

华北地区畜禽粪便有机肥中重金属含量及溯源分析

王 飞^{1,2,3}, 赵立欣^{1,4}, 沈玉君^{1,4*}, 孟海波^{1,4}, 向 欣^{1,4}, 程红胜^{1,4}, 罗 煜^{1,4}

(1. 农业部规划设计研究院, 北京 100125; 2. 农业部农业生态与资源保护总站, 北京 100125; 3. 西北农林科技大学, 杨凌 712100; 4. 农业部农业废弃物资源化利用重点实验室, 北京 100125)

摘 要: 为了揭示商品有机肥普遍存在的重金属超标的原因, 该研究以华北农产品产地为研究范围, 通过对畜禽粪便为原料的商品有机肥进行调查取样和分析测试, 获得了华北地区畜禽粪便有机肥中重金属污染现状, 利用主成分分析法对重金属溯源进行了初步探讨, 明确了影响华北地区商品有机肥重金属污染的重要因素。结果表明, 华北农产品产地商品有机肥中重金属 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn、Ni、As、Hg 质量分数的平均值分别为 0.21、45.42、69.22、87.40、274.58、16.50、3.21、0.33 mg/kg。按照中国有机肥行业标准, Pb 的超标率高达 80.56%, 其他不超标; 按照德国腐熟堆肥标准, 大部分重金属超标, Cr、Cu、Pb、Zn、Ni、Hg 的超标率分别为 8.33%、13.89%、16.67%、19.44%、2.78%、11.11%, 但 Cd 不超标。主成分分析结果表明, 前 3 个主成分的贡献率分别为 34.7%、16.6%、13.0%, 可以解释总变量的 64.3%, 能够基本反映大部分数据信息。结合商品有机肥生产原料及工艺特点分析发现, 华北农产品产地商品有机肥中重金属污染的主要来源为高 Pb、高 Hg 饲料添加剂的使用; 磷肥的添加; 高 Cu、高 Zn 饲料添加剂的使用。华北地区养殖场饲料中重金属含量测定及饲料-有机肥中重金属含量的相关性分析也进一步证实了上述观点。该文为评价华北地区有机肥重金属污染状况提供依据。

关键词: 肥料, 重金属, 主成分分析, 有机肥

doi: 10.3969/j.issn.1002-6819.2013.19.025

中图分类号: X71

文献标志码: A

文章编号: 1002-6819(2013)-19-0202-07

王 飞, 赵立欣, 沈玉君, 等. 华北地区畜禽粪便有机肥中重金属含量及溯源分析[J]. 农业工程学报, 2013, 29(19): 202—208.

Wang Fei, Zhao Lixin, Shen Yujun, et al. Analysis of heavy metal contents and source tracing in organic fertilizer from livestock manure in North China[J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE), 2013, 29(19): 202—208. (in Chinese with English abstract)

0 引 言

近年来, 随着农业的集约化发展及环境污染的加剧, 农产品产地土壤重金属积累逐年增加, 已经影响到食物链安全和人体健康^[1]。随着人们对无公害农产品认识的不断深入, 有机肥在农产品生产过程中占有越来越重要的地位, 随之成为土壤重金属污染的重要来源, 然而, 中国商品有机肥还普遍存在重金属超标的现象^[2]。这些重金属随着有机肥施用进入农田, 不但在农业环境中累积造成污染, 而且存在着进入食物链最终危害人体健康的安全隐患。华北地区是重要的农产品产地, 掌握该地区有机肥中重金属污染现状对进一步提出产地有机肥

安全施用技术体系具有重要意义。

一般认为, 原料是影响有机肥中重金属含量的重要因素^[3-4], 然而, 目前并没有针对有机肥重金属溯源的深入研究。在环境污染溯源解析研究中, 以同位素示踪技术最为精确, 然而, 该技术对采样和检测技术等均有较高要求, 且费用较高, 其大范围推广受到限制^[5]。与此同时, 基于多元统计分析理论的主成分分析法因具有主要污染物识别及溯源分析等功能, 简便易行, 已经广泛应用于土壤、沉积物、大气降尘中重金属来源解析上^[6-8], 取得了较好的效果。在有机肥中重金属来源的相关研究中, 刘荣乐等^[2]通过调查分析发现, 中国商品有机肥中重金属含量与生产原料中重金属含量呈显著正相关。谭晓冬等^[9]提出重金属 Cd 含量以畜禽粪便为原料生产的有机肥最高, Hg 以城市污泥为原料生产的有机肥最高。程旭艳等^[4]发现, 以猪粪为主要生产原料的商品有机肥中重金属平均值最高。然而, 目前的研究基本停留在有机肥及原料中的重金属含量测定及相关性分析, 并未开展有机肥中重金属溯源分析及影响有机肥中重金属含量的因素。

收稿日期: 2013-05-14 修订日期: 2013-08-28

基金项目: 公益性行业(农业)科研专项(201203045)

作者简介: 王 飞(1976—), 男, 山东烟台人, 高级工程师, 主要从事生态农业研究。北京 农业部农业生态与资源保护总站, 100125。

Email: reeawf@126.com

*通信作者: 沈玉君(1984—), 女, 河北邯郸人, 工程师, 博士, 主要从事农业废弃物资源化研究。北京 农业部规划设计研究院农村能源与环保研究所, 100125。Email: shenyj09b@gmail.com

