

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2019012401

袁丽娟, 郭孝培, 魏益华, 等. 赣南典型稀土矿区周边土壤和动植物产品中稀土元素组成特征及其健康风险评价[J]. 环境化学, 2019, 38(8): 1850-1863.

YUAN Lijuan, GUO Xiaopei, WEI Yihua, et al. Compositions and health risk assessment of rare-earth elements in soil, animal and plant products around rare earth mining area in Southern Jiangxi Province[J]. Environmental Chemistry, 2019, 38(8): 1850-1863.

## 赣南典型稀土矿区周边土壤和动植物产品中 稀土元素组成特征及其健康风险评价\*

袁丽娟 郭孝培 魏益华 涂田华 廖且根 张 莉 董秋洪\*\* 向建军

(江西省农业科学院农产品质量安全与标准研究所, 南昌, 330200)

**摘 要** 通过野外取样调查和室内 ICP-MS 测定, 研究了赣南典型稀土矿区周边土壤、动植物产品中稀土元素的组成特征, 并评价了稀土元素对人体的健康风险. 结果表明, 赣南稀土矿区周边土壤稀土平均含量为  $402.74 \pm 200.03 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ , 分别是全国土壤稀土含量均值及世界土壤稀土中值的 2.28 倍和 2.08 倍; 植物产品稀土平均含量为  $343.48 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ; 动物产品稀土平均含量为  $460.00 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ; 土壤、植物产品和动物产品中 Ce 含量最高, 占总稀土比重分别为 34.22%、35.31% 和 62.95%; 其中轻稀土元素所占比重分别为 75.29%、75.17% 和 75.82%. 当地居民每日通过动植物产品摄入稀土元素日量为  $3.95 \sim 30.49 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ , 均值为  $10.36 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ , 均远低于稀土元素对人体亚临床损害剂量的临界值 ( $110 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ ), 表明赣南矿区周边动植物产品中稀土元素不会对消费者产生健康风险.

**关键词** 稀土元素, 土壤, 动植物产品, 稀土矿区, 健康风险评价, 赣南.

## Compositions and health risk assessment of rare-earth elements in soil, animal and plant products around rare earth mining area in Southern Jiangxi Province

YUAN Lijuan GUO Xiaopei WEI Yihua TU Tianhua LIAO Qiegen ZHANG Li  
DONG Qihong\*\* XIANG Jianjun

(Institute for Quality & Safety and Standards of Agricultural Products Research,  
Jiangxi Academy of Agricultural Sciences, Nanchang, 330200, China)

**Abstract:** The composition characteristics and human health risks of rare earth elements (REEs) in soil, plant products and animal products from rare earth mining area in southern Jiangxi Province were examined by using Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (ICP-MS). Results showed that the average concentration of REEs in soil around the rare earth mining area was  $402.74 \pm 200.03 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ , and 2.28 and 2.08 folds that of the average value of REEs in soil from China and the median value of REEs in soil all over the world, respectively. Average concentrations of REEs in plant and animal products were  $343.48 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$  and  $460.00 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ , respectively. The content of Ce in soil, plant and animal products the highest, accounting for 34.22%, 35.31% and 62.95% of the total REEs, respectively. The ratios of light REEs to total REEs in soil, plant and animal

2019 年 1 月 24 日收稿 (Received: January 24, 2019).

\* 江西省农业科学院青年基金 (2016CQN010) 资助.

Supported by Youth Foundation of Jiangxi Academy of Agricultural Sciences (2016CQN010).

\*\* 通讯联系人, Tel: 079187090294, E-mail: 460623649@qq.com

Corresponding author, Tel: 079187090294, E-mail: 460623649@qq.com

products around the rare earth mining area were 75.29%, 75.17% and 75.82%, respectively. The daily intake of REEs from agricultural products to local inhabitants varied between 3.95—30.49  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$  with the average value of 10.36  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ . These values were much lower than the critical value harmful to human health (110  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ), suggesting no human health risk of REEs in plant and animal products around rare earth mining area in Southern Jiangxi Province.

**Keywords:** rare earth elements, soils, plant and animal products, rare earth mining area, health risk assessment, Southern Jiangxi Province.

稀土元素(rare earth elements, REEs)通常指:镧(La)、铈(Ce)、镨(Pr)、钕(Nd)、钐(Sm)、铕(Eu)、钆(Gd)、铽(Tb)、镝(Dy)、钬(Ho)、铒(Er)、铥(Tm)、镱(Yb)、镱(Lu),及钪(Sc)和钇(Y)<sup>[1]</sup>,共 16 种元素;在自然界以氧化物或含氧酸盐矿物形式存在.稀土元素占地壳总量的0.0153%,通常以铈为最高(0.0046%),其次为钕(0.0028%)和镧(0.0018%).一般来说,稀土元素在地壳中的含量与铜、铅、锌不相上下,比锡、钴、银、汞等元素还多.REEs 化学性质活跃,有“工业维生素”之称,可广泛运用于机械制造、石油化工、农林牧业、航天航空及军事等多个领域<sup>[2-3]</sup>.

我国是稀土资源大国,稀土资源异常丰富,分布广,稀土矿物种类丰富且齐全,我国已探明的稀土储量占世界总储量的 23%,在全球稀土产量和消费量排行榜上名列第一位<sup>[4]</sup>.江西省是我国稀土的主要产区,自 1969 年在江西赣南地区发现稀土矿以来,开采的稀土量约为 25 万吨,占全国离子型稀土产销总量的 70%<sup>[5]</sup>.江西省赣南目前已探明的重稀土储量约 47 万吨,约占全国重稀土储量的三分之一左右.

上世纪末,江西境内的稀土矿的开采存在乱采、滥采等现象,由于稀土开采可能引发局部的环境污染,对人体健康带来潜在风险隐患.已有的研究表明,环境中 REEs 容易在农产品中富集,进而通过食物链进入人体从而威胁当地居民健康<sup>[6-7]</sup>.稀土环境污染及其对农产品和人体健康的生态风险已成为环境科学研究的热点之一.如,福建省长汀县稀土矿区井水中 REEs 的平均浓度是福州市饮用水的 119 倍<sup>[8]</sup>.研究表明,稀土摄食过量会损害大脑、免疫、心脏功能,加重肝肾负担,影响女性生殖功能及引发多种急性中毒现象等<sup>[9]</sup>.

已有大量的研究探讨了稀土元素在水、土壤和农产品中累积情况及产品安全性<sup>[10-13]</sup>,但是主要集中在福建、山东、龙南等<sup>[8,14-17]</sup>区域,而对江西省稀土产区动植物产品中稀土元素的累积特征和健康风险评价的研究较少.

本研究拟对江西龙南县、定南县、安远县与寻乌县稀土矿主产区周边土壤和动植物产品中稀土元素含量进行分析,探索土壤和动植物产品中稀土元素的组成特征,评估动植物产品中稀土元素对人体健康的影响,为保护稀土矿区周边环境安全和人体健康提供基础数据.

# 1 材料与方法(Materials and methods)

## 1.1 研究区概况

赣南是江西省的南大门,地处北纬 24°29′—27°09′,东经 113°54′—116°38′之间,是江西省(江西省简称“赣”)南部区域的地理简称,是江西省面积最大(39379.64 平方千米)、人口最多的设区市(由 3 区 14 县和 1 县级市组成).赣南钨与稀土资源丰富,是全国稀有金属产业基地和先进制造业基地,享有“世界橙乡”、“世界钨都”和“稀土王国”等美誉.赣南稀土矿区主要集中分布在龙南、寻乌、信丰、赣县、宁都、定南、安远和全南等地区,其中,龙南以高钇重稀土为主,寻乌以低钇轻稀土为主,其余六县则以中钇富钕型稀土为主.因此,本研究选择龙南县、定南县、寻乌县及安远县为研究区域.

## 1.2 主要试剂与仪器

试剂:铟、铈、铈多元素标准溶液(10.0  $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ )(GNM-M03024-2013)、稀土多元素标准溶液(100  $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ )(GSB04-1789-2004)、钪单元素标准溶液(1000  $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ )(GSB04-1750-2004),国家有色金属及电子材料分析测试中心;生物成分分析标准物质:芹菜(GBW10048)、土壤成分分析标准物质(GBW07402、GBW07407),地球物理地球化学勘查研究所;HClO<sub>4</sub>(GR 级),国药集团化学试剂有限公

司; $\text{HNO}_3$ (UPS 级)、 $\text{HF}$ (UPS 级)、 $\text{H}_2\text{O}_2$ (UPS 级)和  $\text{HCl}$ (UP 级),苏州晶瑞化学股份有限公司;实验用水为 Milli-Q 超纯水系统处理后的超纯水.

仪器:Milli-Q 超纯水系统为 Millipore 公司产品(马萨诸塞州,美国),电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS; 型号 Perkinelmer Elan DRC-e,马萨诸塞州,美国).

1.3 方法

1.3.1 样品采集与处理

采样时间为 2017 年 12 月,采样点位于赣南地区(龙南县、定南县、寻乌县及安远县)稀土矿区周边,共 48 个采样点(图 1),样品品种及地理位置的分布根据当地居民种植及养殖情况而定.由于赣南脐橙种植面积较大、经济效益较高,因此本文重点采集脐橙及脐橙种植土.

