

模拟降雨淋滤下堆肥污泥中重金属释放特征、 迁移转化与生态风险

何 芸^{1,2,3}, 杨海全^{1,2,3,*}, 曾广能¹, 杨 成¹,
蒋鲁佳^{2,3}, 胡森华^{2,3}, 杜丽芬^{2,3}

(1. 贵州民族大学 生态环境工程学院, 贵阳 550025; 2. 中国科学院地球化学研究所 环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550081;
3. 红枫湖水库生态系统贵州省野外科学观测研究站, 贵阳 551499)

摘 要: 土地利用是污泥资源化和减量化处置的主要方式, 但降雨和灌溉等淋滤过程会导致堆肥污泥中的重金属释放到环境中, 造成土壤及地下水污染。因此, 在堆肥污泥土地利用前对不同降雨强度下的重金属析出情况进行分析, 有助于制定合适的施用量和风险调控措施。结果表明: (1) 重金属淋滤出集中出现在淋滤初期, 随降雨历时的增加趋于稳定, 其中短时强降雨淋滤出液中重金属 Ni、Cu、Zn、As 和 Pb 浓度均低于小雨; (2) 重金属的垂向迁移主要受降雨强度、降雨历时和淋溶量的影响。长期小雨淋滤下重金属主要迁移至 20~25 cm 深度, 且非稳定态的 Zn、Cd 和 Cu 更易被淋滤出, 而短时强降雨淋滤下重金属的垂向迁移不明显; (3) 生态风险指数 CF 、 I_{geo} 和 $PERI$ 评估表明, 堆肥污泥中 Ni、Pb 和 As 的生态风险较低, 但长期小雨淋滤下 Cu 的生态风险最高, 短时强降雨淋滤下 Cd 和 Cu 的生态风险最高。因此, 堆肥污泥土地利用需严格控制施用量, 降低 Cd 和 Cu 的环境生态风险, 并关注降雨淋滤产生的重金属污染。

关键词: 堆肥污泥; 降雨淋滤; 重金属; 迁移转化; 风险评估

中图分类号: P595 **文献标识码:** A **文章编号:** 1672-9250(2025)03-0440-09

随着城市化进程的加速和工业活动的扩张, 我国市政污泥的产量呈现显著增长趋势。2022年, 我国处理的污水量达到 895.0 亿吨, 同期产生的市政污泥量为 4 757.9 万吨, 占一般工业固体废物产生量的 0.12%, 并将以每年 10%~13% 的速度持续增长^[1-2]。我国市政污泥的处理处置技术已逐步多元化, 主要包括好氧发酵+土地利用、厌氧消化+土地利用、干化焚烧+灰渣填埋/建材利用、深度脱水+应急填埋等多种方式^[3-4]。这些技术的应用旨在实现污泥的减量化、稳定化、无害化和资源化。因占地面积小、成本低、具有环境效益等优势, 市政污泥经好氧处理后作为土地改良剂, 是一种资源化利用的有效途径^[5-6]。堆肥处理不仅能够稳定有机质、灭活病原菌, 还能通过生物吸附和生物矿化有效钝化重金属^[7-9]。然而, 堆肥污泥土地利用受到多种因素的影响, 包括污泥的理化特性、处理技术、环境标准、土壤和环境条件以及政策和监管等。环境条件如降雨强度的变化对污泥的稳定性和土壤功能性质有着决定性

的影响^[9]。降雨强度增加将促进土壤颗粒及其吸附的重金属被淋滤出来^[10]。此外, 降雨强度的变化还会影响土壤中重金属的迁移能力, 降雨强度越小, 土壤胶体携带重金属离子迁移的能力越强^[11]。因此, 降雨强度的不同可能导致堆肥污泥中固定的重金属形态发生变化, 使得部分重金属因淋滤作用在土壤层中发生垂向迁移, 进而造成地下水污染^[12], 同时堆肥污泥中的重金属可能被植物吸收利用, 并最终通过食物链对居民的健康构成严重威胁^[13]。

市政污泥中常见的重金属以 Zn、Cu、Cd、Pb、Ni 和 As 为主, 其中我国污泥中 Zn 和 Cu 含量最高^[14-16], 这些重金属在环境中的迁移和释放对人类健康和生态系统构成潜在威胁。研究表明, 即使是低浓度的 Ni、As、Cd 和 Pb 也能对人体健康造成严重影响^[17]。黄月娥^[18]采用地质累积指数和内梅罗污染指数对污泥农用后土壤重金属进行分析, 结果表明 Cd 的污染程度最高, Pb 次之。并且有研究发现污泥中绝大部分重金属仍滞留于表层土

收稿日期: 2024-04-30; 改回日期: 2024-08-16

基金项目: 国家重点研发计划(2023YFF0806003); 贵州省科技计划项目(黔科合重大专项字[2024]009, 黔科合平台 YWZ[2023]006)。

第一作者简介: 何 芸(1997—), 女, 硕士研究生, 主要从事水环境修复和废弃物资源化利用研究。email: heyun@mail.gyig.ac.cn。

*通信作者: 杨海全(1987—), 男, 高级工程师, 主要从事生源要素生物地球化学研究。email: yanghaiquan@vip.skleg.cn。

© Editorial office of Earth and Environment. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license.

中,少部分发生迁移并滞留于土柱的中部和上部^[12],这与Walte等^[19]、傅华等^[20]、邹通等^[21]研究结果一致。李楠和迟杰^[22]通过对矿石的淋滤发现Zn和Cd的水溶态所占比例大,可在短时间内快速释放,环境污染风险较大。周赛军等^[23]研究发现As等重金属在降雨淋滤下被迅速淋出,析出浓度一般在第1~3天达到最大值后逐步减小,并在第10~12天趋于稳定。因此,对污泥中重金属的监测和管理,特别是在降雨等环境因素变化的情况下,对于预防重金属污染至关重要。

鉴于已有研究不能反映降雨强度、降雨历时和淋溶量对堆肥污泥中重金属总量释放和形态变化的影响。本研究旨在通过动态淋滤实验模拟不同降雨情景,分析:(1)不同降雨条件下堆肥污泥中重金属的释放特征;(2)堆肥污泥中重金属的垂向迁移规律;(3)不同降雨条件下堆肥污泥中重金属的生态风险。这将为制定安全高效的土地利用策略提供理论基础和科学依据,确保污泥资源化利用的环境安全性。