本文以华北农产品产地为例,通过分析该地区商品有机肥中重金属含量,并利用 SPSS16.0 统计软件包对有机肥样品中 8 种重金属进行主成分分析,研究有机肥中的主要污染重金属及可能来源途径,旨在为评价华北地区有机肥重金属污染状况、提出有机肥重金属控制措施提供依据。

1 材料与方法

1.1 研究区域概况及采样点布设

华北地区西起太行山脉和豫西山地,东到黄海、渤海和山东丘陵,北起燕山山脉,西南到桐柏山和大别山,东南至苏、皖北部,与长江中下游平原相连^[10],包括河北、山东、河南(豫北)、山西、北京、天津等省市,产地主要以粮食作物、经济作物和蔬菜为主^[11]。根据商品有机肥调查区域,本文中的华北平原主要指北京市、天津市、河北省、山东省(西部)、山西省、内蒙古(中部)等省市,见图 1。

1.2 重金属分析方法

试验分析商品有机肥中 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn、Ni、As 和 Hg 等 8 种金属含量,委托中国科学院地理科学与资源研究所环境修复中心测试分析。As 和 Hg 采用王水消解,以海光 AFS-9800 原子荧光测定仪测定^[12];其他金属采用 $\text{HNO}_3+\text{HClO}_4$ 法消解,Cr、Cu、Ni、Pb 和 Zn 采用耶拿 ContrAA 700 原子吸收-火焰模式测定,Cd 采用耶拿 ContrAA 700 原子吸收-石墨炉模式测定。

商品有机肥样品采集时间为 2012 年 8—11 月,在华北地区共采集样品 42 个,其中,内蒙古 10 个,山西 10 个,河北 5 个,山东 6 个,北京 6 个,天津 5 个。样品均为市场出售的商品有机肥,原料均

为畜禽粪便。每个样品由采样点的样品混合而得,带回实验室经风干、研磨,过 100 目尼龙筛后置于密封袋中保存备用。

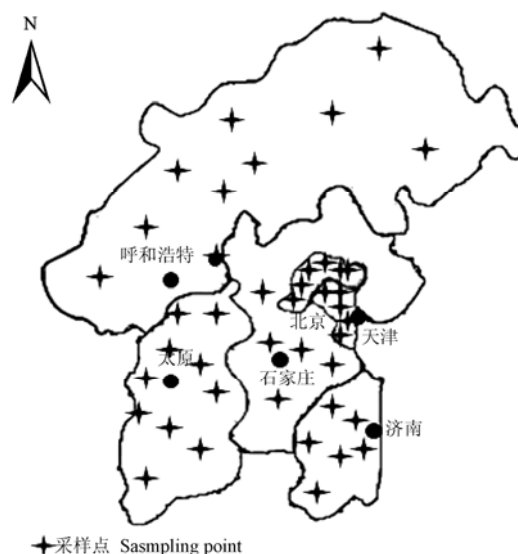


图 1 采样点示意图

Fig.1 Location of sampling stations

仪器和试验基本条件: 1) 原子荧光 还原剂: 0.5% KOH 和 2% KBH_4 ; 预还原剂: 1.1% 抗坏血酸、1.1% 硫脲和 5.6% HCl; 载流: 5.6% HCl; 灯电流: 50 mA; 负高压: 260 V; 载气: 300 mL/min; 屏蔽气: 900 mL/min; 原子化器高度: 6 mm。2) 原子吸收 各元素检测波长: Cd: 228.80 nm; Cr: 357.87 nm; Cu: 324.75 nm; Ni: 232.00 nm; Pb: 283.31 nm; Zn: 213.86 nm。

质控方法: 试验设置 5% 的平行样和标准样品 GSV-2 进行质量控制,质控数据见表 1。

表 1 质量控制数据
Table 1 Data of quality control

样品 Samples	Cd	Cr	Cu	Pb	Zn	Ni	As	Hg
标准样品 1	0.33	2.68	6.56	46.97	55.25	1.57	1.11	0.72
标准样品 2	0.33	2.66	6.55	47.81	55.97	1.54	1.15	0.62
标准回收率/%	86.8	102.8	99.3	100.8	101.1	91.2	90.6	86.8
平行样标准偏差/%	0.30~9.00	0.70~5.30	0.50~3.70	1.10~3.20	0.31~5.80	1.60~8.90	1.20~7.80	0.43~26.00

1.3 主成分分析法

主成分分析法 (principal component analysis, PCA) 是在较少损失原始变量数据信息的前提下,用少量的因子代替原始变量,对原始变量分类,揭示原始变量之间的内在联系,可以把庞杂的原始数据按成因上的联系进行归类,由果及因地归纳出几条比较客观的成因线索,提供逻辑推理方向,以导出正确的成因结论。采用 SPSS 16.0 统计软件包进行主成分分析,为消除变量之间在数量级和量纲上的差异,以使各类变量处于同等地位,采用 Z 分数