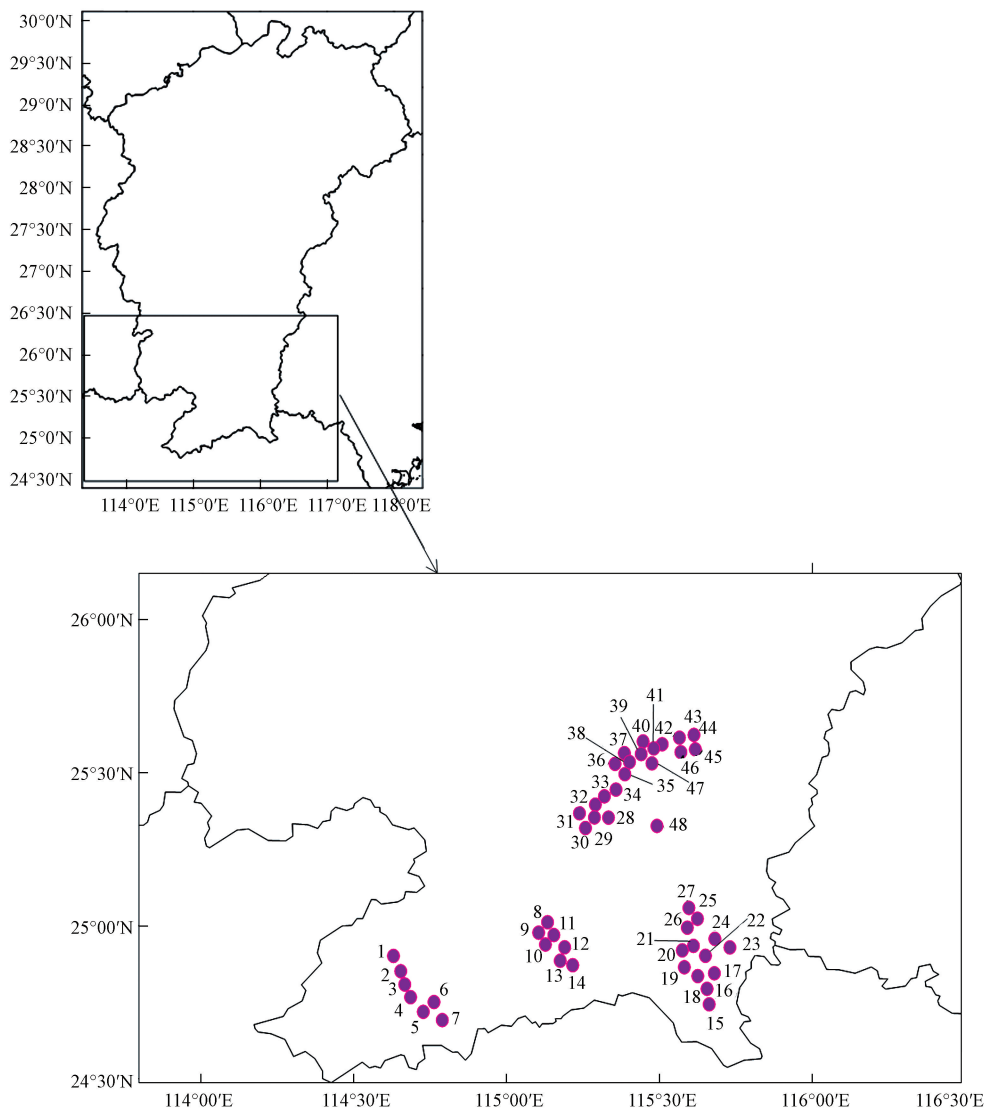


图 1 赣南地区采样点分布图

Fig.1 Locations of sampling sites in Southern Jiangxi

土壤样品:土壤样品用多点采样法混匀,共采集 125 份样品,分别采集脐橙、桔子、青菜、结球甘蓝、胡萝卜、大米耕层土壤(0—20 cm),将土壤样品经剔除砾石、碎根和生物残骸后自然晾干后用四分法混匀后取约 20 g 样品放于玛瑙研钵磨碎,并过 100 目尼龙筛,装入 8 号自封袋中,预处理后的样品于干燥器中保存待分析.

植物样品:植物样品均为当地居民自己种植的新鲜样品,共采集 125 份样品,水果样品每份 2 kg,其他样品均为每份 1 kg.包括脐橙 73 份、桔子 7 份、青菜 8 份、结球甘蓝 8 份、胡萝卜 8 份、大米 21 份.脐

橙、桔子取可食部分打碎匀浆,装入 8 号自封袋中,预处理后的样品于-20℃保存待分析;青菜、结球甘蓝、胡萝卜取可食部分用清水冲洗其表面黏附的土壤及灰尘后用去离子水洗净,用定量滤纸吸干水份,然后打碎匀浆,装入 8 号自封袋中,预处理后的样品于-20℃保存待分析;大米脱壳用不锈钢粉碎机中粉碎,装入 8 号自封袋中,预处理后的样品于干燥器中保存待分析。

动物样品:动物样品均为当地居民自己养殖,共采集 43 份样品,包括鸡蛋 19 份、鸡肉、鸡肝和鸡血各 8 份;鸡蛋样品打碎匀浆,装入 6 号自封袋中,预处理后的样品于-20℃保存待分析;现场宰杀鸡,取肉、肝和血,肉和肝打碎匀浆,装入 6 号自封袋中,预处理后的样品于-20℃保存待分析血样直接装入 50 mL 的离心管中,于-20℃保存待分析。

1.3.2 样品消解

土壤样品:准确称取 0.1 g (精确至 0.0001 g)左右土壤样品于 50 mL 聚四氟乙烯坩埚中,用水润湿后加入 5 mL HCl,于电热板上低温(120—140℃)消解,使样品初步分解,当溶液蒸发至约 2—3 mL 左右时,取下稍冷,然后再加入 5 mL HNO<sub>3</sub>、4 mL HF、2 mL HClO<sub>4</sub>,加盖后于电热板上 180℃加热 1 h,然后开盖,于 280℃高温加热除硅,并经常晃动坩埚,当加热至冒浓厚高氯酸白烟时加盖,使黑色有机碳化物充分分解。待坩埚上的黑色有机物消失后,开盖驱赶高氯酸白烟并蒸至内容物呈黏稠状。当白烟基本冒尽且坩埚内容物呈黏稠状时,取下稍冷,用水冲洗坩埚盖和内壁,并加入 1 mL 浓 HNO<sub>3</sub>温热溶解残渣。然后将溶液转移至 50 mL 容量瓶中,冷却后超纯水定容,摇匀备测。每个样品做 3 份平行,同时做空白实验,以土壤标准物质(GBW07402、GBW07407)来验证测定方法的准确性。

动植物样品:准确称取 1—3 g(精确至 0.0001 g)于 150 mL 锥形瓶中,加入 8 mL HNO<sub>3</sub>和 2 mL HClO<sub>4</sub>于通风橱内过夜,然后在电热板上 180℃加热消解,待样品黄烟冒净开始冒白烟时,在电热板上约 280℃赶酸至近干,冷却后加入 1 mL 浓 HNO<sub>3</sub>,然后将溶液转移至 50 mL 容量瓶中,冷却后用超纯水定容,摇匀备测。每个样品做 3 份平行,同时做空白实验,以芹菜标准物质(GBW10048)来验证测定方法的准确性。

1.3.3 稀土元素分析测定

电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)用 10 ng·mL<sup>-1</sup>调谐液(含 Ba、Cd、Ce、Cu、In、Mg、Pb、Rh 和 U 元素)对仪器工作参数进行优化。将 16 种稀土标准储备液用 5%(V/V)HNO<sub>3</sub>逐级稀释,最终配制成 0、1、2、4、8、10、20、40、80、100 ng·mL<sup>-1</sup>的标准工作溶液。在优化的仪器条件下,采取内标法测定稀土元素的标准工作溶液和样品溶液。

1.3.4 质量控制

所有样品测定在质量控制下进行,均进行平行样分析和标准物质测定。同时,每批实际样品前处理及仪器测定均带芹菜国家标准物质(GBW10048)或土壤标准物质(GBW07402、GBW07407),标准参考物的测定值在其定值范围内的同批样品检测值视为有效结果。芹菜和土壤中稀土元素的测定值与标准参考值见表 1。参考物质测定值均在参考含量值范围内,表明准确度高;平行样品的 RSD<10%,表明精密度高,符合质控要求。仪器检测限:Sc、Y、La、Ce、Pr 和 Nd 均为 0.02 μg·L<sup>-1</sup>;Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 和 Lu 均为 0.005 μg·L<sup>-1</sup>。

1.4 数据处理与分析

将实验测得的数据利用 SPSS 20.0 和 Excel 2003 进行统计分析;通过富集系数(农产品可食部分中稀土元素含量与土壤中稀土元素含量的比值)来分析元素在土壤—植物产品的迁移累积特征;低于检测限的值用 0 表示。

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 赣南稀土矿区周边土壤中稀土元素组成特征

赣南稀土矿区周边土壤中 16 种稀土元素质量浓度(mg·kg<sup>-1</sup>)的统计结果见表 2。由表 2 可知,赣南稀土矿区周边土壤中 Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 和 Lu 质量浓度范围分别为 1.27—71.76、8.26—475.05、12.75—251.07、43.45—465.45、2.31—57.21、8.01—205.90、1.64—41.18、