1 材料与方法

1.1 降雨淋滤模拟实验设计

由于往年贵阳地区的降雨主要以硫酸型酸雨为主,且贵阳市2023年降水pH范围为6.83~7.30,故根据HJ/T 299—2007《硫酸硝酸法》配置降雨,采用硫酸、硝酸、CaCl₂、(NH₄)₂SO₄、去离子水混合(其中,SO₄²⁻、NO₃⁻摩尔浓度比为3:1),形成pH为6.8的模拟降水。淋滤量以2023年贵阳市降水量1 054.4 mm,通过淋滤柱横截面积换算得到实际年淋滤体积量为5.3 L。模拟实验装置如图1所示,设置3个平行装置,在淋滤柱中从下往上依次装填滤膜、2 cm厚石英砂(便于淋滤液排出)、

30 cm厚堆肥污泥(表层20 cm不压实,以达到模拟耕作层目的)、2 cm厚的石英砂(进液缓冲)。

1.2 样品采集与制备

市政污泥来源于贵阳新庄一期污水处理厂,经好氧堆肥后得到堆肥污泥。堆肥污泥中重金属Ni、Cu、Zn、As、Cd和Pb含量为(104.47±2.02)、(322.39±9.36)、(497.16±5.25)、(66.27±0.76)、(5.35±0.16)和(83.41±1.21) mg/kg(*n*=3),分别模拟短时强降水和小雨。模拟短时强降水时,设置每小时100 mm的降雨量,持续降雨6 h;模拟小雨时,连续淋溶61 d,即体积流速为88 mL/d。每次淋滤时收集淋滤液分析滤出液重金属含量及pH变化,淋滤结束后每隔7 cm采集堆肥污泥样品,分析垂向堆肥污泥中重金属含量变化。同时采集淋滤前后堆肥污泥样品,分析其重金属形态变化特征。

1.3 分析测试方法及数据处理

1.3.1 分析测试方法

淋滤液pH采用pH计(Mettler Toledo)测定。重金属Zn、Cu、Cd、Pb、Ni、As含量通过HF-HNO₃消解,金属赋存形态分析参照欧盟标准物质局BCR改进的三步连续提取法进行提取分析^[24],由电感耦合等离子体质谱(Neptune plus 7700)测定,检出限为0.02 μg/L。每隔10个样品测定1个标样,通过测定土壤标准物质(GBW-07407, GSS-7)的重金属总量进行参考,计算标准回收率进行全过程的分析质量控制(标准回收率在90%~110%之间)。3个土柱为平行装置,每次实验设置3个空白对照组,以平行样的平均值作为实验最终数据,以满足实验对测试结果精密度和准确度的要求。

1.3.2 风险评估方法

污染指数(CF):

$$CF = \frac{C_{\text{metal}}}{C_{\text{background}}} \quad (1)$$

式中, C_{metal} 是堆肥污泥样本中重金属的浓度,而 $C_{\text{background}}$ 是自然界中金属的背景值^[25]。土壤中重金属单因子污染指数法评价等级标准如表1所示。

地累积指数(I_{geo}):

$$I_{\text{geo}} = \log_2 \left(\frac{C_n}{k \times B_n} \right) \quad (2)$$

式中, C_n 为样品中元素 n 的浓度; B_n 为背景浓度; k 为修正指数,一般取1.5。以贵州省土壤背景值浓度进行计算,Cd、Zn、Pb、As、Ni和Cu分别为0.66、99.5、35.2、20.00、39.10和32.00 mg/kg^[26]。土壤重金属地累积指数评价等级标准如表2所示。

潜在生态风险指数(PERI):

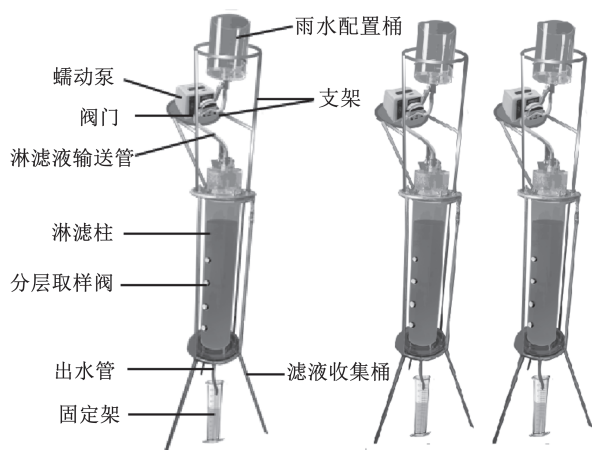


图1 模拟降雨淋滤实验装置

Fig.1 Simulated rainfall leaching experimental device

表1 土壤重金属单因子污染指数法评价等级标准

Table 1 Grade of soil heavy metal single factor pollution index

等级	CF	污染程度
1	$CF < 1$	低污染
2	$1 \leq CF < 3$	中污染
3	$3 \leq CF < 6$	高污染
4	$CF \geq 6$	极高污染

表2 土壤重金属地累积指数评价等级标准

Table 2 Criteria of the soil heavy metal geo-accumulation index

I_{geo}	级别	生态风险程度
$I_{geo} < 0$	0	无污染
$0 \leq I_{geo} < 1$	1	轻污染
$1 \leq I_{geo} < 2$	2	中污染
$2 \leq I_{geo} < 3$	3	中污染-重污染
$3 \leq I_{geo} < 4$	4	重污染
$4 \leq I_{geo} < 5$	5	重污染-极重污染
$I_{geo} \geq 5$	6	极重污染

$$C_f^i = \frac{C_x^i}{C_n^i} \tag{3}$$

$$E_r^i = T_f^i C_f^i \tag{4}$$

$$PERI = \sum_{i=1}^n E_r^i \tag{5}$$

式中, C_f^i 为重金属*i*的污染系数; C_x^i 为重金属*i*的实测浓度; C_n^i 为重金属*i*的评价标准,以贵州省土壤中重金属含量背景值为参照; E_r^i 为第*i*种重金属单因子潜在生态风险指数; T_f^i 为重金属*i*毒性响应系数, Cd、As、Pb、Cu、Ni、Zn分别取值30、10、5、5、5、1^[27]; *PERI*为综合潜在生态风险指数。潜在生态风险评价标准如表3所示。