法 (Z Score) 对重金属含量数据进行标准化,标准化后的变量,满足其平均值为 0,标准差为 1。基于相关系数矩阵进行主成分的提取,采用 PCA 法进行主因子提取。为使主成分变量更容易得到解释,采用方差极大正交旋转法 (varimax normalized rotation) 对因子载荷矩阵进行旋转,使得各变量在同一主成分上载荷的平方方向最大与最小两极最大限度地分化开来,也就是要使得每个主成分只在少数变量上集中着较大的因子载荷,而在其余变量上的因子载荷为 0 或接近为 0^[8,13]。

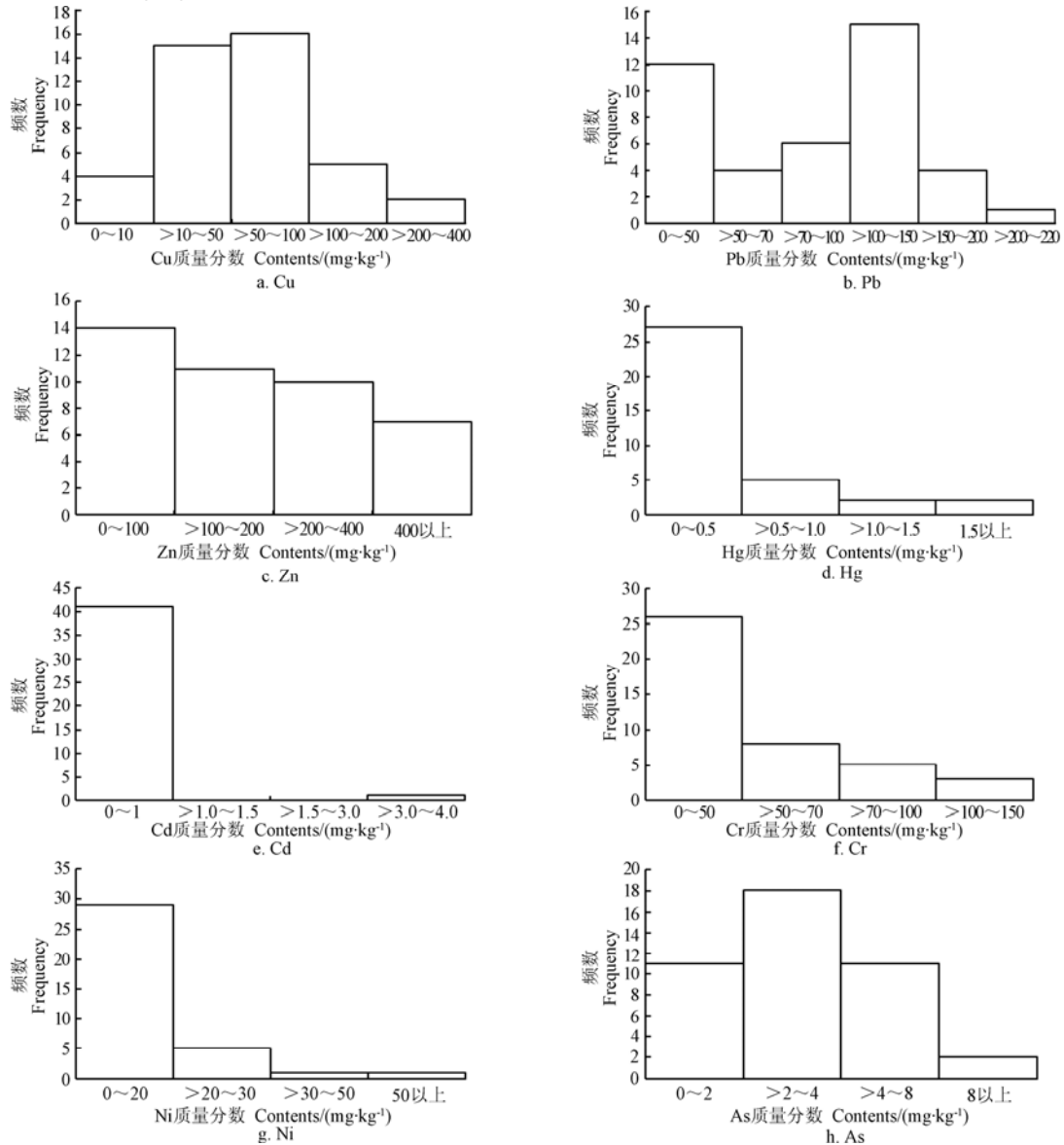
2 结果与分析

2.1 华北地区商品有机肥重金属含量分析

2.1.1 华北地区商品有机肥重金属频数分布

不同种类重金属含量的频数分布直方图如图 2 所示。重金属 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn、Ni、As、Hg 的平均值分别为 0.21、45.42、69.22、87.40、274.58、16.50、3.21、0.33 mg/kg。商品有机肥的来源复杂，

并且生产工艺各有不同，因此，采集的有机肥样品中重金属含量差异较大，变异系数在 61.80%~160%之间，其中 $Zn > Cd > Hg > Cu = Cr > Pb > As > Ni$ ，变异系数较大的 Zn 和 Cd 是常用的饲料添加物质，这也说明因饲料添加量不同而导致畜禽粪便等有机肥原料中重金属差异较大，从而影响商品有机肥的重金属含量。



注：Cu、Pb、Zn、Hg 的超标率 >10%，Cd、Cr、Ni、As 的超标率 <10%

Note: Exceeding rates of Cu, Pb, Zn, Hg are higher than 10%, while the exceeding rates of Cd, Cr, Ni, As are lower than 10%.