0.35—10.36、1.52—35.95、0.24—8.51、1.50—64.86、0.33—14.47、0.75—33.86、0.18—8.12、0.85—44.97、0.13—7.26 mg·kg<sup>-1</sup>；其相应的平均值分别为 10.70±10.21、55.30±75.15、69.35±43.11、137.82±73.26、18.02±10.65、63.75±39.51、12.51±9.03、1.76±1.58、8.80±7.16、1.48±1.39、9.57±9.95、2.06±2.26、4.42±4.78、1.01±1.20、5.35±6.56、0.83±1.04 mg·kg<sup>-1</sup>。Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 和 Lu 的空间变异系数分别为 95.39%、135.89%、62.17%、53.15%、59.09%、61.97%、72.14%、89.63%、81.42%、93.69%、104.01%、109.89%、108.07%、118.81%、122.58%和 125.92%，大部分稀土元素的变异系数均较大，这表明赣南稀土矿周边土壤中稀土空间分布不均匀，离散性较大。赣南稀土矿区周边土壤总稀土质量浓度范围为 107.51—1092.90 mg·kg<sup>-1</sup>，均值为 402.74±200.03 mg·kg<sup>-1</sup>。

表 1 土壤和芹菜标准参考物质重金属分析的 QA/QC 数据(n=3)

| 元素<br>Element | 芹菜 Celery<br>GBW10048/(μg·kg <sup>-1</sup> ) |                |       | 土壤 Soil<br>GBW07402/(mg·kg <sup>-1</sup> ) |                |       | 土壤 Soil<br>GBW07407/(mg·kg <sup>-1</sup> ) |                |       |
|---------------|----------------------------------------------|----------------|-------|--------------------------------------------|----------------|-------|--------------------------------------------|----------------|-------|
|               | 标准值                                          | 测定值            | RSD/% | 标准值                                        | 测定值            | RSD/% | 标准值                                        | 测定值            | RSD/% |
|               | Standard value                               | Measured value |       | Standard value                             | Measured value |       | Standard value                             | Measured value |       |
| Sc            | 160                                          | 156.09         | 8.86  | 10.7±0.6                                   | 10.38          | 2.61  | 28±2                                       | 27.77          | 9.81  |
| Y             | 350±80                                       | 333.16         | 5.22  | 22±2                                       | 21.76          | 5.08  | 27±4                                       | 27.31          | 4.32  |
| La            | 550±50                                       | 510.52         | 2.72  | 164±11                                     | 157.22         | 6.61  | 46±5                                       | 43.55          | 9.14  |
| Ce            | 1040±110                                     | 1021.52        | 2.49  | 402±16                                     | 395.93         | 2.13  | 98±11                                      | 104.59         | 3.08  |
| Pr            | 118±13                                       | 108.50         | 1.50  | 57±6                                       | 56.81          | 8.19  | 11±1                                       | 10.87          | 3.23  |
| Nd            | 470±80                                       | 452.60         | 3.90  | 210±14                                     | 209.28         | 5.93  | 45±2                                       | 45.21          | 2.78  |
| Sm            | 87±9                                         | 81.50          | 4.43  | 18±2                                       | 17.84          | 6.46  | 10.3±0.4                                   | 10.72          | 3.54  |
| Eu            | 20±2                                         | 19.16          | 3.27  | 3.0±0.2                                    | 3.10           | 3.38  | 3.4±0.2                                    | 3.46           | 2.38  |
| Gd            | 81±13                                        | 71.85          | 2.91  | 7.8±0.6                                    | 7.58           | 7.61  | 9.6±0.9                                    | 10.02          | 6.13  |
| Tb            | 12.6±2.6                                     | 10.99          | 3.49  | 0.97±0.26                                  | 1.01           | 9.29  | 1.3±0.2                                    | 1.43           | 9.37  |
| Dy            | 64±11                                        | 61.34          | 1.36  | 4.4±0.3                                    | 4.32           | 9.92  | 6.6±0.6                                    | 6.80           | 3.73  |
| Ho            | 12.4±1.3                                     | 11.82          | 6.45  | 0.93±0.12                                  | 0.92           | 5.38  | 1.1±0.2                                    | 0.96           | 1.19  |
| Er            | 30±4                                         | 27.09          | 7.06  | 2.1±0.4                                    | 2.17           | 5.69  | 2.7±0.5                                    | 2.49           | 7.42  |
| Tm            | 4.2±1.1                                      | 4.21           | 7.43  | 0.42±0.11                                  | 0.44           | 4.77  | 0.42±0.05                                  | 0.41           | 7.97  |
| Yb            | 29±7                                         | 25.77          | 9.24  | 2.0±0.2                                    | 1.96           | 3.22  | 2.8±0.2                                    | 2.42           | 7.70  |
| Lu            | 4.5±1.3                                      | 3.68           | 5.81  | 0.32±0.05                                  | 0.30           | 7.96  | 0.35±0.06                                  | 0.36           | 5.14  |

表 2 赣南稀土矿区周边土壤中稀土元素水平

| 元素<br>Element | 土壤 Soil/(mg·kg <sup>-1</sup> ) |               | 全国土壤均值<br>National average values<br>in soil/(mg·kg <sup>-1</sup> ) | 世界土壤中值<br>World average values<br>in soil/(mg·kg <sup>-1</sup> ) |
|---------------|--------------------------------|---------------|---------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------|
|               | 范围                             | 均值            |                                                                     |                                                                  |
|               | Range                          | Mean          |                                                                     |                                                                  |
| Sc            | 1.27—71.76                     | 10.70±10.21   | —                                                                   | —                                                                |
| Y             | 8.26—475.05                    | 55.30±75.15   | 21.8                                                                | 40                                                               |
| La            | 12.75—251.07                   | 69.35±43.11   | 37.4                                                                | 50                                                               |
| Ce            | 43.45—465.45                   | 137.82±73.26  | 64.7                                                                | 7                                                                |
| Pr            | 2.31—57.21                     | 18.02±10.65   | 6.67                                                                | 35                                                               |
| Nd            | 8.01—205.90                    | 63.75±39.51   | 25.1                                                                | 4.5                                                              |
| Sm            | 1.64—41.18                     | 12.51±9.03    | 4.94                                                                | 1                                                                |
| Eu            | 0.35—10.36                     | 1.76±1.58     | 0.98                                                                | 4                                                                |
| Gd            | 1.52—35.95                     | 8.80±7.16     | 4.38                                                                | 0.7                                                              |
| Tb            | 0.24—8.51                      | 1.48±1.39     | 0.58                                                                | 5                                                                |
| Dy            | 1.50—64.86                     | 9.57±9.95     | 3.93                                                                | 0.6                                                              |
| Ho            | 0.33—14.47                     | 2.06±2.26     | 0.83                                                                | 2                                                                |
| Er            | 0.75—33.86                     | 4.42±4.78     | 2.42                                                                | 0.6                                                              |
| Tm            | 0.18—8.12                      | 1.01±1.20     | 0.35                                                                | 3                                                                |
| Yb            | 0.85—44.97                     | 5.35±6.56     | 2.32                                                                | 0.4                                                              |
| Lu            | 0.13—7.26                      | 0.83±1.04     | 0.35                                                                | 40                                                               |
| Σ REE         | 107.51—1092.90                 | 402.74±200.03 | 176.8                                                               | 193.8                                                            |

与全国土壤中各稀土元素含量的平均值<sup>[18]</sup>及世界土壤中稀土元素含量的中值<sup>[18]</sup>进行比较(表2),赣南矿区周边土壤中稀土总量均高于全国土壤中稀土元素含量的平均值;赣南矿区土壤中稀土总量(402.74 mg·kg<sup>-1</sup>)高于云南省稀土元素背景值(236.3 mg·kg<sup>-1</sup>)、厦门市稀土元素背景值(235.6 mg·kg<sup>-1</sup>)、湖北省稀土元素背景值(223.5 mg·kg<sup>-1</sup>)、贵州省稀土元素背景值(221.9 mg·kg<sup>-1</sup>)、江西省稀土元素背景值(211.0 mg·kg<sup>-1</sup>)、天津市稀土元素背景值(207.6 mg·kg<sup>-1</sup>)和广西省稀土元素背景值(202.1 mg·kg<sup>-1</sup>)<sup>[19]</sup>等高稀土分布区;赣南矿区土壤中除稀土元素 Pr、Eu、Tb、Tm 和 Lu 低于世界土壤中稀土元素含量的中值外,其余稀土元素与稀土总量均高于世界土壤中稀土元素含量的中值.此外,原子序数为偶数的稀土元素含量均比相邻的两个原子序数为奇数的元素含量高,表明矿区土壤中稀土元素含量的变化遵循偶-奇规则,即奥多-哈金斯规则<sup>[20]</sup>,这与余江等<sup>[18]</sup>的研究结果一致.与国内外其他地区相比,见表3,赣南地区土壤中总稀土含量平均值低于龙南县,但高于表中所列其他地区总稀土平均值,特别是赣南地区总稀土最小值高于波兰 Kielce 地区总稀土含量的最大值.