1.3.3 数据处理

数据处理在Excel表中完成,图件的制作由Origin 2021软件绘制完成。

表3 潜在生态风险评价标准

Table 3 Criteria of potential ecological risks

E_r^i	生态风险程度	<i>PERI</i>	生态风险程度
$E_r^i < 40$	低度	$PERI < 150$	轻度
$40 \leq E_r^i < 80$	中度	$150 \leq PERI < 300$	中度
$80 \leq E_r^i < 160$	重度	$300 \leq PERI < 600$	重度
$160 \leq E_r^i < 320$	较重	$PERI \geq 600$	严重
$E_r^i \geq 320$	严重		

2 结果与讨论

2.1 不同降雨强度下滤出液中重金属释放规律

2.1.1 小雨

降雨对重金属的浸出取决于内在因素(如堆肥污泥的理化性质)^[28]和外在因素(如降雨强度、pH和持续时间)^[29-30]。小雨淋滤下,滤出液中重金属含量发生显著变化。滤出液中Ni和As含量在1~32 h之间持续上升并达到最大值(图2a、2d),分别为0.55和0.64 mg/L,后随时间增加Ni和As含量整体呈下降趋势,在第61 d时达到最低值(Ni=0.17 mg/L, As=0.22 mg/L)。滤出液中Cu、Pb含量都与Ni表现出相同的变化趋势(图2b、2f),但是Cu在第18 h时达到最大值(8.06 mg/L), Pb在第6 h时达到最大值(0.24 mg/L)。滤出液中Zn含量在初始时达到最大值(1.70 mg/L),随后开始急剧下降,并在第4 d达到最低值,但在4 d之后Zn含量开始小幅度波动(图2c)。滤出液中Cd含量整体呈现波动起伏状态(图2e),分别在第7 d和第43 d达到最大值(0.008 mg/L)。

综上所述,滤出液中Ni、Cu、Zn、As和Pb含量随时间增加而降低,均在淋滤的第1~2 d达到最大值,后期逐渐趋于稳定。除Cd以外,其他重金属在淋滤初期释放量最大,是因为降雨先将附着在土壤颗粒表面的重金属冲走,同时前期pH较低,矿物中的阳离子(如H⁺、Mg²⁺、Ca²⁺等)与重金属元素发生置换反应而使其溶出释放。而滤出液中的Cd含量随时间波动明显,未达到稳定状态。在pH为6.8的小雨淋滤下,滤出液中pH在初始时迅速降低至6.5以下,随后上升并达到稳定(图3),这个稳定状态持续到第10 d(7.23~7.43)。从第13 d开始到实验结束, pH一直呈现上下起伏现象。这可能是由于堆肥污泥中含有丰富的有机质,降雨促进了堆肥污泥中微生物降解有机物,并产生一定量的有机酸,导致滤出液中pH降低^[10,31]。在我们的前期研究中^[32],堆肥污泥初始pH为7.34,组成成分是以氧化物、碳酸盐和黏土矿物为主的石英石、白云石和方解石,属于典型的碳酸盐型矿物,对酸有很强的中和能力,因此,滤出液pH升高。

2.1.2 短时强降水

在短时强降水淋滤过程中,滤出液中Ni含量在0~90 min呈上升趋势(图4a),达到最大值(0.23 mg/L),随后逐渐降低并趋于稳定(0.10 mg/L)。滤出液中Cu含量随淋滤时间呈先升高后降低的变化趋势(图4b)。滤出液中的Zn和Pb含量在淋滤初始就达到最大浸出量(图4c、4f),分别为0.98和0.03 mg/L,后随淋滤时间增加而降低。重金属As和Cd含量在第120 min的滤出液中

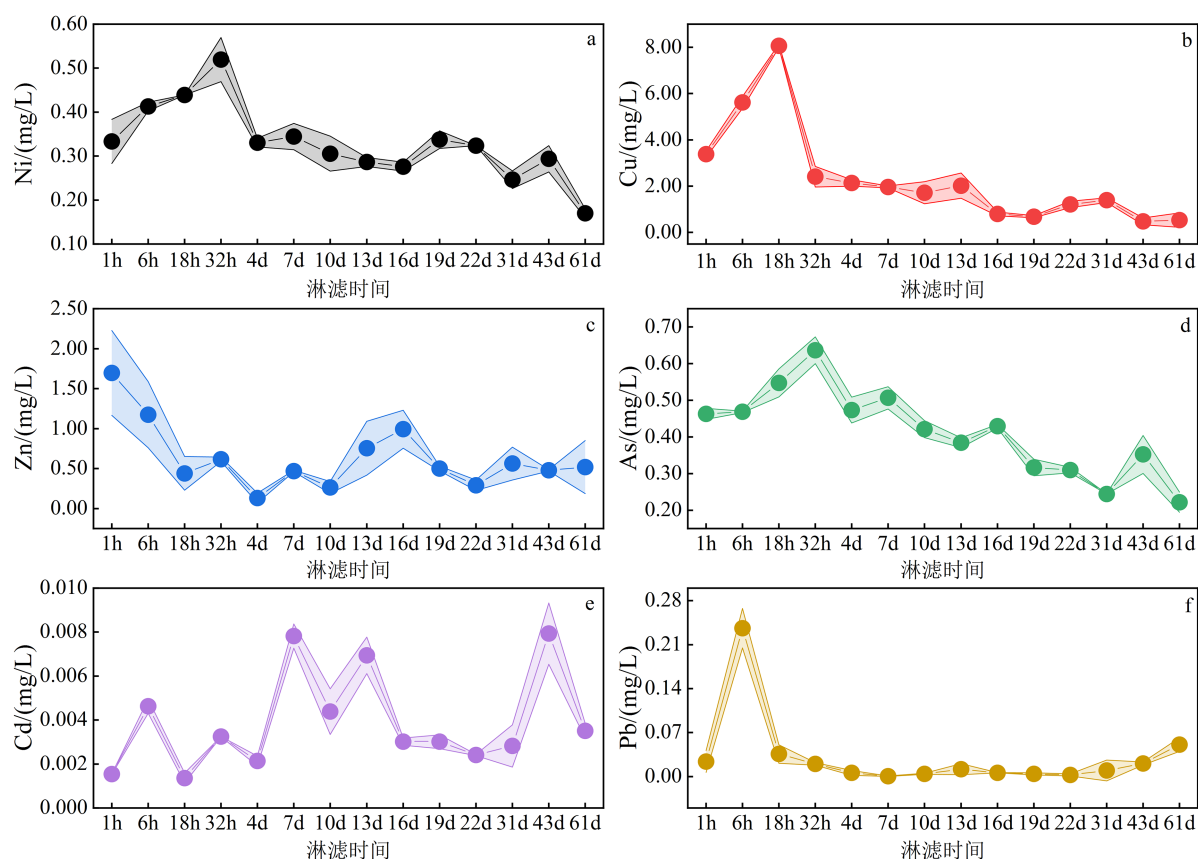


图2 小雨淋滤下滤液重金属含量随时间变化

Fig.2 Variation of heavy metal content of filtrate under light rain drenching with time



