

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2021110402

黄安香, 柏文恋, 邬能英, 等. 贵州油茶主产区土壤重金属环境质量状况及风险评价[J]. 环境化学, 2023, 42(4): 1325-1336.

HUANG Anxiang, BAI Wenlian, WU Nengying, et al. Pollution and risk assessment of heavy metals in camellia oleifera main producing area soil of Guizhou Province[J]. Environmental Chemistry, 2023, 42 (4): 1325-1336.

贵州油茶主产区土壤重金属环境质量状况及风险评价*

黄安香¹ 柏文恋¹ 邬能英¹ 王忠伟¹ 杨守禄¹ 张彦雄^{1**} 张福安²

(1. 贵州省林业科学研究院, 贵阳, 550005; 2. 贵州一航生态农牧科技开发有限公司, 铜仁, 565100)

摘要 为评价重金属污染对油茶籽油质量安全的影响, 分析了贵州省油茶产地 256 份土壤样品中重金属元素 Pb、Cd、Hg、As、Cu 和 Cr 的含量, 并采用地积累指数法、潜在生态危害指数法和健康风险评估模型对土壤重金属污染进行风险评价. 结果表明, Pb、Cd、Hg、As 和 Cu 含量超过贵州土壤背景值占比大于 50% 以上, Cr 约 10% 的样点超过背景值. 土壤中 Cd 和 Hg 含量超过管制值 (GB 15618-2018) 的样点分别占总样点的 13.9% 和 0.39%, Pb、As、Cu 和 Cr 含量无超过管制值的样点. 地积累指数法评价结果表明, 产区土壤主要受 Cd、Hg 的污染, 污染程度主要为轻度和中度污染, 样点占比分别为 33.6% 和 38.68%, 而 Pb、As、Cu 轻度和中度污染占比均低于 6%. Cd 和 Hg 在综合潜在生态指数中占比最重, 对综合生态风险平均贡献率分别为 30.84% 和 56.35%. 综合生态风险中轻微、中等、重度、强烈污染程度的样点分别占总样点数的 33.59%、40.63%、16.80%、8.98%. 重金属对儿童的非致癌风险高于成人, 成人和儿童综合非致癌风险 (THI) 分别为 0.795、4.82, 综合致癌风险 (TCR) 分别为 1.58×10^{-5} 、 6.56×10^{-5} , 儿童的非致癌风险主要由 As 贡献, 致癌风险主要由 As 和 Cr 贡献, 致癌风险对于成人和儿童整体处在可接受水平.

关键词 油茶主产区, 产地土壤, 重金属污染, 生态风险评价, 健康风险评价.

Pollution and risk assessment of heavy metals in camellia oleifera main producing area soil of Guizhou Province

HUANG Anxiang¹ BAI Wenlian¹ WU Nengying¹ WANG Zhongwei¹ YANG Shoulu¹
ZHANG Yanxiong^{1**} ZHANG Fuan²

(1. Guizhou Academy of Forestry, Guiyang, 550005, China; 2. Guizhou Yihang Ecological Agriculture and Animal Husbandry Technology Development Co. LTD, Tongren, 565100, China)

Abstract To evaluate the influence of heavy metal pollution on the quality and safety of camellia oleosa seed oil, the characteristic of heavy metal pollution and health risks of heavy metals in main production areas of Camellia oleifera soil in Guizhou were studied in this paper. Pb, Cd, Hg, As, Cu and Cr were detected from 256 soil samples, and the data were assessed by geoaccumulation Index, potential ecological risk index and health risk assessment model. The result show that the content of Pb, Cd, Hg, As and Cu exceeded the background value of Guizhou soil by more than 50%, and Cr content exceeded the background value about 10%. The samples of Cd and Hg were greater than the

2021 年 11 月 4 日收稿 (Received: November 4, 2021).

* 获贵州省农村产业革命特色林业产业项目 (特林研 [2020]14 号) 和贵州省科技支撑计划项目 (黔科合支撑 [2021] 一般 130 号), (黔科合服企 [2020] 4010), (黔科合支撑 [2020]1Y145 号) 资助.

Supported by the Rural Industrial Revolution Characteristic Forestry Industry Project of Guizhou Province (Grant [2020] 14) and Guizhou Province Science and Technology Project (Grant [2021] general 130), ([2020] 4010), ([2020]1Y145).

** 通信联系人 **Corresponding author**, E-mail: 1911287725@qq.com

control value of soil pollution risk for agricultural land (GB 15618-2018) accounted for 13.9% and 0.39% of the total samples, respectively, while no samples with Pb, As, Cu and Cr content exceeding the control value. The evaluation results of geoaccumulation Index show that the soil in the producing areas was mainly polluted by Cd and Hg, and the pollution degree was mainly mild and moderate, with samples accounting for 33.6% and 38.68%, respectively, while the proportion of Pb, As and Cu was less than 6%, respectively. Cd and Hg contributed 30.84% and 56.35% to the comprehensive ecological risk on average, respectively. The samples with mild, moderate, severe and strong pollution levels accounted for 33.59%, 40.63%, 16.80% and 8.98% of total samples, respectively. Health risk assessment show that the non-carcinogenic risk of children was higher than of adults, the comprehensive non-carcinogenic risk index (THI) of heavy metal to adults and children was 0.795 and 4.82, respectively, and comprehensive carcinogenic risk index (TCR) was 1.58×10^{-5} , 6.56×10^{-5} , respectively. The non-carcinogenic risk higher for children was mainly contributed by As, while carcinogenic risk was mainly contributed by As and Cr, the carcinogenic risk is acceptable for adults and children as a whole.

