壤稻田土壤 Cu、Zn 累积速率变化特征

无论是土壤全量 Cu、Zn 含量还是有效态 Cu、Zn 含量的累积都存在两个差异显著的阶段,即缓慢增长期(1981—2002 年)和快速增长期(2002—2010 年)。造成这一现象的原因可能有以下 3 点:1)施用的猪粪中 Cu、Zn 的含量发生明显变化,使得土壤 Cu、Zn 施入量增加,相应的土壤累积量增加^[18]。该定位试验在 2002 年以前施用的猪粪主要来自于当地农户散养猪的猪粪,这时期猪粪中 Cu、Zn 的含量相对较少;而 2002 年以后,散养猪数量急剧减少,施加的猪粪转变为集约化养殖场的猪粪,而这些猪粪的 Cu、Zn 含量明显偏高,这可能是导致 2002 年以后土壤 Cu、Zn 含量快速上涨的最主要原因;2)长期施用猪粪后土壤稳定态 Cu、Zn 的含量趋于稳定,新输入的有效态 Cu、Zn 缺少形成结合态 Cu、Zn 的电子供体,容易在土壤中以有效态的形式长期存在^[19];3)猪粪腐解过程对土壤中强结合态 Cu、Zn 的活化效应。研究发现,施用有机肥或作物秸秆能将大量可溶性有机质带入土壤之中,而 DOM 能抑制土壤对重金属的吸附,进而提高重金属的生物有效性^[6,20-22]。因此,红壤稻田施用集约化养殖场猪粪时,用量应适当降低。

4 结论

长期施用猪粪显著提高红壤稻田土壤 Cu、Zn 含量,大幅度提升土壤有效态 Cu、Zn 的比例。土壤铜、锌累积速率在近 8a(2002—2010)快速增加,污染风险加大。长期施用猪粪红壤稻田土壤铜污染的风险大于锌污染。猪粪年度内的施用时间对土壤 Cu 的累积没有显著影响;但早稻施用猪粪加剧了土壤 Zn 的累积。红壤稻田鲜猪粪施用量在 $9.5 \text{ t hm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 以下,50a 内不会造成土壤 Cu、Zn 含量超标。

致谢:感谢江西省畜牧兽医局黄峰岩先生对本研究的帮助,感谢南京农业大学刘满强副教授对文章修改给予的帮助。

参考文献(References):

- [1] Qureshi A, Lo K V, Lian P H, Mavinic D S. Real-time treatment of dairy manure: Implications of oxidation reduction potential regimes to nutrient management strategies. *Bioresource Technology*, 2008, 99(5): 1169-1176.
- [2] Bi L D, Zhang B, Li Z Z, Liu Y R, Ye C, Yu X C, Lai T, Zhang J G, Yin J M. Long-term effects of organic amendments on the rice yields for double rice cropping systems in subtropical China. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 2009, 129(4): 534-541.
- [3] Huang Q R, Hu F, Huang S, Li H X, Yuan Y L, Pan G X, Zhang W J. Effect of long-term fertilization on organic carbon and nitrogen in a subtropical paddy soil. *Pedosphere*, 2009, 19(6): 727-734.
- [4] Cang L, Wang Y J, Zhou D M, Dong Y H. Heavy metals pollution in poultry and livestock feeds and manures under intensive farming in Jiangsu Province, China. *Journal of Environmental Sciences*, 2004, 16(3): 371-374.
- [5] 张树清, 张夫道, 刘秀梅, 王玉军, 邹绍文, 何绪生. 规模化养殖畜禽粪主要有毒成分测定分析研究. *植物营养与肥料学报*, 2005, 11(6): 822-829.
- [6] 王开峰, 彭娜, 王凯荣, 谢小立. 长期施用有机肥对稻田土壤重金属含量及其有效性的影响. *水土保持学报*, 2008, 22(1): 105-108.
- [7] 李本银, 黄绍敏, 张玉亭, 周东美, 吴晓晨, 沈阿林, 徐建明, 李忠佩. 长期施用有机肥对土壤和糙米铜、锌、铁、锰和镉积累的影响. *植物营养与肥料学报*, 2010, 16(1): 129-135.

- [8] Hao X Z, Zhou D M, Chen H M, Dong Y H. Leaching of copper and zinc in a garden soil receiving poultry and livestock manures from intensive farming. *Pedosphere*, 2008, 18(1): 69-76.
- [9] Hölzel C S, Müller C, Harms K S, Mikolajewski S, Schäfer S, Schwaiger K, Bauer J. Heavy metals in liquid pig manure in light of bacterial antimicrobial resistance. *Environmental Research*, 2012, 113: 21-27.
- [10] 曾希柏, 徐建明, 黄巧云, 唐世荣, 李永涛, 李芳柏, 周东美, 武志杰. 中国农田重金属问题的若干思考. *土壤学报*, 2013, 50(1): 186-194.
- [11] 刘赫, 李双异, 汪景宽. 长期施用有机肥对棕壤中主要重金属积累的影响. *生态环境学报*, 2009, 18(6): 2177-2182.
- [12] 中华人民共和国农业部. NY-T 1613-2008, 土壤质量-重金属测定王水回流消解原子吸收法. 北京: 中国标准出版社.
- [13] 鲍士旦. 土壤农化分析. 北京: 中国农业出版社, 2000.
- [14] Li J T, Zhang B. Paddy soil stability and mechanical properties as affected by long-term application of chemical fertilizer and animal manure in subtropical China. *Pedosphere*, 2007, 17(5): 568-579.
- [15] 徐明岗, 李冬初, 李菊梅, 秦道珠, 八木一行, 宝川靖和. 化肥有机肥配施对水稻养分吸收和产量的影响. *中国农业科学*, 2008, 41(10): 3133-3139.
- [16] Liu M Q, Hu F, Chen X Y, Huang Q R, Jiao J G, Zhang B, Li H X. Organic amendments with reduced chemical fertilizer promote soil microbial development and nutrient availability in a subtropical paddy field: The influence of quantity, type and application time of organic amendments. *Applied Soil Ecology*, 2009, 42(2): 166-175.
- [17] 潘霞, 陈励科, 卜元卿, 章海波, 吴龙华, 滕应, 骆永明. 畜禽有机肥对典型蔬果地土壤剖面重金属与抗生素分布的影响. *生态与农村环境学报*, 2012, 28(5): 518-525.
- [18] 李本银, 汪鹏, 吴晓晨, 李忠佩, 周东美. 长期肥料试验对土壤和水稻微量元素及重金属含量的影响. *土壤学报*, 2009, 46(2): 281-288.
- [19] 徐明岗, 刘平, 宋正国, 张青. 施肥对污染土壤中重金属行为影响的研究进展. *农业环境科学学报*, 2006, 25(增刊): 328-333.
- [20] 高明, 车福才, 魏朝富, 谢德体, 杨剑虹. 长期施用有机肥对紫色水稻土铁锰铜锌形态的影响. *植物营养与肥料学报*, 2000, 6(1): 11-17.
- [21] 陈同斌, 陈志军. 水溶性有机质对土壤中镉吸附行为的影响. *应用生态学报*, 2002, 13(2): 183-186.
- [22] 曾希柏, 杨佳波, 李莲芳, 白玲玉. 溶解性有机物对土壤中铜生物有效性的影响. *农业环境科学学报*, 2009, 28(5): 883-889.