图 2 华北商品有机肥中重金属质量分数分布图

Fig.2 Frequent distribution of heavy metal contents in commercial organic fertilizers of North China

Cu、Pb、Zn、Hg 的超标率均高于 10%（图 2a~图 2d），其中，Cu 的质量分数范围是 6.00~367.7 mg/kg，平均值为 69.22 mg/kg，按德国腐熟堆肥标准，除了 16.7% 的样本超标外，50~100 mg/kg 的样本量占全部的 38%，接近标准限量值（100 mg/kg），具有潜在超标风险。Pb 的质量分数

范围是 2.60~208.3 mg/kg，平均值为 87.40 mg/kg。刘荣乐等^[2]测定的 2005 年中国商品有机肥中 Pb 的平均值为 36.6 mg/kg，可见，华北地区有机肥中 Pb 的平均值约为中国的商品有机肥平均值的 2.4 倍。另外，除了 14.3% 的样本超标外，35.7% 的样本 Pb 质量分数在 100~150 mg/kg 之间，接近标准限量值

(150 mg/kg)，具有潜在超标风险。因此，华北地区有机肥中 Pb 含量应得到重视。Zn 的平均值为 274.58 mg/kg，与程旭艳等^[4]测定的 2012 年全国商品有机肥平均值接近 (202.9 mg/kg)，远低于刘荣乐等^[2]测定的 2005 年全国商品有机肥平均值 (732.4 mg/kg)。

Cd、Cr、Ni、As 的超标率均低于 10% (或不超标) (图 2e~图 2h)，Cd 的质量分数范围是 0.001~3.4 0 mg/kg，平均值为 0.21 mg/kg，Cd 与 Zn 类似，远低于 2005 年全国平均水平 (5.64 mg/kg)，而与 2012 年全国平均水平接近 (0.6 mg/kg)，这可能和近年来政府对有机肥中重金属源头的饲料中 Cd、Zn 控制有关。Cd、Cr、Ni、As 样本量低于 1、50、20 和 8 mg/kg 的比例分别占 97.6%、61.9%、69%、95.2%。可以看出，这 4 种重金属除了具有较低的超标率外，样本大部分分布在远低于标准限值的范围内。

2.1.2 华北地区商品有机肥重金属超标情况

表 2 所示为华北农产品产地商品有机肥重金属超标情况。2011 年农业部发布了有机肥行业标准 (NY525-2011)，对 Cd、Cr、Pb、As、Hg 的限量值分别为 3、150、50、15 和 2 mg/kg。在华北地区采集的 42 个商品有机肥样品来看，除未对 Cu、Zn、Ni 作相关限定外，Pb 的超标率高达 80.56%，其余金属全部不超标。但按照德国腐熟堆肥中部分重金属限量标准，Cd、Cr、Cu、Pb、Zn、Ni、Hg 的最高限量分别为 1.5、100、100、150、400、50 和 1 mg/kg，则存在普遍超标的情况，其中 Zn、Pb 的超标率最高，分别为 19.44%、16.67%，Cd 不超标，其他重金属超标率介于其中。2005 年，刘荣乐等^[2]在全国 14 个省共采集了 162 个有机肥样品，对有机肥中重金属做了系统的调查分析 (表 2)，结果表明，中国有机肥中 Pb 的超标率仅为 1.2%，而本研究中华北地区有机肥 Pb 超标率是全国水平的近 14 倍；中国商品有机肥中 Cd、Ni 超标严重，而华北产地的有机肥 Cd 不超标，Ni 超标率较低；而华北地区有机肥中 Cr、Cu、Zn、Hg 的超标率与全国水平相当。

表 2 华北农产品产地商品有机肥重金属超标情况

Table 2 Heavy metal exceeding situation of commercial organic fertilizer in North China

有机肥	标准 Standard	重金属超标率 Exceeding rate of heavy metal/%							
		Cd	Cr	Cu	Pb	Zn	Ni	As	Hg
华北农产品产地商品有机肥 ^[14]	有机肥行业标准 ^[14]	0	0	-	80.56	-	-	0	0
德国腐熟堆肥标准 ^[15]		0	8.33	13.89	16.67	19.44	2.78	-	11.11
中国商品有机肥 ^[2]	德国腐熟堆肥标准 ^[15]	67.9	9.3	16.7	1.2	19.1	45.1	0	10.5

注：“-”表示相关标准未对该重金属做限量规定。

2.2 华北农产品产地商品有机肥重金属溯源分析

2.2.1 商品有机肥中不同重金属的相关性分析

Pearson 相关性分析结果 (表 3) 表明，各因子间具有不同程度的相关性。可以看出，重金属 Cd-Cr、Cr-Hg、Cd-As 间呈显著正相关，这在一定程度上反映了几种重金属的同源性、差异性以及在有机肥中的组合情况。