Keywords camellia oleifera main production area of Guizhou province, producing area soil, heavy metal pollution, ecological risk assessment, health risk assessment.

土壤健康是农业发展的基础,由于长期的矿业资源开采和金属冶炼活动,空气沉降或者地球化学背景值较高^[1]等因素,造成农林产品种植区土壤重金属污染^[2].各地区的土壤重金属污染状况不同,且农林作物对重金属的富集能力各有差异^[3-4].

当前,国家高度重视土壤面源污染状况,相继出台了《土壤污染行动防治计划》《中华人民共和国土壤污染防治法》等法律法规,全面部署土壤污染防治工作,切实保障粮食安全.2018年《全国土壤污染状况调查公报》显示,耕地和林地分别超标 19.4% 和 10.0%,需高度关注农林土壤环境质量对食品安全的影响^[5].贵州省受限于耕地资源少,因此部分重金属含量超标的土壤仍被用于农业或可食用林产品的生产,对产品安全和人体健康存在一定的安全隐患^[6-8].有学者开发了地积累指数法,潜在生态风险指数法等评价模型^[9],同时建立了一系列的健康风险评价模型,CLEA(Contaminated land exposure assessment)、HRA(Health risk assessment)等^[10],以评估土壤重金属引发的不良健康影响^[11].目前,大多学者采用生态环境标准《建设用地土壤污染风险评估技术导则》(HJ25.3-2019)方法开展农用地等土壤健康风险评估^[12-13].贵州省大力发展特色食用林产品油茶、核桃、刺梨等,然而目前的研究主要聚焦于矿区农田土壤的重金属污染状况^[14],对林地或发展食用林产品用地关注度较低,缺乏研究不同区域土壤中重金属污染的生态风险,客观正确的评价土壤健康状况,且对林地污染控制修复以及安全利用的相关研究较少.食用林产品产区土壤的健康风险评估亟待进行.因此,开展油茶主产区土壤污染状况调查和风险评价,促进油茶产业的健康发展,树立绿色健康食品的品牌形象有重要的现实意义.

本文主要针对贵州油茶主产区产地土壤重金属污染状况进行研究,明确主要污染物 Pb、Cd、Hg、As、Cu 和 Cr 的含量,评价产地土壤重金属污染状况,评价生态风险和健康风险.为贵州油茶产区土壤重金属污染防治、风险管控等提供科学依据.

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 研究区域概况

本研究以贵州油茶主产区黔东南的黎平、天柱、锦屏、松桃等县,铜仁地区思南、玉屏等,黔西南地区册亨望谟县及毕节地区威宁县等主产区产地土壤.海拔高度在 300—1100 m 之间,年平均气温 17—26 ℃,年平均降雨量 1000 mm 以上,属亚热带湿润季风气候.

1.2 样品的采集

样品采集时间为 2020 年 4 月—2021 年 11 月,在研究区域的油茶主产区采集 256 个表层土壤

(0—20 cm)样点. 种植面积 30 亩以上设置一个样点, 每个样点用随机布点法采集 5 个土壤点, 将其混合后形成一个样点的土壤样品. 样点采集区域分布见图 1.