图3 降雨淋滤下滤出液pH变化

Fig.3 Changes in pH of leachate under rainfall leaching

达到最大值(图4d、4e),分别为0.25和0.01 mg/L。滤出液中重金属都在淋滤的前2 h内快速浸出达到最大值,其中Ni、Cu、As和Cd变化趋势基本一致,皆在第240 min左右达到稳定状态。滤出液的Zn和Pb含量均在第50 min左右达到稳定状态,Zn维持在0.21~0.27 mg/L范

围内,而Pb呈现一个小范围波动状态,并趋于稳定(0.01 mg/L)。

在pH为6.8的短时强降水淋滤下,滤出液中pH呈现逐渐增加的趋势,稳定在6.6~7.1之间(图3),这可能与可溶性矿物/盐的氧化有关^[33]。短时强降水淋滤下,滤出液中重金属含量均表现为先升高后达到稳定的变化趋势,这可能是模拟降雨中的离子(如 Na^+ 、 H^+ 、 OH^-)促进了表面结合位点上的金属离子发生置换/溶解所致^[30,34]。

小雨和短时强降水的滤出液中重金属含量大小规律皆为 $\text{Cu} > \text{Zn} > \text{As} > \text{Ni} > \text{Pb} > \text{Cd}$,这说明重金属Cu和Zn更容易被淋滤出,活性比其他4种重金属高。与景爽等^[35]研究结果不同的是,小雨淋滤的滤出液重金属含量均高于短时强降水淋滤的滤出液重金属含量,这可能与短时强降水淋滤过程中形成的表面积水有关,正如王鑫^[10]的研究发现降雨强度越大,淋滤柱表面形成的积水使得堆肥污泥从雨水淋滤状态变为雨水浸泡状态,从而减少了模拟雨水对堆肥污泥的侵蚀和冲洗。因此,堆肥污泥中重金属在降雨强度为小雨淋滤时释放量最大。

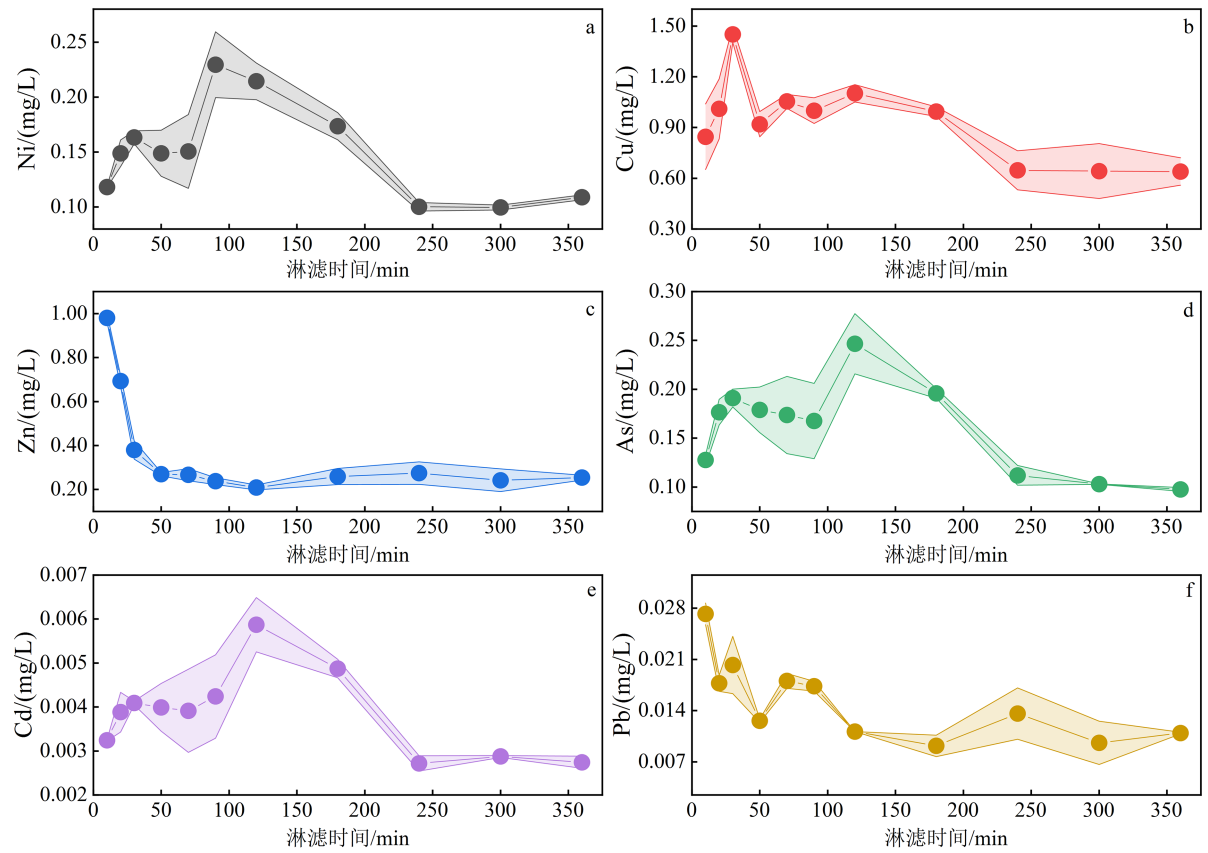


图4 短时强降水淋滤下滤液重金属含量随时间变化

Fig.4 Variation of heavy metal content of filtrate under short-term heavy precipitation leaching with time

2.2 堆肥污泥中重金属垂向迁移特征

小雨淋滤下,重金属随淋滤液下渗而向下垂向迁移(图5a),其中Ni、Cu、Zn、As、Cd和Pb均在20~25 cm深度时含量最低,依次为79.75、189.17、303.62、54.47、1.95

和71.34 mg/kg,分别是贵州省土壤背景值的2.0、5.9、3.1、2.7、3.0和2.0倍,但均在标准(GB/T 24600—2009)规定的范围内。短时强降水淋滤下,堆肥污泥中Ni、Cu和Zn含量均在表层时含量最低(图5b),分别为87.95、