表 3 商品有机肥中各重金属质量分数的相关系数矩阵

Table 3 Matrix of correlation coefficients of heavy metal in commercial organic fertilizer

	Cd	Cr	Cu	Pb	Zn	Ni	As	Hg
Cd	1.000							
Cr	0.663**	1.000						
Cu	0.209	0.421	1.000					
Pb	0.353	0.409	0.166	1.000				
Zn	0.196	0.091	0.283	-0.112	1.000			
Ni	0.020	-0.115	0.023	-0.196	0.044	1.000		
As	0.580*	0.296	-0.040	0.258	0.092	-0.185	1.000	
Hg	0.423	0.448*	0.146	0.310	-0.019	0.016	0.233	1.000

注：*相关性显著水平 0.05；**相关性显著水平 0.01。下同。

Notes: *shows significantly different at $P=0.05$; ** shows significantly different at $P=0.01$. The same as blow.

2.2.2 商品有机肥中重金属的主成分分析

采用 SPSS 统计软件包对所有有机肥样品中的 8 种重金属含量进行主成分分析 (PCA)，以探索有机肥中主要污染重金属及其影响因素。详见表 4。

表 4 商品有机肥中各重金属的主成分分析

Table 4 Principal component analysis of heavy metal in commercial organic fertilizer

重金属 Heavy metal	因子载荷 Factor load		
	因子 1 Factor 1	因子 2 Factor 2	因子 3 Factor 3
Cd	0.584	0.654	0.226
Cr	0.793	0.210	0.264
Cu	0.499	-0.343	0.675
Pb	0.684	0.080	-0.164
Zn	-0.163	0.236	0.856
Ni	-0.016	-0.095	0.019
As	0.189	0.872	0.015
Hg	0.698	0.209	-0.116

注：百分数为各因子 (各主成分) 在总变量中的贡献率。

主成份分析结果 (表 4) 表明，前 3 个主成分可以解释总变量的 64.3%，能够基本反映原来大部分数据信息。第一主成分的贡献率为 34.7%，Cr、Pb、Hg 在第一主成分中具有较高的载荷。陈林华^[16]和潘寻^[17]研究表明，Cr、Pb、Hg 是养殖场常用的饲料添加剂。这些重金属随饲料进入到有机肥原料畜禽粪便中，产生对有机肥的污染。另外，由于 Cr-Hg 呈显著相关性 ($P<0.05$)，因而 Hg 在有机

肥中的迁移转化会直接影响 Cr 的迁移所造成,由此导致有机肥中重金属 Cr 虽未出现明显污染,但同样在第一主成分具有较高载荷。因此,可认为高 Pb、高 Hg 饲料添加剂的使用是目前华北商品有机肥中重金属的主要来源。第二主成分的贡献率为 16.6%, Cd、As 在主成分 2 中具有较高的载荷,分别为 0.654、0.872,且 As 含量与 Cd 呈显著正相关($P < 0.05$)。Cd、As 是常用的饲料添加剂^[17],另一方面, Cd 是磷肥等无机肥中含量较高的重金属^[16],因此,第二主成分可能是饲料添加剂的作用,也可能是有机肥生产中添加磷肥的作用。由表 5 可知,华北地区饲料中 Cd 和 As 的平均值较低,分别为 0.024、0.647 mg/kg,远低于标准值,对有机肥污染贡献较低,因此,可将第二主成分归结为磷肥添加的作用。与国外相比,中国针对有机肥重金属的限量和相关标准非常少^[18-20],目前仅制定了有机肥行业标准,对 Cd 的限量指标为 3 mg/kg,是德国腐熟堆肥标准的 2 倍。加之有机肥生产过程中易出现存在养分不足、不易达到相关养分标准等问题,很多地方和企业生产的有机肥中添加一定的化肥,以提高养分,从而导致有机肥中重金属出现污染风险。解决这一问题的根本在于积极制定有机肥相关限量标准,对有机肥生产过程及产品进行严格约束,才能杜绝磷肥等无机成分的加入。第三主成分的贡献率为 13.0%, Cu、Zn 在主成分 3 中的载荷分别为 0.675、0.856, Cu、Zn 是养殖场重要的饲料添加剂组成成分^[17]。同时,从表 5 可以看出,华北地区饲料中 Cu、Zn 平均值远高于标准值,存在较严重的污染现象,这也就验证了为高 Cu、高 Zn 饲料添加剂的使用是有机肥重金属的重要来源。可以看出,饲料中重金属的添加是影响商品有机肥中重金属含量的重要因素,饲料与有机肥中重金属含量的相关性分析结果表明(表 6),除 Ni 和 As 外,其余重金属在有机肥中的含量均与饲料中的含量呈显著正相关,这也验证了饲料添加剂是商品有机肥中重金属的重要来源。从主成分分析结果可以看出,其他成分仍可以解释总变量的 35.7%,说明商品有机肥中的重金属还存在其他来源。粘结剂是商品有机肥生产中的必要添加物质,常用的粘结剂主要为凹凸棒、膨润土和磷石膏等^[21-22]。研究表明,这些粘结剂中均含有重金属^[23-25],因此,粘结剂的添加可能是商品有机肥中重金属的来源之一。除此之外,与有机肥生产过程中有关的环境因素(包括大气降尘、交通污染)以及土壤中重金属的本底值^[26]可能会影响商品有机肥中重金属的含量,然而,目前还没有相关报道,需进一步研究探讨。