表3 赣南稀土矿区周边土壤稀土含量与国内外其他地区土壤中的比较

| Table 3 Comparison of REEs concentrations in soil from Southern Jiangxi Province with from other areas |                                    |                                   |                    |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------|-----------------------------------|--------------------|
| 研究区域<br>Regions                                                                                        | 范围<br>Range/(mg·kg <sup>-1</sup> ) | 均值<br>Mean/(mg·kg <sup>-1</sup> ) | 参考文献<br>References |
| 赣南地区 Southern Jiangxi                                                                                  | 107.51—1092.90                     | 402.74±200.03                     | 本研究 Present study  |
| 长汀县 Changting County                                                                                   | 135.85—327.56                      | 242.92±68.98                      | [8]                |
| 龙南县 Longnan County                                                                                     | 538.73—1625.76                     | 976.94                            | [15]               |
| 包头市 Baotou City                                                                                        | 40.14—3679.13                      | 284.07                            | [21]               |
| 澧县 Li County                                                                                           | 152.23—338.86                      | 219.87                            | [22]               |
| 波兰 Kielce, Poland                                                                                      | 34.11—93.09                        | —                                 | [23]               |
| 德国 Nidda catchment, Germany                                                                            | 41.50—544.20                       | 201.10                            | [24]               |
| 北马其顿 Kocani, Macedonia                                                                                 | 106.40—244.39                      | 173.54                            | [25]               |

赣南稀土矿区周边土壤中稀土元素 Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 和 Lu 组成分别为 2.66%、13.73%、17.22%、34.22%、4.47%、15.83%、3.11%、0.44%、2.18%、0.37%、2.38%、0.51%、1.10%、0.25%、1.33%和 0.21%,其中,轻、重稀土所占比重分别为 75.29%和 22.06%,主要成分为 Y、La、Ce 和 Nd,占总含量的 81.00%.

已有的研究表明赣南稀土开采和冶炼采用原地浸矿工艺技术,浸矿剂的大量使用,使得浸矿废水中稀土浓度较高,而含有较高浓度稀土元素的浸矿废水向低海拔区域或垂直方向发生迁移,导致矿区下游区域土壤中稀土元素不断富集<sup>[26]</sup>,另一方面浸矿剂在随淋滤水迁移的过程中将残留的稀土元素或将下游矿体中的稀土带入到河沟溪水中,导致矿区周边河流中稀土元素浓度偏高<sup>[15]</sup>.土壤中轻、重稀土元素所占比重不同主要由于重稀土元素的水迁移能力强于轻稀土所致<sup>[27]</sup>.

2.2 赣南稀土矿区周边植物产品中稀土元素组成特征

赣南稀土矿区植物产品中 16 种稀土元素(Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 和 Lu)含量如表4所示,从表4可知,脐橙中 16 种稀土元素平均值分别为 14.35、5.45、32.92、47.75、2.50、8.07、0.75、0.65、1.20、0.11、0.44、0.09、0.24、0.02、0.11、0.04 μg·kg<sup>-1</sup>,总稀土质量浓度平均值为 114.69 μg·kg<sup>-1</sup>;桔子中 16 种稀土元素平均值分别为 20.55、0.00、18.70、54.65、2.33、8.31、0.98、0.12、0.70、0.14、0.00、0.00、0.00、0.00、0.00、0.05 μg·kg<sup>-1</sup>,总稀土质量浓度平均值为 106.53 μg·kg<sup>-1</sup>;青菜中 16 种稀土元素平均值分别为 23.68、203.59、272.79、376.46、47.07、178.45、26.04、4.60、35.75、5.05、25.67、6.26、15.90、1.82、15.12、2.22 μg·kg<sup>-1</sup>,总稀土质量浓度平均值为 1240.47 μg·kg<sup>-1</sup>;结球甘蓝中 16 种稀土元素平均值分别为 23.52、152.41、360.96、501.11、42.48、161.61、18.83、4.50、30.08、3.64、17.73、4.63、9.99、1.05、8.76、1.39 μg·kg<sup>-1</sup>,总稀土质量浓度平均值为 1342.69 μg·kg<sup>-1</sup>;胡萝卜中 16 种稀土元素平均值分别为 23.29、30.17、132.19、145.04、17.27、64.08、8.02、2.67、10.48、1.16、4.58、1.21、2.86、0.32、1.82、0.25 μg·kg<sup>-1</sup>,总稀土质量浓度平均值为 445.41 μg·kg<sup>-1</sup>;大米中 16 种稀土元素平均值分别为 64.67、78.29、170.02、276.27、22.19、91.58、25.86、3.27、22.95、4.66、22.08、4.14、14.70、1.65、11.96、1.94 μg·kg<sup>-1</sup>,

总稀土质量浓度平均值为  $816.23\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ; 植物产品中 16 种稀土元素平均值分别为 25.28、33.95、80.38、121.30、9.82、37.69、7.57、1.47、8.08、1.38、6.51、1.33、4.19、0.47、3.49、0.57  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ , 总稀土质量浓度平均值为  $343.48\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ .

表 4 赣南稀土矿区周边植物样品中稀土元素水平 ( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ , 鲜重)  
Table 4 Concentrations of REEs in plant samples around rare earth mining area  
in Southern Jiangxi Province ( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ , fresh weight)

| 元素<br>Element | 脐橙<br>Navel orange | 桔子<br>Orange | 青菜<br>Pakchoi | 结球甘蓝<br>Cabbage | 胡萝卜<br>Carrot | 大米<br>Rice | 植物样品<br>Plant samples |
|---------------|--------------------|--------------|---------------|-----------------|---------------|------------|-----------------------|
| Sc            | 14.35              | 20.55        | 23.68         | 23.52           | 23.29         | 64.67      | 25.28                 |
| Y             | 5.45               | 0.00         | 203.59        | 152.41          | 30.17         | 78.29      | 33.95                 |
| La            | 32.92              | 18.70        | 272.79        | 360.96          | 132.19        | 170.02     | 80.38                 |
| Ce            | 47.75              | 54.65        | 376.46        | 501.11          | 145.04        | 276.27     | 121.30                |
| Pr            | 2.50               | 2.33         | 47.07         | 42.48           | 17.27         | 22.19      | 9.82                  |
| Nd            | 8.07               | 8.31         | 178.45        | 161.61          | 64.08         | 91.58      | 37.69                 |
| Sm            | 0.75               | 0.98         | 26.04         | 18.83           | 8.02          | 25.86      | 7.57                  |
| Eu            | 0.65               | 0.12         | 4.60          | 4.50            | 2.67          | 3.27       | 1.47                  |
| Gd            | 1.20               | 0.70         | 35.75         | 30.08           | 10.48         | 22.95      | 8.08                  |
| Tb            | 0.11               | 0.14         | 5.05          | 3.64            | 1.16          | 4.66       | 1.38                  |
| Dy            | 0.44               | 0.00         | 25.67         | 17.73           | 4.58          | 22.08      | 6.51                  |
| Ho            | 0.09               | 0.00         | 6.26          | 4.63            | 1.21          | 4.14       | 1.33                  |
| Er            | 0.24               | 0.00         | 15.90         | 9.99            | 2.86          | 14.70      | 4.19                  |
| Tm            | 0.02               | 0.00         | 1.82          | 1.05            | 0.32          | 1.65       | 0.47                  |
| Yb            | 0.11               | 0.00         | 15.12         | 8.76            | 1.82          | 11.96      | 3.49                  |
| Lu            | 0.04               | 0.05         | 2.22          | 1.39            | 0.25          | 1.94       | 0.57                  |
| Σ REE         | 114.69             | 106.53       | 1240.47       | 1342.69         | 445.41        | 816.23     | 343.48                |

与赣南不同时期相比,本研究中脐橙稀土总含量低于 2009 年余江等<sup>[18]</sup>研究结果( $215.3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ),这可能是赣南地区脐橙种植品种和年限<sup>[28]</sup>的差异所致.同时,采样点不同也是一个原因,余江等<sup>[18]</sup>研究中采样点为赣南某个稀土矿区,而本研究采样点涵盖了龙南、定南、寻乌和安远等 4 个地区;与厦门地区脐橙中稀土元素含量相比,赣南地区脐橙中稀土元素总量的平均值略低于厦门脐橙稀土元素总含量( $130.8\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ )<sup>[18]</sup>.庄茂强等<sup>[29]</sup>调查的山东省某轻稀土矿区水果中总稀土元素平均含量为  $142.5\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,高于本研究中脐橙稀土元素总量的平均值.本研究中赣南地区脐橙中稀土元素总量的平均值与汪振立等<sup>[30]</sup>对赣南脐橙稀土元素总量的平均值( $55.78\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ )相比要高;同时高于周蕊等<sup>[31]</sup>对中国总膳食研究水果中稀土元素总量的平均值( $22.7\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ).本研究中大米、蔬菜中稀土元素总量的平均值也高于周蕊等对中国总膳食研究谷类( $16.7\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ )、蔬菜( $45.8\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ )中稀土元素总量的平均值.李延升等<sup>[32]</sup>对沈阳市售蔬菜、粮食、水果中 16 种稀土元素检测分析,含量分别为 60.1、26.8、16.8  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,均低于本研究.

李小飞等<sup>[8]</sup>对福建省长汀县矿区蔬菜中的稀土元素含量进行了调查研究,发现空心菜、上海青、大白菜、生菜和萝卜的稀土平均含量分别为:6.121、0.713、0.197、0.726、0.199  $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;另一项调查结果为福建省某矿区花菜中稀土元素平均含量为 0.32  $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,卷心菜平均含量为 0.55  $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,龙眼稀土平均含量为 0.24  $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ <sup>[33]</sup>;褚遵华等<sup>[14]</sup>对山东省某轻稀土矿区的调查结果为:5 类矿区蔬菜样品中叶菜类平均含量为  $5611.94\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、根菜类平均含量为  $3259.72\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、茄果类平均含量为  $109.88\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、瓜果类平均含量为  $79.68\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 、豆类平均含量为  $140.40\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;金姝兰等<sup>[15]</sup>对江西省龙南县稀土矿区的调查结果为小白菜和萝卜的富集系数最大为 0.20 和 0.16,稀土平均含量分别为  $78.57\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$  和  $36.58\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,结球甘蓝平均含量为  $14.50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ .大米平均含量为  $1.04\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ .