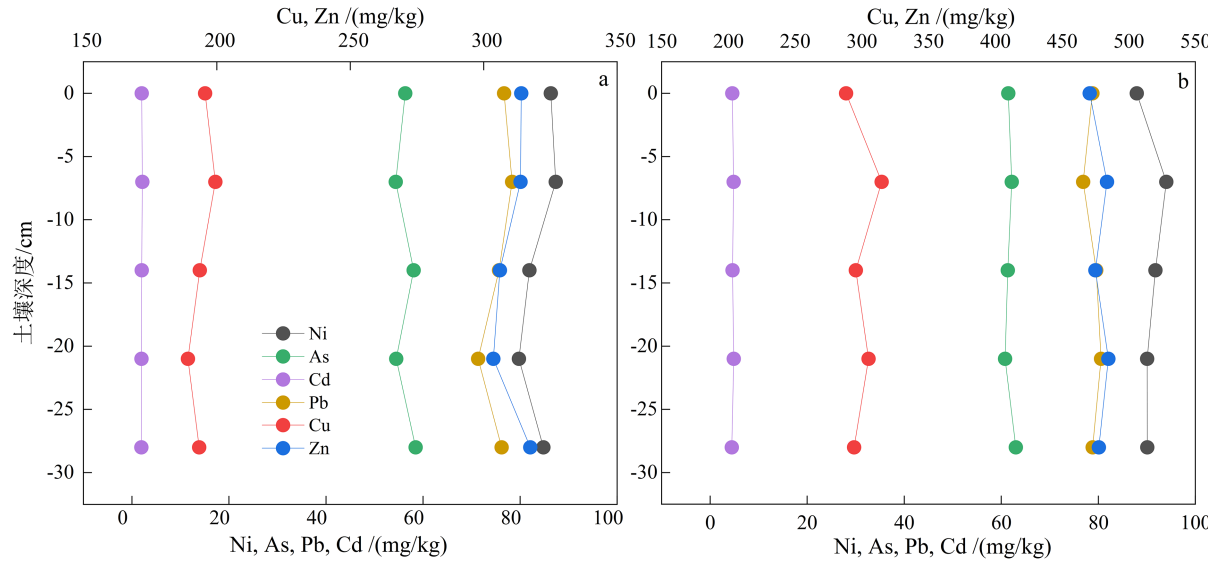


图5 堆肥污泥中重金属含量垂向迁移变化

Fig.5 Changes in vertical migration of heavy metal content in composted sludge

288.21和470.85 mg/kg,这说明短时强降水对Ni、Cu和Zn的冲刷更强。5~10 cm深度中重金属Ni、Cu和Zn含量最高,后随深度增加含量降低。堆肥污泥中的Cd和Pb含量在20~25 cm深度最高,分别为4.86和80.57 mg/kg,堆肥污泥中As含量则在25~30 cm深度时最高。

较低的pH、降雨时长、降雨强度对重金属向下迁移的影响较大。小雨淋滤下,重金属主要稳定在20~25 cm深度,而短时强降水淋滤下,堆肥污泥中的重金属主要稳定在表层(0~5 cm)中。短时强降水(降雨量达到100 mm/h)相较于小雨淋滤,雨水下渗速度低于降雨淋滤的速度,故淋滤柱表面形成的积水使得堆肥污泥从雨水淋滤状态变为雨水浸泡状态,改变了堆肥污泥的氧化还原电位,滤出部分主要以水溶态、弱酸提取态等易迁移和吸附在堆肥污泥颗粒表面的重金属为主。由于小雨淋滤次数多、淋滤时间长,堆肥污泥始终保持湿润状态,且pH呈现先降低后升高的波动起伏,使得部分被碳酸盐矿物吸附和共沉淀的重金属被置换到淋滤液中^[30,32],滤出液重金属含量高于短时强降水滤出液重金属含量,故堆肥污泥中各重金属含量低于短时强降水淋滤后堆肥污泥中的重金属含量。

2.3 淋滤前后堆肥污泥中重金属形态变化

小雨淋滤后堆肥污泥中重金属形态占比发生显著变化(图6)。淋滤前,堆肥污泥中重金属Zn主要以可还原态、可氧化态和残渣态为主。当pH下降时,可还原态、可氧化态等向弱酸提取态转化。因此,淋滤后堆肥污泥主要以可氧化态和残渣态为主,分别为51.00和217.57 mg/kg(表4),其中残渣态Zn的占比由28%提高至72%。淋滤后可氧化态Cd和可还原态Cd含量占比降低,残渣态Cd含量为0.70 mg/kg,占比增加至34%。淋滤后重金属Pb和Cu的形态变化一致,残渣态Pb和残渣态Cu的含量占比均大于95%,且Ni和As的可氧化态和残渣态含量占比达到98%。综上,小雨淋滤后重金属Zn、Pb、Ni、Cu和As的残渣态含量占比显著上升,皆在70%以上,较稳定,不易发生迁移,因此重金属Zn、Pb、Ni、Cu和As的生物风险较低。而Cd在淋滤后仍以弱酸提取态Cd(16%)、可还原态Cd(32%)和可氧化态Cd(17%)为主,当pH降低时,易随淋滤液滤出。

短时强降水快速淋滤后,重金属Zn仍以可还原态、可氧化态和残渣态为主(图6),但残渣态Zn含量为261.29 mg/kg,占比增加了27%,可还原态和可氧化态分别降低12%和16%。堆肥污泥经短时强降水淋滤后,重金属Cd仍以易迁移形态为主,可还原态Cd含量为1.99 mg/kg,占比为43%。淋滤后,堆肥污泥中重金属