表 5 华北地区饲料中各重金属含量情况

Table 5 Heavy metal contents of animal feed in North China

重金属 Heavy metal	平均值 Average content (mg·kg ⁻¹)	标准偏差 Standard deviation	变异系数 Variation coefficient/%	相关标准 Relevant standard (mg·kg ⁻¹)
Cd	0.024	0.026	105	0.5
Cr	13.89	20.097	145	10
Cu	87.027	106.636	123	35
Pb	6.317	7.773	123	5
Zn	297.902	544.302	183	150
Ni	2.997	3.005	100	-
As	0.647	1.774	274	-
Hg	0.012	0.022	184	-

表 6 商品有机肥与饲料中重金属相关性分析

Table 6 Correlation of heavy metal between feed and organic fertilizer

重金属 Heavy metal	与饲料的相关性分析 Correlation between feed and organic fertilizer	
	<i>r</i>	<i>P</i>
Cd	0.560*	0.042
Cr	0.614*	0.02
Cu	0.709**	0
Pb	0.798**	0
Zn	0.777**	0
Ni	0.036	0.871
As	0.214	0.139
Hg	0.537*	0.022

3 结 论

华北农产品产地商品有机肥中重金属 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn、Ni、As、Hg 的平均值分别为 0.21、45.42、69.22、87.40、274.58、16.50、3.21、0.33 mg/kg。按照中国有机肥行业标准, Pb 的超标率高达 80.56%, 其他不超标; 按照德国腐熟堆肥标准, 大部分超标, 其中 Cu、Pb、Zn、Hg 的超标率高于 10%, Cr、Ni 的超标率低于 10%, Cd 不超标。

8 种重金属通过主成分分析可以得到 3 个主成分, 可以解释总变量的 64.3%, 可能分别代表高 Pb、高 Hg 饲料添加剂的使用, 磷肥的添加, 高 Cu、高 Zn 饲料添加剂的使用, 其贡献率分别为 34.7%、16.6%、13.0%。因此, 影响华北农产品产地商品有机肥重金属来源的主要因素为高 Pb、高 Hg 饲料添加剂的使用。同时, 饲料中重金属含量的测定结果进一步证实了上述主要来源的观点。

[参 考 文 献]

- [1] 唐翔宇, 朱永官. 土壤中重金属对人体生物有效性的体外试验评估[J]. 环境与健康杂志, 2004, 21(3): 183—185. Tang Xiangyu, Zhu Yongguan. Advances in in vitro tests in evaluating bioavailability of heavy metals in contaminated soil via oral intake[J]. Journal of Environment and Health, 2004, 21(3): 183—185. (in Chinese with English abstract)