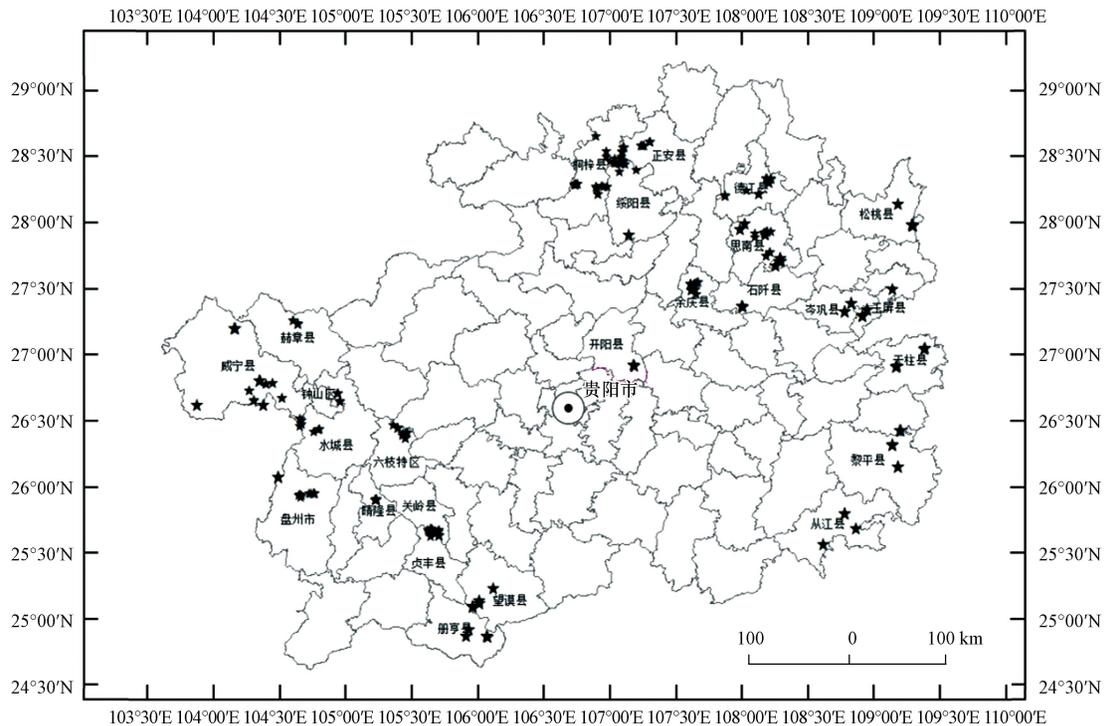


图 1 样点采集区域分布图

Fig.1 Distribution diagram of sampling area

1.3 样品的测定

土壤样品中 Pb、Cd、As、Cu 和 Cr 测定方法主要参照环境行业标准 HJ 803-2016^[15] 中的 ICP-MS 法测定, Hg 测定方法参照环境行业标准 HJ680-2013^[16] 中的原子荧光法测定. 测定过程采用土壤标准物质进行全过程的质量控制, 误差均在允许的范围内.

1.4 土壤重金属污染评价

1.4.1 地积累指数法

地积累指数法主要考虑人为活动和成岩作用等自然因素, 评价重金属的污染状况^[17]. 计算公式为:

$$I_{\text{geo}} = \log_2 \left(\frac{C_i}{1.5 \times B_i} \right) \quad (1)$$

式中, C_i 为重金属的实测值, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, B_i 为重金属 i 的土壤背景值, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 贵州省土壤 Pb、Cd、Hg、As、Cu 和 Cr 的背景值分别取: 33.57、0.40、0.13、13.48、34.50、98.98^[18], 1.5 为修正系数, I_{geo} 为土壤污染状况, 分级标准详见表 1.

表 1 地积累指数和潜在生态风险指数分级标准

Table 1 Grading standard of the geo-accumulation index and potential ecological risk index

| 地积累指数 I_{geo} | | 生态风险指数 E_i | | 综合生态风险 IR | |
|-----------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|---------------------|----------------------|
| 范围 Range | 污染水平 Pollution level | 范围 Range | 污染水平 Pollution level | 范围 Range | 污染水平 Pollution level |
| $I_{\text{geo}} < 0$ | 无污染 | $E_i < 40$ | 轻微 | $RI < 150$ | 轻微 |
| $0 \leq I_{\text{geo}} < 1$ | 轻微 | $40 \leq E_i < 80$ | 中等 | $150 \leq RI < 300$ | 中等 |
| $1 \leq I_{\text{geo}} < 2$ | 轻度 | $80 \leq E_i < 160$ | 重度 | $300 \leq RI < 600$ | 重度 |
| $2 \leq I_{\text{geo}} < 3$ | 中度 | $160 \leq E_i < 320$ | 强烈 | $RI \geq 600$ | 强烈 |
| $3 \leq I_{\text{geo}} < 4$ | 重度 | $E_i \geq 320$ | 极强 | | |
| $4 \leq I_{\text{geo}} < 5$ | 严重 | | | | |
| $I_{\text{geo}} \geq 5$ | 极严重 | | | | |

1.4.2 潜在生态风险指数法

潜在生态风险指数法主要考虑重金属的毒性及生态效应^[9],其计算公式为:

$$E_i = T_i \frac{C_i}{B_i} \quad (2)$$

$$IR = \sum E_i \quad (3)$$

式中, C_i 为重金属的实测值, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; B_i 为重金属 i 的土壤背景值, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; E_i 表示单项重金属 i 的潜在风险指数; T_i 表示重金属 i 的毒性相应系数, Pb、Cd、Hg、As、Cu 和 Cr 的 T_i 值分别为: 5、30、40、10、5、2; RI 为所有重金属造成的总的潜在生态风险. E_i 和 IR 的分级评价标准见表 1.

1.5 土壤健康风险评价

1.5.1 基于不同途径的暴露量计算法

成人和儿童对 6 种污染物的暴露途径,参考《建设用地土壤污染风险评估技术导则》计算法,考虑经口摄入(SER_{OI})、皮肤接触(SER_{DC})、呼吸吸入(SER_{PI}) 的 3 种主要途径. 暴露参数采用《导则》附录 G 的第一类用地方式推荐值^[19], 详见表 2, 其暴露量的计算公式见式 4—6.

表 2 健康风险评估参数

Table 2 Parameters of health risk assessment

| 参数 Parameter | 参数意义 Parameters significance and units | 单位 Units | 取值 Value | |
|-------------------------|---|----------------------------------|-------------------|-------------|
| | | | 成人 Adults | 儿童 Children |
| OSRI | 每日摄入土壤量 | $\text{Mg} \cdot \text{d}^{-1}$ | 100 | 200 |
| ED | 暴露期 | a | 24 | 6 |
| EF | 暴露频率 | $\text{d} \cdot \text{a}^{-1}$ | 350 | 350 |
| ABS_{O} | 经口摄入因子 | 无量纲 | 1 | 1 |
| ABS_{d} | 皮肤接触吸收因子 | 无量纲 | As取0.03, 其余取0.001 | |
| BW | 平均体重 | kg | 61.8 | 19.2 |
| AT_{nc} | 非致癌效率平均时间 | d | 8760 | 2190 |
| AT_{ca} | 致癌效率平均时间 | d | 27740 | 27740 |
| SAE | 暴露皮肤面积 | cm^2 | 5374 | 2848 |
| SSAR | 皮肤表面土壤粘附系数 | $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ | 0.07 | 0.2 |
| E_v | 每日皮肤接触事件频率 | $\text{次} \cdot \text{d}^{-1}$ | 1 | 1 |
| PM_{10} | 空气中可吸入颗粒物含量 | $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ | 0.119 | 0.119 |
| DAIR | 每日空气呼吸量 | $\text{m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ | 14.5 | 7.5 |
| PIAF | 吸入土壤颗粒物在体内滞留比例 | 无量纲 | 0.75 | 0.75 |
| f_{spo} | 室外空气中来自土壤的颗粒物所占比例 | 无量纲 | 0.5 | 0.5 |
| f_{spl} | 室内空气中来自土壤的颗粒物所占比例 | 无量纲 | 0.8 | 0.8 |
| EFO | 室外暴露频率 | $\text{d} \cdot \text{a}^{-1}$ | 87.5 | 87.5 |
| EFI | 室内暴露频率 | $\text{d} \cdot \text{a}^{-1}$ | 262.5 | 262.5 |