农作物的稀土含量受不同作物品种、土壤、水体稀土含量及耕种方式影响较大.稀土矿区周边土壤中稀土总量最高值为  $1092.90\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,均值为  $402.74\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$  远高于全国土壤平均值( $176.8\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ )

及世界土壤中值(193.8 mg·kg<sup>-1</sup>).本研究中,矿区周边植物产品稀土元素含量存在较大的差别,6种植物产品脐橙、桔子、青菜、结球甘蓝、胡萝卜和大米中稀土元素总量的均值分别为 114.69、106.53、1240.47、1342.69、445.41、816.23 μg·kg<sup>-1</sup>;稀土总量表现为叶菜类>谷类>根菜类>水果类.叶菜类蔬菜中稀土元素含量较高,如结球甘蓝和青菜的稀土元素总含量分别为 1342.70 μg·kg<sup>-1</sup>和 1240.49 μg·kg<sup>-1</sup>比一般农作物的正常稀土元素含量(0.1—12 μg·kg<sup>-1</sup>)要高得多,其它农产品稀土总量也高于一般农作物的正常稀土元素含量.其他相似的研究也显示不同的农作物稀土元素含量差异很大,不同矿区农作物中稀土元素含量差别亦很大,说明作物品种、环境因素为影响农作物中稀土元素吸收累积的主要因素<sup>[15]</sup>.

赣南稀土矿区植物产品中 16 种稀土元素(Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 和 Lu)含量组成如图 2.从图 2 可知,脐橙中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 12.51%、4.75%、28.70%、41.63%、2.18%、7.04%、0.65%、0.57%、1.05%、0.10%、0.38%、0.08%、0.21%、0.02%、0.10%和 0.03%,其中轻、重稀土所占比重分别为 80.77%和 6.71%;主要成分为 Sc、Y、La、Ce 和 Nd,占总量的 94.63%;桔子中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 19.29%、0.00%、17.55%、51.30%、2.19%、7.80%、0.92%、0.11%、0.66%、0.13%、0.00%、0.00%、0.00%、0.00%、0.00%和 0.05%,其中轻、重稀土所占比重分别为 79.87%和 0.84%;主要成分为 Sc、La、Ce 和 Nd,占总量的 95.94%;青菜中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 1.91%、16.41%、21.99%、30.35%、3.79%、14.39%、2.10%、0.37%、2.88%、0.41%、2.07%、0.50%、1.28%、0.15%、1.22%和 0.18%,其中轻、重稀土所占比重分别为 72.99%和 25.10%;主要成分为 Y、La、Ce 和 Nd,占总量的 83.14%;结球甘蓝中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 1.75%、11.35%、26.88%、37.32%、3.17%、12.04%、1.40%、0.34%、2.24%、0.27%、1.32%、0.34%、0.74%、0.08%、0.65%和 0.11%,其中轻、重稀土所占比重分别为 81.14%和 17.11%;主要成分为 Y、La、Ce 和 Nd,占总量的 87.59%;胡萝卜中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 5.23%、6.77%、29.68%、32.56%、3.88%、14.39%、1.80%、0.60%、2.35%、0.26%、1.03%、0.27%、0.64%、0.07%、0.41%和 0.06%,其中轻、重稀土所占比重分别为 82.91%和 11.87%;主要成分为 Sc、Y、La、Ce 和 Nd,占总量的 88.63%;大米中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 7.92%、9.59%、20.83%、33.85%、2.72%、11.22%、3.17%、0.40%、2.81%、0.57%、2.70%、0.51%、1.80%、0.20%、1.47%和 0.24%,其中轻、重稀土所占比重分别为 72.18%和 19.89%;主要成分为 Sc、Y、La、Ce 和 Nd,占总量的 83.41%.

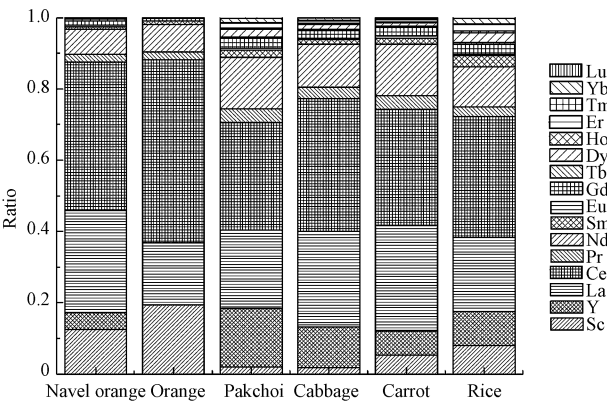


图 2 赣南稀土矿区周边植物产品中稀土元素的组成

Fig.2 Compositions of REEs in plant products around rare earth mining area in Southern Jiangxi Province

植物产品中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 7.36%、9.88%、23.40%、35.32%、2.86%、10.97%、2.20%、0.43%、2.35%、0.40%、1.90%、0.39%、1.22%、0.14%、1.02%和 0.17%,其中轻、重稀土所占比重分别为 75.17%和 17.47%;主要成分为 Sc、Y、La、Ce 和 Nd,占总量的 86.92%.由上述分析可知,虽然不同植物样品在稀土元素含量上存在差异,但其轻、重稀土所占比重基本相似,轻稀土所占比重为 80%左右,主要成分也基本相同,均为 Sc、Y、La、Ce 和 Nd.这是由于轻、中稀土比重稀土元素更易于被植物吸收<sup>[18]</sup>.植物样品中稀土元素 Ce 含量最高,含量第 2、第 3 高的稀土元素依次是 La 和 Nd,这与赣南稀土矿区周边土壤样品的主要元素的丰度相一致.

2.3 赣南稀土矿区周边动物产品中稀土元素组成特征

赣南稀土矿区动物产品中 16 种稀土元素 (Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 和 Lu) 含量如表 5 所示,从表 5 可知,鸡蛋中 16 种稀土元素平均值分别为 63.87、33.57、38.41、375.80、1.83、8.83、1.62、0.97、4.07、0.59、3.07、0.91、4.36、0.42、2.74、0.53  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,总稀土质量浓度平均值为 541.59  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;鸡肉中 16 种稀土元素平均值分别为 49.85、29.13、42.08、255.02、3.51、14.94、3.07、0.51、4.30、0.68、3.94、1.02、3.73、0.39、2.51、0.43  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,总稀土质量浓度平均值为 415.11  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;鸡肝中 16 种稀土元素平均值分别为 78.04、26.91、43.38、299.14、3.20、12.64、2.57、0.47、4.01、0.54、3.10、0.82、3.56、0.30、1.98、0.42  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,总稀土质量浓度平均值为 481.08  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;鸡血中 16 种稀土元素平均值为 56.53、37.97、60.98、80.47、1.18、6.94、1.45、0.73、3.20、0.61、3.93、1.12、3.31、0.45、2.87、0.56  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,总稀土质量浓度平均值为 262.3  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ;动物样品中 16 种稀土元素平均值分别为 62.61、32.40、43.87、289.56、2.25、10.24、2.01、0.76、3.95、0.60、3.38、0.95、3.93、0.40、2.59、0.50  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,总稀土质量浓度平均值为 460.00  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ .总稀土含量依次为鸡蛋>鸡肝>鸡肉>鸡血.

表 5 赣南稀土矿区周边动物样品中稀土元素水平 ( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ , 鲜重)  
Table 5 Concentrations of REEs in animal samples around rare earth mining area  
in Southern Jiangxi Province( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ , fresh weight)

| 元素<br>Element | 鸡蛋<br>Egg | 鸡肉<br>Chicken | 鸡肝<br>Chicken liver | 鸡血<br>Chicken blood | 动物样品<br>Animal samples |
|---------------|-----------|---------------|---------------------|---------------------|------------------------|
| Sc            | 63.87     | 49.85         | 78.04               | 56.53               | 62.61                  |
| Y             | 33.57     | 29.13         | 26.91               | 37.97               | 32.40                  |
| La            | 38.41     | 42.08         | 43.38               | 60.98               | 43.87                  |
| Ce            | 375.80    | 255.02        | 299.14              | 80.47               | 289.56                 |
| Pr            | 1.83      | 3.51          | 3.20                | 1.18                | 2.25                   |
| Nd            | 8.83      | 14.94         | 12.64               | 6.94                | 10.24                  |
| Sm            | 1.62      | 3.07          | 2.57                | 1.45                | 2.01                   |
| Eu            | 0.97      | 0.51          | 0.47                | 0.73                | 0.76                   |
| Gd            | 4.07      | 4.30          | 4.01                | 3.20                | 3.95                   |
| Tb            | 0.59      | 0.68          | 0.54                | 0.61                | 0.60                   |
| Dy            | 3.07      | 3.94          | 3.10                | 3.93                | 3.38                   |
| Ho            | 0.91      | 1.02          | 0.82                | 1.12                | 0.95                   |
| Er            | 4.36      | 3.73          | 3.56                | 3.31                | 3.93                   |
| Tm            | 0.42      | 0.39          | 0.30                | 0.45                | 0.40                   |
| Yb            | 2.74      | 2.51          | 1.98                | 2.87                | 2.59                   |
| Lu            | 0.53      | 0.43          | 0.42                | 0.56                | 0.50                   |
| $\Sigma$ REE  | 541.59    | 415.11        | 481.08              | 262.30              | 460.00                 |

周蕊等<sup>[31]</sup>通过对中国总膳食研究-膳食稀土元素的摄入量调查发现,肉类和蛋类稀土元素总量分别为 31.4  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 11.7  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,均远低于本研究中鸡肉(415.11  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ )、鸡蛋(541.59  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ )总稀土平均值.庄茂强等<sup>[29]</sup>调查的山东省某轻稀土矿区鸡蛋中总稀土元素平均含量为 4.32  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,低于本研究中鸡蛋稀土元素总量的平均值.李延升等<sup>[32]</sup>对沈阳市售畜禽肉中 16 种稀土元素检测分析,含量为 18.6  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,低于本研究鸡肉中总稀土元素含量.赵清荣等<sup>[34]</sup>对新疆市售肉和肝脏中稀土元素含量调查,发现肉类总稀土元素含量中位值为 8.58  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,肝脏中总稀土元素含量中位值为19.90  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,低于本研究鸡肉、肝脏中总稀土元素含量;含量高低表现为肝脏高于肉类,这与本研究结果一致.