- [2] 刘荣乐, 李书田, 王秀斌, 等. 我国商品有机肥料和有机废弃物中重金属的含量状况与分析[J]. 农业环境科学学报, 2005, 24(2): 392—397.
Liu Rongle, Li Shutian, Wang Xiubo, et al. Contents of heavy metal in commercial organic fertilizer and organic wastes[J]. Journal of Agro-environmental Sciences, 2005, 24(2): 392—397. (in Chinese with English abstract)
- [3] 陈苗, 崔岩山. 畜禽固废沼肥中重金属来源及其生物有效性研究进展[J]. 土壤通报, 2012, 43(1): 249—255.
Chen Miao, Cui Yanshan. A review on the resource and bioavailability of heavy metals in biogas fertilizer from the manure of livestock[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2012, 43(1): 249—255. (in Chinese with English abstract)
- [4] 程旭艳, 王定美, 乔玉辉. 中国商品有机肥重金属分析[J]. 环境污染与防治, 2012, 34(2): 72—76.
Cheng Xuyan, Wang Dingmei, Qiao Yuhui. Analyze on the heavy metals content in China commodity organic fertilizer [J]. Environmental Pollution and Control, 2012, 34(2): 72—76. (in Chinese with English abstract)
- [5] W X Liu, X D Li, Z G Shen, et al. Multivariate statistical study of heavy metal enrichment in sediments of the Pearl River Estuary[J]. Environmental Pollution, 2003, 121(3): 377—388.
- [6] 赵彦锋, 郭恒亮, 孙志英, 等. 基于土壤学知识的主成分分析判断土壤重金属来源[J]. 地理科学, 2008, 28(1): 45—50.
Zhao Yanfeng, Guo Hengliang, Sun Zhiying, et al. Principle component analyses based on soil knowledge as a tool to indicate origin of heavy metals in soils[J]. Scientia Geographica Sinica, 2008, 28(1): 45—50. (in Chinese with English abstract)
- [7] 刘峰, 胡继伟, 秦樊鑫, 等. 红枫湖沉积物中重金属元素溯源分析的初步探讨[J]. 环境科学学报, 2010, 30(9): 1871—1879.
Liu Feng, Hu Jiwei, Qin Fanxin, et al. An assessment of heavy metal contamination sources in sediments from Hongfeng Lake[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2010, 30(9): 1871—1879. (in Chinese with English abstract)
- [8] 杨忠平, 卢文喜, 刘新荣, 等. 长春市城市近地表灰尘重金属污染源解析[J]. 干旱区资源与环境, 2010, 24(12): 155—160.
Yang Zhongping, Lu Wenxi, Liu Xinrong et al. Heavy metal identification for near-surface urban dust in Changchun city[J]. Journal of Arid Land Resources and Environment, 2010, 24(12): 155—160. (in Chinese with English abstract)
- [9] 谭晓冬, 董文光. 商品有机肥中重金属含量状况调查[J]. 农业环境与发展, 2006 (1): 50—51.
Tan Xiaodong, Dong Wenguang. Survey of heavy metals in organic fertilizer[J]. Agro-Environment and Development, 2006(1): 50—51. (in Chinese with English abstract)
- [10] 谭科艳, 刘晓端, 汤奇峰, 等. 华北平原土壤环境重金属元素分布规律及其意义[J]. 地球学报, 2011, 32(6): 732—738.
Tan Keyan, Liu Xiaoduan, Tang Qifeng, et al. Distribution regularity of heavy metals in north China plain and its significance[J]. Acta Geoscientica Sinica, 2011, 32(6): 732—738. (in Chinese with English abstract)
- [11] 周振民, 杨明庆, 吴昊. 华北地区农业合理灌溉与节水措施对策研究[J]. 沈阳农业大学学报, 2004, 35(5/6): 558—560.
Zhou Zhenmin, Yang Mingqing, Wu Hao. Reasonable Irrigation and Water Saving Measures in North China[J]. Journal of Shenyang Agricultural University, 2004, 35(5/6): 558—560. (in Chinese with English abstract)
- [12] 李艳. 双道氢化物发生原子荧光光谱法同时测定土壤中的砷和汞[J]. 农业环境与发展, 2004, 22(1): 41—42.
Li Yan. Simultaneous determination of mercury and arsenic in soils by double channel atomic fluorescence spectrometry with hydride generation technique[J]. Agro-environment and Development, 2004, 22(1): 41—42. (in Chinese with English abstract)
- [13] LEE C S, L I X D, SH IW Z M, et al. Contamination in urban, suburban, and country park soils of Hong Kong: A study based on GIS and multivariate statistics[J]. Science of the Total Environment, 2006, 356(1/3): 45—61.
- [14] NY525-2011, 有机肥料[S].
- [15] Verdonck O, Szmids RAK. Compost Specifications[J]. Acta Horticulture, 1998, 469: 169—177.
- [16] 陈林华, 倪吾钟, 李雪莲, 等. 常用肥料重金属含量的调查分析[J]. 浙江理工大学学报, 2009, 26(2): 223—227.
Chen Linhua, Ni Wuzhong, Li Xuelian, et al. Investigation of heavy metal concentrations in commercial fertilizers commonly used[J]. Journal of Zhejiang Sci-Tech University, 2009, 26(2): 223—227. (in Chinese with English abstract)
- [17] 潘寻, 韩哲, 贲伟伟. 山东省规模化猪场猪粪及配合饲料中重金属含量研究[J]. 农业环境科学学报, 2013, 32(1): 160—165.
Pan Xun, Han Zhe, Ben Weiwei. Heavy metal contents in pig manure and pig feeds from intensive pig farms in shandong province, China[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2013, 32(1): 160—165. (in Chinese with English abstract)
- [18] 李书田, 刘荣乐. 国内外关于有机肥料中重金属安全限量标准的现状与分析[J]. 农业环境科学学报, 2006, 25(增刊): 777—782.
Li Shutian, Liu Rongle. Establishment and evaluation for maximum permissible concentrations of heavy metals in biosolid wastes as organic manure[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2006, 25(Suppl): 777—782. (in Chinese with English abstract)
- [19] Han J, Kim K, Kim H, et al. Evaluation of maturity parameters and heavy metal contents in composts made from animal manure[J]. Waste Management, 2008, 28(5): 813—820.
- [20] Quan C, Ce M, Qi W, et al. Concentration and speciation of heavy metals in six different sewage sludge-composts[J]. Journal of Hazardous Materials, 2007, 147(3): 1063—1072.
- [21] 窦富根, 邹数, 史吉平, 等. 二次加工的复混肥的发展趋势及造粒新技术[J]. 土壤肥料, 1999(2): 3—5, 33.
Dou Fugen, Zou Shu, Shi Jiping, et al. Development trend of mixed fertilizer and new technology of granulation[J]. Soil Fertilizer, 1999(2): 3—5, 33. (in Chinese with English abstract)
- [22] 李彦明. 新型堆肥有机复混肥造粒粘结剂的研制与应用[D]. 北京: 中国农业大学, 2005.
Li Yanming. Development and Application of New Type Granulation Binder for Organic Compound Fertilizer Based Compost[D]. Beijing: Chinese University of Agriculture, 2005. (in Chinese with English abstract)
- [23] 吴维辉, 何绮霞, 梁琳. 饲料中使用膨润土应关注重金属含量[J]. 广东饲料, 2011, 20(7): 40—41.
Wu Weihui, He Qixia, Liang Lin. Heavy metal content