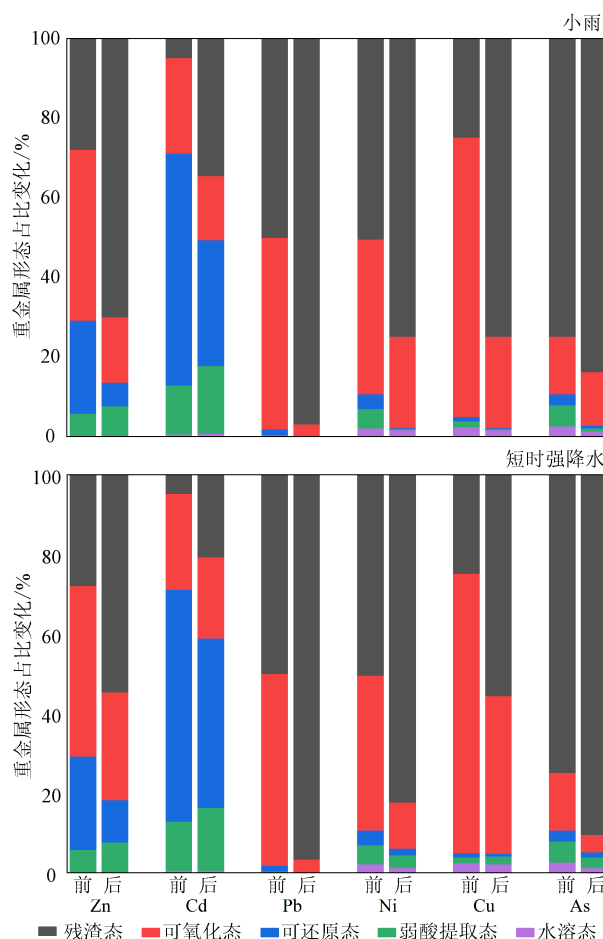


图6 降水淋滤前后堆肥污泥中重金属形态占比变化

Fig.6 Changes in the percentage of heavy metal forms in composted sludge before and after leaching by precipitation

Pb、Ni和As的残渣态含量占比均高于80%,重金属Cu淋滤前后都以可氧化态和残渣态为主,其中可氧化态Cu含量占比降低30%,而残渣态Cu含量为166.29 mg/kg,所占比例提高了31%。

淋滤前,堆肥污泥中Pb、Ni、Cu和As主要以残渣态和可氧化态为主($\geq 50\%$),生态环境危害较低。而Zn和Cd主要以可还原态和可氧化态为主,稳定性较弱,具有较强的迁移能力。这可能是因为Cd在石灰性土壤中主要以 CdCO_3 、 $\text{Cd}(\text{OH})_2$ 存在,且易与其他物质的细颗粒相结合^[36]。Pb主要以 $\text{Pb}(\text{OH})_2$ 、 PbCO_3 、 PbSO_4 存在,其非稳定态受pH和氧化还原影响,可氧化态Pb被滤出,滤出液Pb含量升高。除重金属Zn、Cd和Cu外,其余重金属不同降雨强度淋滤后各形态含量差别不明显。短时强降水淋滤后残渣态Zn含量占比较小雨淋滤后低15%,小雨更容易将非稳定态Zn淋滤出。短时强降水淋滤后重金属Cu含量占比较小雨淋滤低39%,由于Cu在自然界

表4 不同降雨强度淋滤前后堆肥污泥中重金属浓度变化

Table 4 Changes in heavy metal concentrations in composted sludge before and after leaching at different rainfall intensities

淋滤条件	重金属	水溶态	弱酸提取态	可还原态	可氧化态	残渣态
淋滤前	Zn	1.34	27.54	116.65	213.15	138.49
	Cd	0.03	0.66	3.11	1.29	0.25
	Pb	0.04	0.29	1.24	40.17	41.69
	Ni	2.03	5.09	3.85	40.75	52.74
	Cu	8.05	4.68	3.56	226.41	79.69
	As	1.77	3.50	1.80	9.61	49.59
小雨淋滤后	Zn	0.57	23.35	18.52	51.00	217.57
	Cd	0.02	0.34	0.64	0.33	0.69
	Pb	0.01	0.01	0.05	2.33	73.26
	Ni	1.13	0.70	0.50	11.37	70.33
	Cu	3.23	0.63	0.42	44.71	145.26
	As	0.98	0.55	0.18	1.10	53.52
短时强降水淋滤后	Zn	0.52	36.45	50.71	129.47	261.29
	Cd	0.03	0.74	1.99	0.95	0.96
	Pb	0.01	0.05	0.12	2.51	76.25
	Ni	1.20	2.85	1.55	10.51	74.66
	Cu	6.70	5.75	2.19	118.66	166.29
	As	0.79	1.65	0.77	2.69	55.85

注:金属提取态浓度单位为mg/kg。

中主要以Cu⁺、Cu²⁺的形态存在于化合物中,且易与无机物、有机的活性基团生成螯合物或络合物,再和S离子反应生成硫化物沉淀^[37]。短时强降水下渗速度快,与堆肥污泥接触时间较短,而小雨随降雨时长、降雨次数的原因与堆肥污泥接触较多,导致小雨淋滤后残渣态Cu的含量占比较短时强降水淋滤后高。因此,降雨通过淋溶作用改变土壤pH等机制,改变了堆肥污泥中重金属的形态,增加了重金属的释放和迁移,从而可能导致土壤和地下水的重金属污染。

2.4 堆肥污泥重金属风险评价

小雨淋滤后堆肥污泥中重金属Ni、Pb和As的CF值在1~3之间,处于中污染状态(表5),Zn和Cd处于高污染状态,而Cu处于极高的污染状态(6.07)。短时强降水淋滤后堆肥污泥中重金属Ni和Pb处于中污染状态,Zn和As处于高污染状态,Cu和Cd处于极高的污染状态(7.07~9.36)。根据Muller建议的I_{geo}分级^[28],小雨淋滤后堆肥污泥中重金属Ni、Pb和As为轻度污染,重金属Zn

表5 不同降雨强度淋滤后堆肥污泥CF和I_{geo}评价

Table 5 Evaluation of CF and I_{geo} of composted sludge after leaching with different rainfall intensities

评价指数	降雨强度	Ni	Zn	Cd	Pb	Cu	As
CF	小雨	2.15	3.13	3.06	2.15	6.07	2.82
	短时强降水	2.32	4.81	7.07	2.24	9.36	3.09
I _{geo}	小雨	0.52	1.06	1.03	0.52	2.02	0.91
	短时强降水	0.63	1.68	2.24	0.58	2.64	1.04

和Cd出现中度污染,而Cu表现为中度污染-重度污染。短时强降水淋滤后堆肥污泥中重金属Ni和Pb为轻度污染,重金属Zn和As出现中度污染,而Cd和Cu表现为中度污染-重度污染。重金属Zn、Cu和Cd相对于贵州省背景值超标了3.1~9.4倍,为了降低后期土地利用风险,建议堆肥污泥施加比例在30%以内。