$$\text{SER}_{\text{OI}} = \frac{\text{OSRI} \times \text{ED} \times \text{EF} \times \text{ABS}_{\text{O}}}{\text{BW} \times \text{AT}} \times 10^{-6} \quad (4)$$

$$\text{SER}_{\text{DC}} = \frac{\text{SAE} \times \text{SSAR} \times \text{EF} \times \text{ED} \times E_v \times \text{ABS}_{\text{d}}}{\text{BW} \times \text{AT}} \times 10^{-6} \quad (5)$$

$$\text{SER}_{\text{PI}} = \frac{\text{PM}_{10} \times \text{DAIR} \times \text{PIAF} \times (f_{\text{spo}} \times \text{EFO} + f_{\text{spl}} \times \text{EFI})}{\text{BW} \times \text{AT}} \times 10^{-6} \quad (6)$$

1.5.2 致癌和非致癌风险计算法

长期接触或者是食用含有重金属的食物后,会给人带来致癌风险,因此,本文中依据《建设用地土壤污染风险评估技术导则》所建立的非致癌风险(THI)和致癌风险(TCR)评估模型评价因暴露

于油茶主产区产地土壤而导致的健康风险^[20].

$$THI = \sum HQ_{ij} = \sum \frac{SER_{ij} \times C_i}{RfD_{ij} \times SAF} \quad (7)$$

$$TCR = \sum CR_{ij} = \sum SER_{ij} \times SF_{ij} \times C_i \quad (8)$$

$$SF_i = \frac{IUR \times BW_a}{DARI_a} \quad (9)$$

$$RfD_i = \frac{RfC \times DARI_a}{BW_a} \quad (10)$$

$$SF_d = \frac{SF_o}{ABS_{gi}} \quad (11)$$

$$RfD_d = RfD_o \times ABS_{gi} \quad (12)$$

式中, C_i 表示重金属 i 的实测值, $mg \cdot kg^{-1}$; SER_{ij} 为重金属 i 通过暴露途径 j 的暴露量, $kg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$ 取值见表 3; SF_{ij} 为重金属通过暴露途径 j 引发的致癌斜率因子, $(kg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1})^{-1}$. RfD_{ij} 表示重金属 i 通过暴露途径 j 的参考剂量, $kg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$, SAF 为暴露于土壤的参考计量分配系数, 取值 0.5. IUR 表示呼吸吸入单位致癌风险, RfC 呼吸吸入参考浓度, ABS_{gi} 表示消化道吸收因子, RfD_o , SF_o 等参数均可通过《导则》中的附录 B 查取. 经过查询及公式(9)—(12)的计算得出表 3.

表 3 非致癌金属的参考剂量(RFD)和致癌金属的斜率因子(SF)

Table 3 References dose (RFD) for non-carcinogen metals and slope factors (SF) for carcinogen metal

| 重金属 Heavy metal | Rfd($kg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$) | | | SF($(kg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1})^{-1}$) | | |
|-----------------|--|-----------------------|-----------------------|--|----------------------|----------------------|
| | 经口摄入 Rfd _o | 皮肤接触 Rfd _d | 呼吸吸入 Rfd _i | 经口摄入 SF _o | 呼吸吸入 SF _i | 皮肤接触 SF _d |
| Pb | 3.5×10^{-3} | 5.25×10^{-4} | 3.52×10^{-3} | — | — | — |
| Cd | 1.0×10^{-3} | 1.0×10^{-5} | 1.0×10^{-3} | 0.38 | 7.67 | 15.2 |
| Hg | 3.0×10^{-4} | 2.1×10^{-5} | 8.57×10^{-5} | — | — | — |
| As | 1.0×10^{-4} | 1.23×10^{-4} | 0.30 | 1.50 | 18.33 | 1.50 |
| Cu | 0.04 | 0.012 | 0.04 | — | 0.84 | — |
| Cr | 3.0×10^{-3} | 3.0×10^{-3} | 2.86×10^{-5} | — | 51.14 | — |

1.5.3 致癌效应的风险控制值计算法

基于 6 种土壤暴露途径综合致癌效应的土壤风险控制值, 其计算公式为:

$$RCVS_n = \frac{ACR}{OISER_{ca} \times SF_o + DCSE_{ca} \times SF_d + (PISER_{ca} + IOVER_{ca1} + IOVER_{ca2} + IIVER_{ca} \times SF_i)} \quad (13)$$

式中, ACR 表示可接受致癌风险, 无量纲, 取值为 10^{-6} , $IOVER_{ca1}$ 表示吸入室外空气中来自表层土壤的气态污染物对应的土壤暴露量(致癌效应), kg 土壤 $\cdot kg^{-1}$ 体重 d^{-1} ; $IOVER_{ca2}$ 表示吸入室外空气中来自表层土壤的气态污染物对应的土壤暴露量(非致癌效应), kg 土壤 $\cdot kg^{-1}$ 体重 $\cdot d^{-1}$; $IIVER_{ca1}$ 表示 $IIVER_{ca}$ 吸入室内空气来自下层土壤的气态污染物对应的土壤暴露量(致癌效应), kg 土壤 $\cdot kg^{-1}$ 体重 $\cdot d^{-1}$.