赣南稀土矿区动物产品中 16 种稀土元素 (Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb 和 Lu) 含量百分比如图 3 所示,从图 3 可知,鸡蛋中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 11.79%、6.20%、7.09%、69.39%、0.34%、1.63%、0.30%、0.18%、0.75%、0.11%、0.57%、0.17%、0.80%、0.08%和 0.50%,其中轻、重稀土所占比重分别为 78.93%和 9.28%;主要成分为 Sc、Y、La 和 Ce,占总量的 94.45%;鸡肉中 16 种稀土元素含量分别占稀土总量的 12.01%、7.02%、10.14%、61.43%、0.85%、3.60%、0.74%、0.12%、1.04%、0.16%、0.95%、0.25%、0.90%、0.09%、0.60%和 0.10%,其中轻、重稀土所占比重分别为

76.88%和11.11%;主要成分为Sc、Y、La和Ce,占总量的90.60%;鸡肝中16种稀土元素含量分别占稀土总量的16.22%、5.59%、9.02%、62.19%、0.67%、2.63%、0.53%、0.10%、0.83%、0.11%、0.64%、0.17%、0.74%、0.06%、0.41%和0.09%,其中轻、重稀土所占比重分别为75.14%和8.64%;主要成分为Sc、Y、La和Ce,占总量的93.02%;鸡血中16种稀土元素含量分别占稀土总量的21.55%、14.48%、23.25%、30.68%、0.45%、2.65%、0.55%、0.28%、1.22%、0.23%、1.50%、0.43%、1.26%、0.17%、1.09%和0.21%,其中轻、重稀土所占比重分别为57.86%和20.59%;主要成分为Sc、Y、La和Ce,占总量的89.96%。

动物产品中16种稀土元素含量分别占稀土总量的13.60%、7.04%、9.54%、62.95%、0.49%、2.23%、0.44%、0.17%、0.86%、0.13%、0.73%、0.21%、0.85%、0.09%、0.56%和0.11%,其中轻、重稀土所占比重分别为75.82%和10.58%;主要成分为Sc、Y、La和Ce,占总量的93.13%。由上述分析可知,虽然不同动物产品在稀土元素含量上存在差异,但其轻、重稀土所占比重基本相似,除鸡血外轻稀土所占比重均在80%左右,主要成分也基本相同,均为Sc、Y、La和Ce,约占总量的90%。

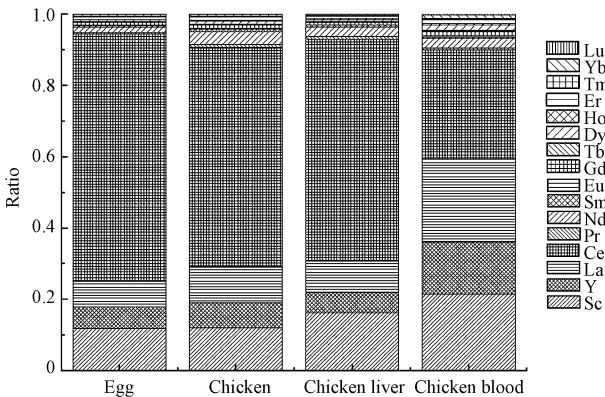


图3 赣南稀土矿区周边动物产品中稀土元素的组成  
Fig.3 Compositions of REEs in animal products around rare earth mining area in Southern Jiangxi Province

2.4 不同植物产品对稀土元素的富集规律

从表6可知,6种不同农作物的富集系数存在着显著差异,对不同农产品中稀土元素的富集系数从大到小依次为:青菜>结球甘蓝>胡萝卜>脐橙>桔子>大米。通过对6种农作物的富集系数进行聚类分析,可将其分为2类:第一类为富集系数最高的青菜和结球甘蓝;第二类为胡萝卜、脐橙、桔子和大米。有研究发现,结球甘蓝在稀土矿区对稀土元素的富集系数为0.04<sup>[8]</sup>,这与本研究发现的结球甘蓝在赣南稀土矿对稀土元素的富集系数(0.049)基本一致;有研究表明,空心菜对稀土元素的富集系数为0.0515<sup>[15]</sup>,本研究中青菜对稀土元素的富集系数为0.056;脐橙、桔子和大米对稀土元素的富集系数较低,这与其他研究者的结果相类似<sup>[15]</sup>。

表6 不同食物的水分含量  
Table 6 Water content in different foods

|                                           | 脐橙<br>Navel orange | 桔子<br>Orange      | 青菜<br>Pakchoi     | 结球甘蓝<br>Cabbage   | 胡萝卜<br>Carrot     | 大米<br>Rice        |
|-------------------------------------------|--------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| 含水率<br>Moisture content/%                 | 87.4 <sup>a</sup>  | 88.2 <sup>a</sup> | 94.5 <sup>a</sup> | 93.2 <sup>a</sup> | 89.2 <sup>a</sup> | 13.3 <sup>a</sup> |
| 富集系数范围<br>Range of bioaccumulation factor | 0.00026—0.011      | 0.0019—0.0027     | 0.015—0.18        | 0.023—0.079       | 0.0094—0.011      | 0.00050—0.0062    |
| 富集系数均值<br>Average bioaccumulation factor  | 0.0031±0.0019      | 0.0023±0.00043    | 0.056±0.062       | 0.049±0.028       | 0.010±0.0011      | 0.0018±0.0016     |
| 变异系数<br>Coefficient of variation/%        | 61.29              | 18.70             | 110.71            | 57.14             | 11.00             | 88.89             |

a., 参照 2017 年中国食物成分表.a., Cited from China food composition 2017.

不同农作物之间稀土元素含量的差异,不同品种富集系数差异较大,如青菜、结球甘蓝的最小富集系数均高于其他几种作物(图 4),说明一部分原因可能是农作物品种不同所致;从同一品种看,变异系数较大可知,表明另一个原因可能是农作物可食部分的生长介质不同而导致的.土壤中稀土元素经过植物吸收后向地上部转移,可食部分生长在土壤中的蔬菜直接从土壤中吸收稀土元素且不断地富集,可食部分在地上的蔬菜,其稀土含量主要取决于根部向地上部分转移量.有研究结果显示,一般是多叶绿色蔬菜的稀土元素含量较高,无叶或少叶的蔬菜含量较低,这种差异与蔬菜吸收重金属非常相似<sup>[14]</sup>.另一个对上市蔬菜中稀土元素含量的调查结果为:叶菜类>根菜类>果菜类<sup>[14]</sup>.本次研究中也发现了相似的规律.鉴于不同的蔬菜对稀土元素吸收能力具有较大差异,对于高富集稀土元素的蔬菜不宜在稀土矿区周边进行种植和长期食用.

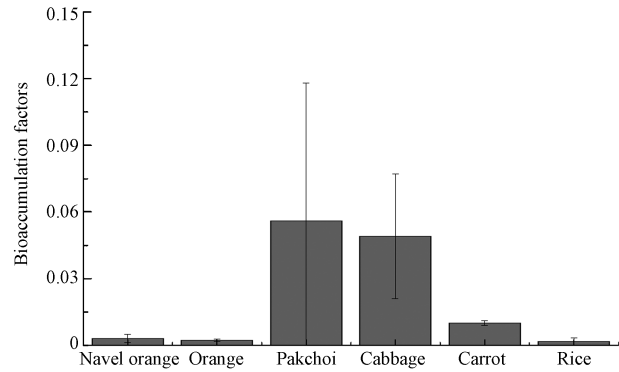


图 4 植物产品可食部分稀土元素的富集系数  
Fig.4 Bioaccumulation factors of REEs in edible parts of six plant products

2.5 稀土元素摄入对人体的健康风险评价

为了便于分析人体通过农产品摄入稀土元素的量及可能产生的健康风险,本研究参照美国环保局推荐的健康风险方法提出的终生平均每天的污染物摄入量[ADI,mg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>],计算模型为:

$$ADI=(C\times GW\times EF\times ED)/(BW\times AT)$$

式中,C为农产品中可食部分中稀土元素的含量(mg·kg<sup>-1</sup>),GW为每日农产品摄入量(kg·d<sup>-1</sup>),EF为暴露频率(d·a<sup>-1</sup>),ED为暴露周期(70a),BW为人体体重,一般采用标准体重(60 kg),AT为终生时间(365×70 d)<sup>[8]</sup>.