小雨淋滤后堆肥污泥中重金属Ni、Zn、Cd、Pb、Cu和As的潜在生态因子分别为10.74、3.13、91.73、10.75、30.35和28.17(表6)。除重金属Cd外,其余重金属的潜在生态因子都没有超过40,属于低污染水平,而Cd属于重度污染水平。且小雨淋滤后堆肥污泥潜在生态风险指数为174.86,属于中度污染。短时强降水淋滤后堆肥污泥中重金属Ni、Zn、Cd、Pb、Cu和As的潜在生态因子分别为11.61、4.81、212.04、11.21、46.81和30.88。重金属Ni、Zn、Pb和As的潜在生态因子都低于40,属于低污染水平,重金属Cu的潜在生态因子在40~80之间,处于中度污染,而重金属Cd的潜在生态因子在160~320之间,为较重污染水平。并且短时强降水淋滤后堆肥污泥潜在生态风险指数为317.35,属于重度污染。

表6 不同降雨强度淋滤后堆肥污泥潜在生态风险评价

Table 6 Evaluation of potential ecological risks of composted sludge after leaching at different rainfall intensities

单因子潜在生态风险指数	Ni	Zn	Cd	Pb	Cu	As
E _i (小雨)	10.74	3.13	91.73	10.75	30.35	28.17
E _i (短时强降水)	11.61	4.81	212.04	11.21	46.81	30.88

3 结论

1)小雨的滤出液中重金属含量均高于短时强降水。不同降雨强度下Ni、Cu、Zn、As和Pb的含量均在淋滤的第1~2 d达到最大值,随后逐渐趋于稳定,而Cd的含量随时间波动明显,未达到稳定状态。

2)降雨通过淋溶作用改变土壤pH等,增加了堆肥污泥中重金属的释放和迁移,导致土壤和地下水的重金属污染。小雨淋滤下,非稳定态Zn、Cu和Cd更易被滤出,堆肥污泥中的重金属向下迁移,主要迁移至20~25 cm深度;短时强降水淋滤下,重金属主要固定在表层堆肥污泥(0~5 cm)。

3) CF 、 I_{geo} 、 $PERI$ 指数评价结果显示小雨淋滤后堆肥污泥中重金属Cu的生态风险最高,其次是Zn和Cd, Ni、Pb和As均为低生态风险。短时强降水淋滤后堆肥污泥中重金属Cd和Cu的生态风险最高,Zn和As次之, Ni和Pb处于低污染状态。

因此,在使用堆肥污泥进行土地修复或农业利用时,需要考虑降雨对重金属迁移的影响,并采取相应的预防和管理措施:(1)堆肥污泥储存时需要铺设防渗膜或其他防渗材料,以防止雨水和地下水渗入堆体,减少淋滤造成的损失,降低对土壤和地下水的污染;(2)不同降雨强度淋滤下,滤出液中重金属含量均在淋滤初期被快速滤出,可以考虑优先种植吸附重金属的植物,以达到降低土壤生态风险的目的,同时避免在雨季使用堆肥污泥;(3)堆肥污泥中Zn的含量高,Cu和Cd的易迁移态含量较高,堆肥污泥土地利用时需严格控制施用量,建议施加比例在30%以内。

参 考 文 献

- [1] 中华人民共和国生态环境部. 2022年中国生态环境统计年报[R]. 北京: 中华人民共和国生态环境部, 2023.
- [2] Tan Y L, Cao X D, Chen S J, et al. Antibiotic and heavy metal resistance genes in sewage sludge survive during aerobic composting[J]. *Science of the Total Environment*, 2023, 866: 161386.
- [3] 杨东海, 华煜, 武博然, 等. 双碳背景下有机固废资源化处置技术发展思考[J]. *环境工程*, 2022, 40(12): 1-8, 36.
- [4] 李秋实, 郭祥, 刘彬, 等. 市政污泥与玉米秸秆混合高温厌氧发酵产甲烷研究[J]. *环境工程*, 2022, 40(7): 139-145.
- [5] Lv H X, Chen X H, Mo C H, et al. Occurrence and dissipation mechanism of organic pollutants during the composting of sewage sludge: a critical review[J]. *Bioresource Technology*, 2021, 328: 124847.
- [6] Wang G Y, Li G X, Chang J L, et al. Enrichment of antibiotic resistance genes after sheep manure aerobic heap composting[J]. *Bioresource Technology*, 2021, 323: 124620.
- [7] Auta H S, Emenike C U, Fauziah S H. Screening of *Bacillus* strains isolated from mangrove ecosystems in Peninsular Malaysia for microplastic degradation[J]. *Environmental Pollution*, 2017, 231(Pt 2): 1552-1559.
- [8] Kuroda K, Katahira T, Yamada M, et al. Co-composting of sewage sludge with plant biomass, and analysis of microbiome relevant to plant growth promotion[J]. *Bioresource Technology Reports*, 2023, 22: 101401.
- [9] Qian S X, Zhou X R, Fu Y K, et al. Biochar-compost as a new option for soil improvement: application in various problem soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2023, 870: 162024.
- [10] 王鑫. 淋滤作用下锑矿废石重金属释放规律及生态风险评价[D]. 湘潭: 湖南科技大学, 2022.
- [11] 崔申申, 杜晓丽, 刘殿威, 等. 降雨入渗对下渗设施土壤胶体-重金属共释放迁移的影响[J]. *环境化学*, 2022, 41(9): 2842-2849.
- [12] 苟剑锋, 高冬香, 曾正中, 等. 污泥施入黄土后重金属Cu、Zn、Cd的淋滤迁移[J]. *环境工程学报*, 2015, 9(6): 3002-3008.
- [13] Kan X Q, Dong Y Q, Feng L, et al. Contamination and health risk assessment of heavy metals in China's lead-zinc mine tailings: a meta-analysis[J]. *Chemosphere*, 2021, 267: 128909.
- [14] 杨军, 郭广慧, 陈同斌, 等. 中国城市污泥的重金属含量及其变化趋势[J]. *中国给水排水*, 2009, 25(13): 122-124.
- [15] 陈同斌, 黄启飞, 高定, 等. 中国城市污泥的重金属含量及其变化趋势[J]. *环境科学学报*, 2003, 23(5): 561-569.
- [16] 王丽霞. 城市污泥产品林地利用过程中重金属的环境风险评价[D]. 北京: 北京林业大学, 2020.
- [17] Achkir A, Aouragh A, El Mahi M, et al. Implication of sewage sludge increased application rates on soil fertility and heavy metals contamination risk[J]. *Emerging Contaminants*, 2023, 9(1): 100200.
- [18] 黄月娥. 城市污泥5种重金属分布特征及其环境风险评价[D]. 淮南: 安徽理工大学, 2016.
- [19] Walter I, Martínez F, Cala V. Heavy metal speciation and phytotoxic effects of three representative sewage sludges for agricultural uses[J]. *Environmental Pollution*, 2006, 139(3): 507-514.
- [20] 傅华, 王玉梅, 周志宇, 等. 施用污泥对黑麦草草坪绿地土壤理化性质和重金属元素含量的影响[J]. *草业学报*, 2003, 12(2): 82-86.
- [21] 邹通, 惠秀娟, 唐凤德, 等. 污泥对风沙土养分与重金属效应的淋溶模拟研究[J]. *安徽农业科学*, 2012, 40(24): 12174-12176.
- [22] 李楠, 迟杰. 港口矿石堆场矿石中重金属形态及模拟酸雨淋溶释放行为研究[J]. *安全与环境学报*, 2013, 13(5): 99-102.
- [23] 周赛军, 王余心, 邓新平, 等. 锑矿废渣模拟酸雨淋溶重金属Sb、As、Hg淋溶释放规律[J]. *土木与环境工程学报*, 2022, 44(3): 168-176.
- [24] 施意华, 阳兆鸿, 徐华, 等. 改进化学顺序提取-电感耦合等离子体质谱法应用于铅锌尾矿中铜铅锌镉镍的化学形态分析[J]. *冶金分析*, 2016, 36(7): 83-89.
- [25] Zhang S, Song J. Geochemical cadmium anomaly and bioaccumulation of cadmium and lead by rapeseed (*Brassica napus* L.) from noncalcareous soils in the