根据(13)式计算得表 4.

表 4 重金属元素综合致癌效应的土壤风险控制值

Table 4 Soil risk control values of comprehensive carcinogenic effects of heavy metals

| 元素 Elements | Cd | As | Cu | Cr |
|----------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| 风险控制值 | 9.63×10^{-3} | 4.07×10^{-3} | 8.95×10^{-2} | 1.47×10^{-3} |

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 土壤重金属污染状况

土壤 pH 值对土壤中重金属形态的转化起到关键性作用,研究表明,酸性条件下有利于重金属向有效态转化^[21].由表 5 可知,贵州油茶产区土壤的 pH 值在 3.87—8.25 之间,平均值为 6.06.土壤为弱碱性、中性、弱酸性、酸性及强酸性的样点占总数分别为 23.05%、18.36%、16.02%、27.73% 和 14.84%.可见弱碱性和酸性样点约占总数的 50.8%.Pb、Cd、Hg、As、Cu 和 Cr 的平均含量分别为:46.67、1.46、0.45、19.61、35.57、62.71 mg·kg⁻¹,超过背景值样点分别占总数的 56.25%、64.84%、94.14%、58.59%、56.25% 和 9.38%.根据国家标准 GB 15618-2018 对农田土壤重金属管制值^[22]的要求,超标的样点以重金属 Cd 为主,占总数的 13.90%,其次 Hg 超标样点数占总数仅为 0.39%,土壤中 Pb、As、Cu、Cr 等元素未发现有超标的情况.以上研究结果表明,约 14.63% 产区的土壤镉危害风险较大,有向油茶籽中富集的风险,约 86.37% 的样点是符合国家标准要求.研究表明,重金属向植物中转移,受多种因素的影响,一方面是土壤中 Cd 的有效态含量,另一方面是植物对 Cd 的转运能力.研究发现食品中重金属含量与土壤中 Cd 的总含量并未呈现正相关的关系^[23].不同植物对重金属元素的富集能力存在较大差异,大米更容易富集 Cd、Zn 和 Cr,玉米更容易富集 Zn、Cu 和 Cr^[2].因此,在实际生产中,应充分考虑农作物重金属累积特性以保证作物安全生产,加强监测具有 Cd 污染高风险样点的产区,严格监控该地区油茶产品重金属 Cd 含量情况,确保食品安全.

表 5 油茶产地土壤重金属含量特征及 pH 值

Table 5 Contents of heavy metals and pH in Camellia origin soil

| 含量/(mg·kg ⁻¹) Content | 指标 Indexes | | | | | | pH |
|--------------------------------------|------------|-------|-------|--------|--------|--------|------|
| | Pb | Cd | Hg | As | Cu | Cr | |
| 背景值 | 33.57 | 0.40 | 0.13 | 13.48 | 34.50 | 98.98 | - |
| 最大值 | 696.41 | 28.51 | 2.13 | 275.96 | 316.14 | 290.79 | 8.25 |
| 最小值 | 7.22 | 0.04 | 0.02 | 2.42 | 4.61 | 8.65 | 3.87 |
| 平均值 | 46.67 | 1.46 | 0.45 | 19.61 | 35.57 | 62.71 | 6.06 |
| 标准偏差 | 54.99 | 2.62 | 0.35 | 20.07 | 34.93 | 34.66 | 1.30 |
| 大于背景值样点/% | 56.25 | 64.84 | 94.14 | 58.59 | 56.25 | 9.38 | - |
| 大于管制值样点/% | 0.00 | 13.90 | 0.39 | 0.00 | - | 0.00 | - |

注“-”表示未参与计算.

2.2 土壤重金属污染评价

2.2.1 地累积指数法评价

由公式(1)计算结果可得,Pb、Cd、Hg、As、Cu、Cr 的 I_{geo} 值得范围分别为:-2.803—3.790、-4.067—5.570、-3.612—3.450、-3.060—3.771、-3.489—2.611、-4.102—0.970.从图 2(a)中可知,6 中重金属的地累积指数平均值依次为:Hg>Cd>As>Pb>Cu>Cr. I_{geo} 均值>0 的元素有 Hg 和 Cd,As、Pb、Cu、Cr 的 I_{geo} 均值<0.计算结果表明,大多数重金属的 I_{geo} 值小于 0,表示无污染.依据表 1 中的 I_{geo} 分级标准,重金属 Pb 的轻度、中度、重度和极严重污染样点分别占总样点的 27.73%、1.56%、0.78% 和 0.00%,Cd 分别占 11.72%、12.50%、5.08% 和 0.78%,Hg 分别占 29.30%、9.38%、2.73% 和 0.00%,As 分别占 5.47%、0.00%、0.00% 和 0.00%;Cu 轻度污染占 3.91%,中度污染占 0.78%;Cr 仅有 3.13% 为轻微污染,其他均为无污染,详见图 3.