实地调查该地区成人每年蔬菜、大米、动物产品、水果等的摄入量,根据 US EPA(1989)<sup>[8]</sup>提出的终生平均每天的污染物摄入量计算公式,得出矿区居民终身日平均摄入稀土元素的总量(表 7).10 种动植物产品的稀土元素日摄入稀土元素的总和范围为 3.95—30.49 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>;日平摄入稀土元素的总和为 10.36 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>.大米的摄入量最大,均值为 6.80 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>,最高可达 23.34 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>;其次是青菜范围为 0.84—4.27 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>,均值为 1.70 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>;其他农产品终身日平均摄入稀土元素的含量都较低.从各农产品对终身日平均摄入稀土元素的贡献来看,大米和青菜共占 82.03%,贡献率最大;结球甘蓝的贡献率也较大,为 7.10%.研究认为,居民稀土元素摄入 70 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>为安全剂量,亚临床损害剂量的临界值为 100—110 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup><sup>[17]</sup>.本研究中日平摄入稀土元素的总和为 10.36 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>,且日摄入量最大值为 30.49 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>,均远低于不安全剂量和亚临床损害剂量,表明不存在健康风险.这与金姝兰等<sup>[15]</sup>、李小飞等<sup>[8]</sup>等研究结果存在差异,这主要是由于金姝兰等研究表明小白菜和萝卜贡献率高达 76.92%,但本研究中小白菜和萝卜并未纳入健康风险计算范围;而李小飞等研究结果表明芋头、空心菜和上海青贡献率高达 81.19%,且本研究中芋头、空心菜和上海青并未纳入健康风险计算范围,同时研究的是福建省长汀县,存在地域差别.

人体中有毒污染物质的主要来源为通过食物摄入、皮肤接触以及呼吸吸入而食物摄入是土壤有毒污染物进入人体产生健康风险最直接和最主要的途径<sup>[8]</sup>.外源稀土进入土壤后,在土壤环境中不能被降解,99.5%以上被土壤固相表面所吸附,且绝大部分残留在土壤表层,并不断地发生化学形态间的相互转化<sup>[15]</sup>.研究认为,居民稀土元素摄入 70 μg·kg<sup>-1</sup>·d<sup>-1</sup>为安全剂量,亚临床损害剂量的临界值为 100—

110  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ <sup>[17]</sup>.

表 7 稀土矿区周边居民食用的动植物产品的稀土元素含量

Table 7 Average daily intake dose of REEs of local inhabitants around REEs mining area

| 样品<br>Sample         | 每年食用天<br>Number of days<br>used per year/d | 日食用量<br>Daily consumption/kg | 残留水平<br>Content level/<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) | 日摄入量<br>Daily intake/<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ) | 所占比例<br>Ratio/%        |
|----------------------|--------------------------------------------|------------------------------|----------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------|------------------------|
| 脐橙 Navel orange      | 60                                         | 0.6                          | 19.32—319.33<br>(114.69)                                       | 0.03—0.52<br>(0.19)                                                             | 0.11—11.81<br>(1.82)   |
| 桔子 Orange            | 70                                         | 0.5                          | 75.94—126.57<br>(106.53)                                       | 0.12—0.20<br>(0.17)                                                             | 0.40—5.02<br>(1.64)    |
| 青菜 Pakchoi           | 150                                        | 0.2                          | 611.49—3118.52<br>(1240.47)                                    | 0.84—4.27<br>(1.70)                                                             | 3.10—57.85<br>(16.40)  |
| 结球甘蓝 Cabbage         | 80                                         | 0.15                         | 814.66—1870.74<br>(1342.69)                                    | 0.45—1.03<br>(0.74)                                                             | 1.49—22.63<br>(7.10)   |
| 胡萝卜 Carrot           | 60                                         | 0.2                          | 204.72—586.53<br>(445.41)                                      | 0.11—0.32<br>(0.24)                                                             | 0.37—7.73<br>(2.36)    |
| 大米 Rice              | 365                                        | 0.5                          | 255.28—2800.36<br>(816.23)                                     | 2.13—23.34<br>(6.80)                                                            | 22.92—92.76<br>(65.63) |
| 鸡蛋 Egg               | 100                                        | 0.1                          | 133.85—895.91<br>(541.59)                                      | 0.06—0.41<br>(0.25)                                                             | 0.20—9.52<br>(2.39)    |
| 鸡肉 Chicken           | 60                                         | 0.2                          | 341.35—608.96<br>(415.11)                                      | 0.19—0.33<br>(0.23)                                                             | 0.62—8.15<br>(2.20)    |
| 鸡肝 Chicken liver     | 50                                         | 0.02                         | 337.11—800.33<br>(481.08)                                      | 0.02—0.04<br>(0.03)                                                             | 0.05—0.92<br>(0.29)    |
| 鸡血 Chicken blood     | 30                                         | 0.05                         | 126.44—403.63<br>(262.30)                                      | 0.01—0.03<br>(0.02)                                                             | 0.03—0.70<br>(0.17)    |
| 总摄入量<br>Total intake |                                            |                              |                                                                | 3.95—30.49<br>(10.36)                                                           | (100.00)               |

人们摄入的稀土会在内脏、骨骼、脑部、头发和血液<sup>[8]</sup>中蓄积,对人体遗传、内分泌、生殖、神经、免疫等系统影响显著<sup>[35]</sup>.有研究报道,矿区居民血液中稀土元素的含量变化范围为 108.00—1274.80  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ,平均值为 633.10  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ .正常人血液中稀土含量的范围仅为 1.40—13.30  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ,平均值为 4.07  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ,矿区居民血液中稀土元素含量明显大于正常人,平均偏高 155.55 倍<sup>[7]</sup>.矿区男女性居民头发中稀土元素的平均含量分别为 0.57  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 0.56  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 均大于标准发样(GW09101a),分别是标准发样的 9.62 倍和 9.48 倍.有研究者通过核素示踪技术研究铈(<sup>141</sup>Ce)、钕(<sup>147</sup>Nd)在小鼠体内的分布,结果表明,大脑对 Ce 和 Nd 具有蓄积性<sup>[35]</sup>.本研究中,矿区居民通过农产品摄入的稀土元素终身日均摄入量之和为 10.36  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ,低于稀土对人体安全剂量 70  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ,表明该地区的人群没有面临稀土健康风险.

3 结论( Conclusion)

- (1)江西省赣南稀土矿区周边土壤总稀土含量较高,是江西省稀土元素背景值的 1.91 倍;轻稀土是江西省稀土矿区土壤、植物和动物产品的主要类别,分别占稀土总量的 75.29%、75.17%和 75.82%,其中,Ce 元素含量最高.
- (2)不同植物产品对稀土元素的富集能力存在较大差异,呈现青菜>结球甘蓝>胡萝卜>脐橙>桔子>大米.
- (3)赣南稀土矿区周边农产品中稀土元素不会危害矿区居民身体健康.

参考文献( References)

[ 1 ] THOMSON C D. Dietary recommendations for iodine around the world[J]. IDD Newsletter, 2002, 18(3) :38-42.

[ 2 ] 彭燕,何国金,张兆明,等. 赣南稀土矿开发区生态环境遥感动态监测与评估[J]. 生态学报, 2016, 36(6) :1676-1685.

PENG Y, HE G J, ZHANG Z M, et al. Eco-environmental dynamic monitoring and assessment of rare earth mining area in Southern