- Guizhou Plateau[J]. Science of the Total Environment, 2018, 644: 624–634.
- [26] Ben Ali M, El Fadili H, El Mahi M, et al. Geochemistry pollution status and ecotoxicological risk assessment of heavy metal(oid)s in soil influenced by co-landfilling of MSW and sewage sludge, Morocco[J]. Environmental Nanotechnology, Monitoring & Management, 2023, 20: 100859.
- [27] Islam A R M T, Varol M, Habib M A, et al. Risk assessment and source apportionment for metals in sediments of Kaptai Lake in Bangladesh using individual and synergistic indices and a receptor model[J]. Marine Pollution Bulletin, 2023, 190: 114845.
- [28] Hakanson L. An ecological risk index for aquatic pollution control a sedimentological approach[J]. Water Research, 1980, 14(8): 975–1001.
- [29] Gao B, Gao L, Xu D Y, et al. A novel method for evaluating the potential release of trace metals associated with rainfall leaching/runoff from urban soils[J]. Science of the Total Environment, 2019, 664: 37–44.
- [30] Meite F, Alvarez-Zaldivar P, Crochet A, et al. Impact of rainfall patterns and frequency on the export of pesticides and heavy-metals from agricultural soils[J]. Science of the Total Environment, 2018, 616/617: 500–509.
- [31] Li W, Deng Y, Wang H, et al. Potential risk, leaching behavior and mechanism of heavy metals from mine tailings under acid rain[J]. Chemosphere, 2024, 350: 140995.
- [32] 侯锋, 何芸, 高霖, 等. 施用堆肥污泥对土壤肥力及植物生长的影响[J]. 地球与环境, 2024, 52(1): 53–64.
- [33] Wang P, Sun Z H, Hu Y A, et al. Leaching of heavy metals from abandoned mine tailings brought by precipitation and the associated environmental impact[J]. Science of the Total Environment, 2019, 695: 133893.
- [34] Sun R G, Gao Y, Yang Y. Leaching of heavy metals from lead-zinc mine tailings and the subsequent migration and transformation characteristics in paddy soil[J]. Chemosphere, 2022, 291(Pt 1): 132792.
- [35] 景爽, 郝喆, 滕达, 等. 降雨对废弃尾矿分层土壤重金属Cu、Pb、Zn的淋滤释放影响规律[J]. 有色金属工程, 2023, 13(3): 155–162.
- [36] 赵浩任. 模拟降雨条件下含铬土壤中铬的迁移特征研究[D]. 成都: 成都理工大学, 2021.
- [37] 党志, 刘丛强, 尚爱安. 矿区土壤中重金属活动性评估方法的研究进展[J]. 地球科学进展, 2001, 16(1): 86–92.

Characterization of Heavy Metal Release, Transformation and Ecological Risk in Composted Sludge under Simulated Rainfall Leaching

HE Yun^{1,2,3}, YANG Haiquan^{1,2,3,*}, ZENG Guangneng¹, YANG Cheng¹, JIANG Lujia^{2,3},
HU Senhua^{2,3}, DU Lifen^{2,3}

(1. College of Eco-Environmental Engineering, Guizhou Minzu University, Guiyang 550025, China;

2. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry,
Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550081, China;

3. Guizhou Province Field Scientific Observation and Research Station of Hongfeng Lake Reservoir Ecosystem, Guiyang 551499, China)

Abstract: Land use is the main way of sludge resource utilization and reduction disposal. However, rainfall, irrigation and other leaching processes will lead to the release of heavy metals from composted sludge into the environment, resulting in soil and groundwater contamination. Therefore, the analysis of heavy metal precipitation under different rainfall intensities before land use of composted sludge can help to determine the application rate and risk regulation. The results showed that (1) heavy metal leaching concentrated in the early stage of leaching and stabilized with the increase of rainfall duration, in which the concentrations of heavy metals Ni, Cu, Zn, As and Pb in the leachate of the short-term intense precipitation were lower than those of the light rainfall. (2) The vertical migration of heavy metals is mainly affected by rainfall intensity, rainfall duration and leaching amount. Heavy metals were mainly transported to the depth of 20–25 cm under long-term light rainfall leaching, and the unstable elements Zn, Cd and Cu were more likely to be leached out. The vertical migration of heavy metals under short-term heavy precipitation leaching was not obvious. (3) The ecological risk indices CF , I_{geo} and $PERI$ showed that Ni, Pb and As in composted sludge were of low ecological risk, but the ecological risk of Cu was the highest under long-term light rainfall leaching, and the ecological risk of Cd and Cu was the highest under short-duration heavy precipitation leaching. Therefore, the land use of composted sludge needs to strictly control the applied amount to reduce the environmental ecological risk of Cd and Cu, and pay attention to the heavy metal pollution from rainfall leaching.

Keywords: composted sludge; rainfall leaching; heavy metals; transformation; risk assessment