以上结果表明,研究区域的部分土壤受 Cd、Hg 的污染,污染程度主要为轻度和中度污染,总占比分别 24.22% 和 38.67%,而 Pb、As、Cu 轻度和中度污染占比均低于 6%.崔云霞等^[20]研究长三角地区农业活动区域的重金属污染风险也发现,地累积 I_{geo} 值大多数小于 0,研究区域内无 As、Cr 污染的样点.Wang 等^[12]研究施用有机肥的蔬菜土壤重金属地累积指数污染情况表明,Zn、Pb、Cd 无污染,Cr、Cu、As 中等污染.TOKATLI^[24]等对土耳其 Emet 河流域土壤沉积物的有毒元素进行风险评价,其中地累积

指数 I_{geo} 值在-3.92—5.99, 所有样点中, Cu 和 Zn 无污染, Cd、Cr 和 Ni 为中度至重度污染, Pb 为中度污染. 可见不同土壤环境及使用方式受到重金属污染的类别和程度差异性较大.

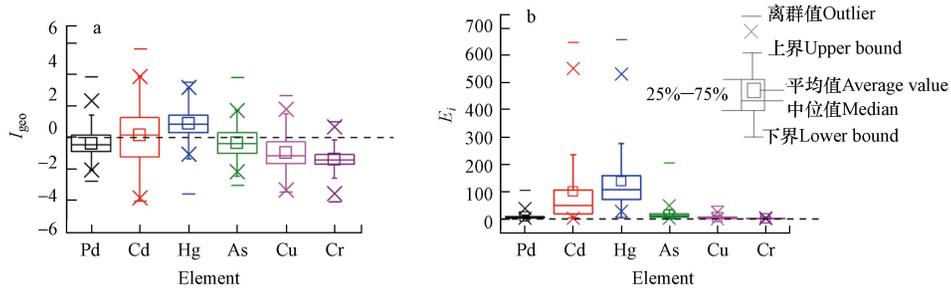


图2 土壤地积累指数和潜在生态风险指数箱线图

(a 为油茶产地土壤地积累指数 I_{geo} ; b 为油茶产地土壤中单元素的潜在生态风险指数 E_i)

Fig.2 Box plot of soil accumulation index and potential ecological risk index

a, I_{geo} of Camellia origin soil; b, Potential ecological risk index of single element in camellia origin soil

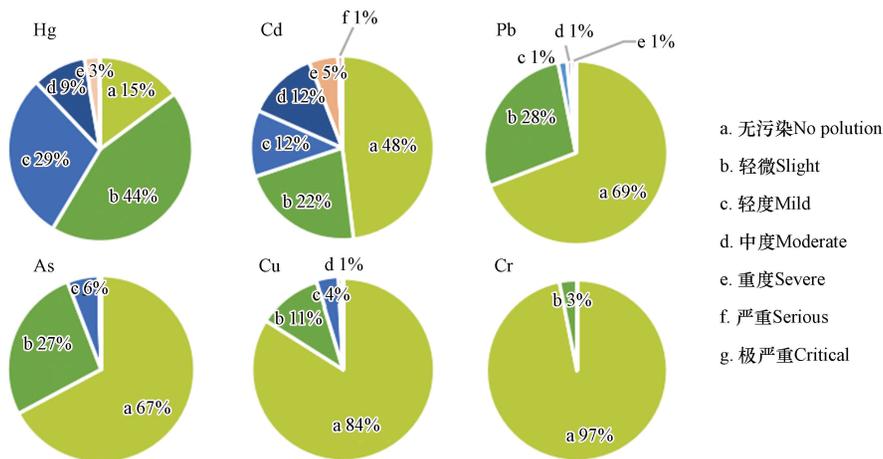


图3 6种重金属在油茶产地土壤中地积累指数的污染等级样品分布情况

Fig.3 Distribution of contamination grade samples of six heavy metals in Camellia origin soil

2.2.2 潜在生态风险指数法评价

根据表1的分级标准, 单元素潜在生态风险值 $E_i > 40$, 或综合生态风险指数 $RI > 150$ 时, 表明土壤存在潜在生态危害. 由公式(2)和(3)计算可得 Cd、Hg 的潜在生态风险指数在 4.91—655.85, 2.69—646.54, 均值分别为 99.38 和 137.45. 其余元素 E_i 平均值均低于 40. 由图2(b)可知, 潜在生态风险 E_i 值依次为: $Hg > Cd > As > Pb > Cu > Cr$.

由图4可知, Pb、Cu、Cr 等 4 种重金属呈现轻微生态风险的土壤样点占总数的 99.22% 以上, As 为 97.27%, 污染风险较低. 计算结果表明 Cd 和 Hg 两种重金属对综合潜在生态风险贡献较大, 其中中等生态风险土壤样点分别占总数的 22.27% 和 27.73%, 重度生态风险分别占中数的 13.67% 和 41.02%, 强烈生态风险分别占总数的 12.11% 和 17.97%, 极强生态风险均占总数的 7.42%. 可见 Cd 和 Hg 是油茶主产区土壤的主要生态风险因子. 由图5中各元素在各土壤样点中生态风险分布情况可知, Cd 和 Hg 在综合潜在生态指数中占比最重, Cd 和 Hg 对综合生态风险平均贡献率分别为 30.84% 和 56.35%, 约占总 RI 值得 87.19%, 是潜在生态风险的主要贡献因子. 而 Pb、As、Cu 和 Cr 的平均贡献率不到 7.00%, 分别为 3.09%、6.51%、2.53% 和 0.66%, 约占总 RI 值的 12.79%. 有研究表明^[25], 工业园周边土壤重金属潜在生态风险系数(E_i)平均值依次为 $Cd > Hg > As > Cu > Pb > Cr > Zn$. Cd 对总生态风险的贡献率为 45.56%, Hg 的贡献率为 30.16%, Hg、Cd 为潜在生态风险指数的主要贡献因子^[25]. 洞庭湖表层沉积物重金属污染潜在生态风险评价结果也表明了潜在在重金属生态风险为重污染, 其中 Cd、Hg 风险等级高, 也是主要贡献因子^[26]. 其主要原因是重金属 Cd 和 Hg 毒性系数较大, 因而对 RI 的贡献比较大.