- should be concentrated when bentonite used in feed[J]. Guangdong Feed, 2011, 20(7): 40—41. (in Chinese with English abstract)
- [24] 王守红, 庄明明, 张家宏, 等. 凹凸棒土对生活污泥中重金属的钝化作用[J]. 江苏农业学报, 2011, 27(6): 1279—1283.
Wang Shouhong, Zhuang Mingming, Zhang Jiahong, et al. Passivation of heavy metals in sewage sludge by attapulgite[J]. Jiangsu Journal of Agriculture Science, 2011, 27(6): 1279—1283. (in Chinese with English abstract)
- [25] 王成宝, 崔云玲, 郭天文. 磷石膏的农业应用及其安全性评价[J]. 土壤通报, 2012, 41(2): 408—412.
Wang Chengbao, Cui Yunling, Guo Tianwen. Application of phosphogypsum in agriculture and its safety evaluation[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2012, 41(2): 408—412. (in Chinese with English abstract)
- [26] 刘永生. 华北平原土壤重金属元素空间自相关研究[D]. 北京: 中国地质大学, 2012.
Liu Yongsheng. Research on Heavy Metal Element Spatial Autocorrelation in North China Plain[D]. Beijing, China University of Geosciences, 2012. (in Chinese with English abstract)

Analysis of heavy metal contents and source tracing in organic fertilizer from livestock manure in North China

Wang Fei^{1,2,3}, Zhao Lixin^{1,4}, Shen Yujun^{1,4*}, Meng Haibo^{1,4}, Xiang Xin^{1,4}, Cheng Hongsheng^{1,4}, Luo Yu^{1,4}

(1. Chinese Academy of Agricultural Engineering, Beijing 100125, China; 2. Rural Energy & Environment Agency, Ministry of Agriculture, Beijing 100125, China; 3. Northwest A&F University, Yangling 712100, China; 4. Key Laboratory of Energy Resource Utilization From Agriculture Residue, Ministry of Agriculture, Beijing 100125, China)

Abstract: At present, commercial organic fertilizer in China generally exists a problem that heavy metal content exceeds standard limitation. In this study, we took the main field for agricultural products in North China as the research scope. In order to get the situation of heavy metal pollution of commercial organic fertilizer in North China, we investigated and analyzed the commercial organic fertilizer samplings. By using method of principal component analysis, we present a preliminary discussion of the heavy metal sources. We are also clear about an important factor affecting the heavy metal contamination of organic fertilizer products in North China. The results showed that the average content of heavy metal Cd, Cr, Cu, Pb, Zn, Ni, As, Hg in commercial organic fertilizer used by agricultural products producing area in North China were 0.21、45.42、69.22、87.40、274.58、16.50、3.21、0.33 mg/kg. According to the China's organic fertilizer industry standard, the content of Pb exceeded the rate of up to 80.56%, the rest of the heavy metal content is not ovenproof. However, according to the German rotten compost standards, most of the heavy metal content exceeds standard limitation, the content of Cr, Cu, Pb, Zn, Ni, Hg exceeds the rate of 8.33%, 13.89%, 16.67%, 19.44%, 2.78% and 11.11% respectively, yet the content of Cd is not ovenproof. The results of principal component analysis showed that the contribution rates of the first three principal components were 34.7%, 16.6%, 13.0%, which can explain 64.3% of total variables and reflected most of the original data information. Combining with the characteristics of raw materials of commercial organic fertilizer and process analysis, we find that the major source of heavy metal pollution in commercial organic fertilizer in the agricultural regions of North China can be feed additives with high content of Pb, Hg, additives with phosphate fertilizer, and feed additives with high content of Cu, Zn. Meanwhile, the average content of heavy metal Cd, Cr, Cu, Pb, Zn, Ni, As, Hg in farm feed used by agricultural products producing area in North China were 0.02, 13.89, 87.027, 6.32, 297.90, 23.00, 0.65, 0.01mg kg⁻¹. Furthermore, correlation analysis of heavy metal content in the feed and organic fertilizer results showed that, the contents of most of heavy metal in the fertilizer had significant positive correlation with their contents in the feed except Ni and As. This determination results confirmed the above view of the main sources of heavy metals. However, from the result of principal component analysis, other components can still explain 35.7% of the total variable, which indicated that there were other sources of heavy metals in organic fertilizer. Binder is a necessary add material in commercial organic fertilizer production which conclude attapulgite, bentonite, and phosphogypsum. Studies have shown that the common binder contained higher heavy metal. Therefore, binder may be one of the sources of heavy metal in organic fertilizer. In addition, the environmental factors such as atmospheric dust fall and traffic pollution related to the organic fertilizer production process and the background values of heavy metals in the soil may affect the heavy metal contents of organic fertilizer, which needs to be further studied.

Key words: fertilizers, heavy metals, principal component analysis, organic fertilizer

(责任编辑: 张俊芳)