- Ganzhou Using Remote Sensing[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2016, 36(6):1676-1685 (in Chinese).
- [3] ÇELİK İ, KARA D, KARADAŞ C, et al. A novel ligandless-dispersive liquid-liquid microextraction method for matrix elimination and the preconcentration of rare earth elements from natural waters[J]. *Talanta*, 2015, 134(134):476-481.
- [4] 中华人民共和国国务院办公厅. 2012. 《中国的稀土状况与政策》白皮书[M/OL]. 北京: 人民出版社. [http://www.gov.cn/jrzq/2012-06/20/content\\_2165524.htm](http://www.gov.cn/jrzq/2012-06/20/content_2165524.htm).
- [5] 艾光华, 周源, 王勇. 江西稀土资源的开发利用现状与产业发展对策[J]. *稀土*, 2011, 32(5):97-101.
- AI G H, ZHOU Y, WANG Y. Research progress and industrial countermeasures of rare earth resource development in Jiangxi province[J]. *Chinese Rare Earths*, 2011, 32(5):97-101 (in Chinese).
- [6] 刘湘虎. 稀土元素对动物及人的影响[J]. *中国畜牧兽医*, 2008, 35(8):158-160.
- LIU X H. Rare earths influence animal and human being[J]. *China Animal Husbandry & Veterinary Medicine*, 2008, 35(8):158-160 (in Chinese).
- [7] KUMAR S A, PANDEY S P, SHENOY N S, et al. Matrix separation and preconcentration of rare earth elements from seawater by poly hydroxamic acid cartridge followed by determination using ICP-MS[J]. *Desalination*, 2011, 281:49-54.
- [8] 李小飞, 陈志彪, 张永贺, 等. 稀土矿区土壤和蔬菜稀土元素含量及其健康风险评价[J]. *环境科学学报*, 2013, 33(3):835-843.
- LI X F, CHEN Z B, ZHANG Y H, et al. Concentrations and health risk assessment of rare earth elements in soil and vegetables from a mining area in Fujian Province[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, 33(3):835-843 (in Chinese).
- [9] 杨秀芳, 孔俊豪, 高玉萍, 等. 我国茶叶稀土问题现状与研究[J]. *中国茶叶加工*, 2012, 11(1):4-7.
- YANG X F, KONG J H, GAO Y P, et al. Investigation and current situation of rare-earth elements issues in Chinese tea[J]. *China Tea Processing*, 2012, 11(1):4-7 (in Chinese).
- [10] ZHUANG M, WANG L, WU G, et al. Health risk assessment of rare earth elements in cereals from mining area in Shandong, China[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1):9772-9777.
- [11] SUN J, ZHAO H, WANG Y. Study on the contents of trace rare earth elements and their distribution in wheat and rice samples by RNAA[J]. *Journal of Radioanalytical & Nuclear Chemistry*, 1994, 179(2):377-383.
- [12] WEN B, YUAN D A, SHAN X Q, et al. The influence of rare earth element fertilizer application on the distribution and bioaccumulation of rare earth elements in plants under field conditions[J]. *Chemical Speciation and Bioavailability*, 2001, 13(2):39-48.
- [13] ZHENG S, ZHANG C, SHI K, et al. Bioaccumulation, subcellular distribution and chemical forms of yttrium in rice seedling[J]. *Journal of Rare Earths*, 2018, 36(3):331-336.
- [14] 褚遵华, 庄茂强, 赵金山, 等. 山东省某轻稀土矿区蔬菜中稀土元素含量调查[J]. *预防医学论坛*, 2015, 21(12):920-924.
- CHU Z H, ZHUANG M Q, ZHAO J S, et al. Survey on the contents of rare earth elements in vegetables of a rare earth ore area, Shangdong Province[J]. *Preventive Medicine Tribune*, 2015, 21(12):920-924 (in Chinese).
- [15] 金妹兰, 黄益宗, 胡莹, 等. 江西典型稀土矿区土壤和农作物中稀土元素含量及其健康风险评价[J]. *环境科学学报*, 2014, 34(12):3084-3093.
- JING S L, HUANG Y Z, HU Y, et al. Rare earth elements content and health risk assessment of soil and crops in typical rare earth mine area in Jiangxi Province[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014, 34(12):3084-3093 (in Chinese).
- [16] ZHUANG M, ZHAO J, LI S, et al. Concentrations and health risk assessment of rare earth elements in vegetables from mining area in Shandong, China[J]. *Chemosphere*, 2017, 168(188):578-582.
- [17] LI X, CHEN Z, CHEN Z, et al. A human health risk assessment of rare earth elements in soil and vegetables from a mining area in Fujian Province, Southeast China[J]. *Chemosphere*, 2013, 93(6):1240-1246.
- [18] 余江, 黄志勇, 陈婷. 赣南稀土矿区果园土壤和脐橙中稀土元素含量的测定[J]. *食品科学*, 2009, 30(22):309-313.
- YU J, HUANG Z Y, CHEN T. Determination of rare-earth elements in orange-growing soils and navel orange around rare-earth mining area in Southern Jiangxi[J]. *Food Science*, 2009, 30(22):309-313 (in Chinese).
- [19] 魏复盛, 刘廷良, 滕恩江, 等. 我国土壤中稀土元素背景值特征[J]. *环境科学*, 1991, 12(5):78-82.
- WEI F S, LIU T L, TENG E J, et al. Rare earth elements in Chinese soil[J]. *Environmental Science*, 1991, 12(5):78-82 (in Chinese).
- [20] 尚媛, 王冬艳, 李月芬, 等. 延边主要苹果梨产区土壤稀土元素地球化学特征研究[J]. *土壤*, 2009, 41(3):413-419.
- SHANG Y, WANG D Y, LI Y, et al. REE geochemical characteristics of soils at apple-pear production bases in Yanbian, Jilin Province[J]. *Soils*, 2009, 41(3):413-419 (in Chinese).
- [21] XU Q, LIU X R, TANG Q F, et al. A multi-element survey of surface soil and pollution estimate in Baotou City[J]. *Arid Land Geography*, 2011, 34(1):91-99.
- [22] MAO L, MO D, LI M, et al. The rare earth element compositions of sediments from the loess tableland in the Liyang Plain, Southern China: Implications for provenance and weathering intensity[J]. *Environmental Earth Sciences*, 2011, 62(8):1609-1617.
- [23] DOŁĘGOWSKA S, MIGASZEWSKI Z M. Anomalous concentrations of rare earth elements in the moss-soil system from south-central Poland[J]. *Environmental Pollution*, 2013, 178(1):33-40.
- [24] LOELL M, ALBRECHT C, FELIX-HENNINGSSEN P. Rare earth elements and relation between their potential bioavailability and soil properties, Nidda catchment (Central Germany)[J]. *Plant and Soil*, 2011, 349(1-2):303-317.

[25] ŠMUC N R, DOLENEC T, SERAFIMOVSKI T, et al. Geochemical characteristics of rare earth elements (REEs) in the paddy soil and rice (*Oryza sativa* L.) system of Koani Field, Republic of Macedonia[J]. *Geoderma*, 2012, 183-184:1-11.

[26] 温小军. 赣南稀土矿区土壤环境特征及稀土金属地球化学行为研究[D]. 昆明:云南大学, 2012.

WEN X J. Study on characteristics of soil environment and geochemical behavior of rare earth metals in rare earth mining area of southern Jiangxi Province[D]. Kunming: Yunnan University, 2012(in Chinese).

[27] 高效江, 申章, 王立军, 等. 赣南稀土矿区环境地球化学景观中稀土元素的迁移特征[J]. *环境科学*, 1999, 20(3):1-4.

GAO X J, ZHANG S, WANG L J, et al. Transfer of rare earth elements in the environmental geochemical landscape of REE mine, Southern Jiangxi[J]. *Environmental Science*, 1999, 20(3):1-4(in Chinese).

[28] 谢振东, 方宣忠, 郑文. 江西信丰县优质脐橙果和叶中稀土元素分布特征研究[J]. *中国地质*, 2006, 33(6):1418-1423.

XIE Z D, FANG X Z, ZHEN W. Distribution characteristics of REE in quality navel orange fruit and leaf in Xinfeng county, Jiangxi[J]. *Geology in China*, 2006, 33(6):1418-1423(in Chinese).

[29] 庄茂强, 赵金山, 李素云, 等. 山东省某轻稀土矿区水果和鸡蛋中稀土元素含量及健康风险[J]. *现代预防医学*, 2016, 43(23):4255-4259.

ZHUANG M Q, ZHAO J S, LI S Y, et al. Contents and health risk of rare earth elements in fruits and eggs from a REEs mining area, Shandong[J]. *Modern Preventive Medicine*, 2016, 43(23):4255-4259(in Chinese).

[30] 汪振立, 邓通德, 胡正义, 等. 脐橙品质与自然土壤中稀土元素相关性分析[J]. *土壤*, 2010, 42(3):459-466.

WANG Z L, DENG T D, HU Z Y, et al. Correlation analysis between navel orange quality and REE in natural soil[J]. *Soils*, 2010, 42(3):459-466(in Chinese).

[31] 周蕊, 刘丽萍, 岳兵, 等. 第四次中国总膳食研究-膳食稀土元素的摄入量[J]. *现代预防医学*, 2014, 41(11):1975-1978.

ZHOU R, LIU L P, YUE B, et al. Dietary intake assessment for rare earth elements from 4<sup>th</sup> China total diet study[J]. *Modern Preventive Medicine*, 2014, 41(11):1975-1978(in Chinese).

[32] 李延升, 祁珍祯, 蒋莹, 等. 沈阳市售初级农产品中 16 种稀土元素检测分析[J]. *食品研究与开发*, 2018, 39(11):131-135.

LI Y S, QI Z Z, JIANG Y, et al. Analysis of 16 rare earth elements in primary agricultural products from Shenyang market[J]. *Food Research and Development*, 2018, 39(11):131-135(in Chinese).

[33] 周焕清, 刘巧, 黄海燕. 福建省部分蔬菜、水果中稀土元素含量调查报告[J]. *福建医药杂志*, 1994, 16(1):65-66.

ZHOU H Q, LIU Q, HUANG H Y. Survey on rare earth elements in some vegetables and fruits in Fujian province[J]. *Fujian Medical Journal*, 1994, 16(1):65-66 (in Chinese).

[34] 赵清荣, 雒婉霞, 程晓华, 等. 新疆市售肉中稀土元素含量调查[J]. *疾病预防控制通报*, 2016, 31(2):8-11.

ZHAO Q R, LUO W X, CHENG X H, et al. Investigation on rare earth contents in meat sold in Xinjiang[J]. *Bulletin of Disease Control & Prevention(CHINA)*, 2016, 31(2):8-11(in Chinese).

[35] 宋雁, 刘兆平, 贾旭东. 稀土元素的毒理学安全性研究进展[J]. *卫生研究*, 2013, 42(5):885-892.

SONG Y, LIU Z P, JIA X D. A review on toxicology safety of rare earth elements[J]. *Journal of Hygiene Research*, 2013, 42(5):885-892 (in Chinese).