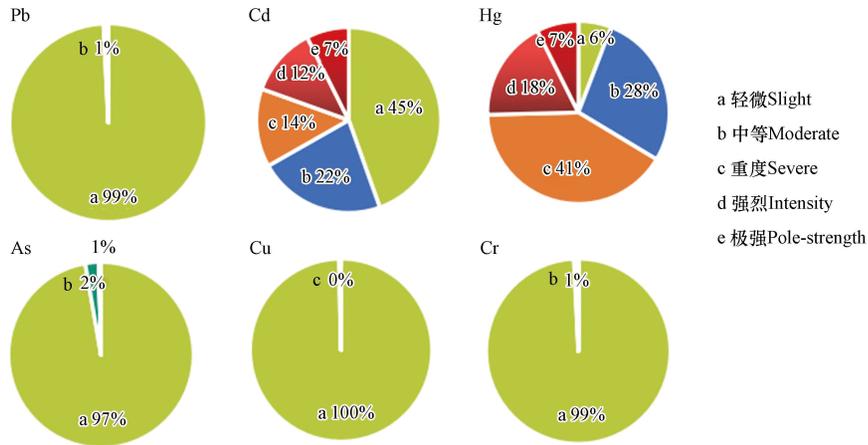


图 4 6 种重金属在油茶产地土壤中潜在生态风险指数的样品污染等级分布情况

Fig.4 Distribution of samples pollution levels of potential ecological risk index of 6 heavy metals in Camellia origin soil

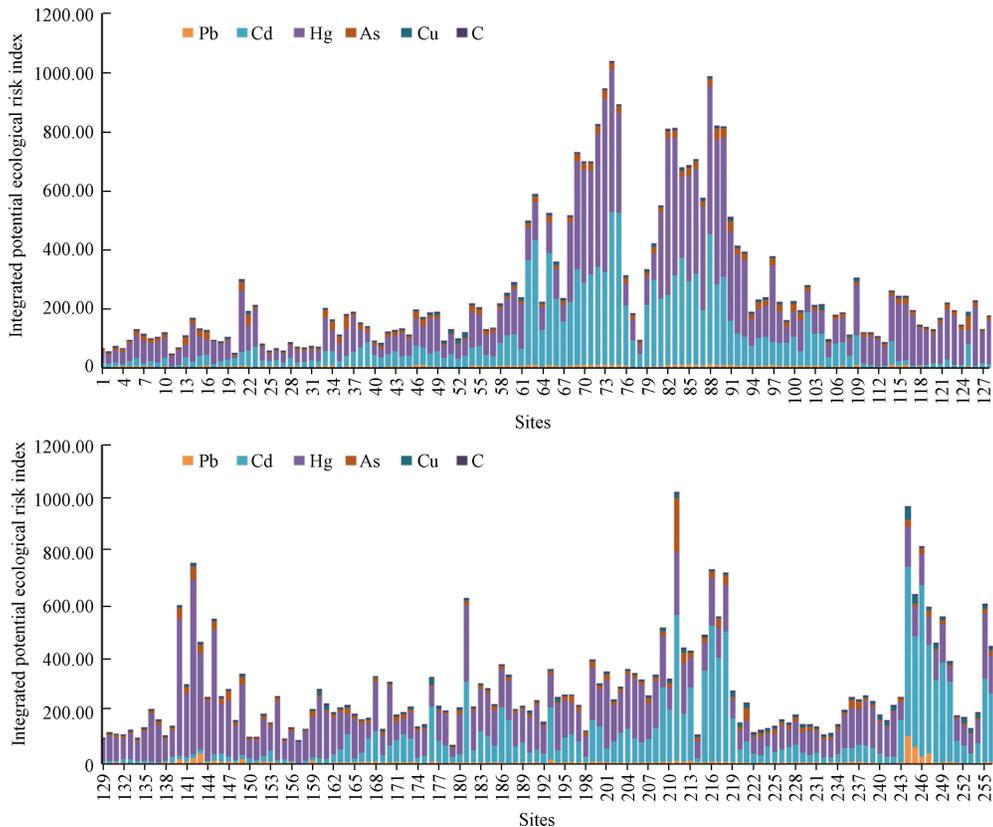


图 5 油茶产区 256 个土壤样点中重金属潜在生态风险分布情况

Fig.5 Distribution of potential ecological risk of heavy metals in 256 soil of Camellia origin soil

2.3 土壤重金属健康风险评价

2.3.1 非致癌风险评价

依据《建设用地土壤污染风险评估技术导则》的风险评价模型公式(4)—(7), 研究计算 6 种重金属在贵州油茶主产区土壤的多种暴露途径下的非致癌风险, 评价结果如表 6 所示. 结果表明, 成人的总非致癌风险 (THI) 依次为经口摄入 (HQois)>呼吸吸入 (HQpis)>皮肤接触 (HQdcs), 重金属的非致癌风险依次为: As>Cr>Pb>Hg>Cd>Cu. 成人的总非致癌风险平均值均低于安全阈值 (即 EPA 规定的限定值 1.0). 因此, 成人在研究区域劳动相对安全. 儿童的非致癌总风险 HI 值 (4.82) 比成人 (0.795) 高, 是成人的 6 倍之多, 说明该地区对于儿童可能存在由重金属引起的综合非致癌风险, 总非致癌风险程度依次为经口摄入 (HQois)>皮肤接触 (HQdcs)>呼吸吸入 (HQpis), 这一研究结论与郑堃等^[27] 研究的水稻土壤

重金属在 3 种暴露途径中经口摄入对儿童的健康风险最大相一致. 这可能与儿童的多动等生活习性和体重较轻有关, 经口摄入频率较高, 其非致癌总风险 HQois 值达到 (4.82), 占总风险值 HI 的 97.10%. 表 6 表明, 儿童的总非致癌风险超过了安全阈值 (1.0), 对儿童存在潜在的安全隐患, 因此, 应加大研究区域的 Pb、Cr、As 的管控力度, 尤其是由 As 元素带来的非致癌健康风险. 综合分析油茶产区土壤的非致癌风险, 儿童通过经口摄入土壤重金属造成的健康风险均比成人高, 此研究结论与空气 PM2.5 中重金属致癌风险程度相一致^[28], 因此需特别重视并警惕儿童经口摄入土壤重金属 As 而造成的健康风险, 对成人则相对安全.

表 6 土壤重金属非致癌健康风险评估结果

Table 6 Results of non-carcinogenic health risk assessment of soil heavy metals

| 重金属 Heavy metal | 经口摄入HQois | | 皮肤接触HQdcs | | 呼吸吸入HQpis | | 总非致癌风险 (HI) | | |
|--------------------|-----------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| | 成人Adults | 儿童Children | 成人Adults | 儿童Children | 成人Adults | 儿童Children | 成人Adults | 儿童Children | |
| Pb | Max | 6.17×10^{-1} | 3.97 | 1.55×10^{-3} | 3.02×10^{-1} | 5.76×10^{-2} | 9.59×10^{-2} | 6.77×10^{-1} | 4.37 |
| | Min | 6.40×10^{-3} | 4.12×10^{-2} | 1.60×10^{-5} | 3.13×10^{-3} | 5.97×10^{-4} | 9.94×10^{-4} | 7.01×10^{-3} | 4.53×10^{-2} |
| | Average | 4.14×10^{-2} | 2.66×10^{-1} | 1.04×10^{-4} | 2.02×10^{-2} | 3.86×10^{-3} | 6.43×10^{-3} | 4.53×10^{-2} | 2.93×10^{-1} |
| Cd | Max | 8.85×10^{-2} | 5.70×10^{-1} | 3.33×10^{-3} | 6.49×10^{-1} | 8.30×10^{-4} | 1.38×10^{-3} | 9.26×10^{-2} | 1.22 |
| | Min | 1.11×10^{-4} | 7.15×10^{-4} | 4.18×10^{-6} | 8.15×10^{-4} | 1.04×10^{-6} | 1.74×10^{-6} | 1.16×10^{-4} | 1.53×10^{-3} |
| | Average | 4.54×10^{-3} | 2.92×10^{-2} | 1.71×10^{-4} | 3.33×10^{-2} | 4.26×10^{-5} | 7.09×10^{-5} | 4.75×10^{-3} | 6.25×10^{-2} |
| Hg | Max | 2.20×10^{-2} | 1.42×10^{-1} | 1.18×10^{-4} | 2.31×10^{-2} | 7.24×10^{-4} | 1.21×10^{-3} | 2.29×10^{-2} | 1.66×10^{-1} |
| | Min | 1.65×10^{-4} | 1.06×10^{-3} | 8.86×10^{-7} | 1.73×10^{-4} | 5.42×10^{-6} | 9.02×10^{-6} | 1.71×10^{-4} | 1.24×10^{-3} |
| | Average | 4.62×10^{-3} | 2.97×10^{-2} | 2.48×10^{-5} | 4.84×10^{-3} | 1.52×10^{-4} | 2.53×10^{-4} | 4.80×10^{-3} | 3.48×10^{-2} |
| As | Max | 8.56 | 55.10 | 2.62×10^{-3} | 5.11×10^{-1} | 2.68×10^{-5} | 4.46×10^{-5} | 8.57 | 55.60 |
| | Min | 7.52×10^{-2} | 4.84×10^{-1} | 2.30×10^{-5} | 4.49×10^{-3} | 2.35×10^{-7} | 3.92×10^{-7} | 7.53×10^{-2} | 4.89×10^{-1} |
| | Average | 6.09×10^{-1} | 3.92 | 1.86×10^{-4} | 3.63×10^{-2} | 1.90×10^{-6} | 3.17×10^{-6} | 6.09×10^{-1} | 3.95 |
| Cu | Max | 2.45×10^{-2} | 1.58×10^{-1} | 3.08×10^{-5} | 6.00×10^{-3} | 2.30×10^{-4} | 3.83×10^{-4} | 2.48×10^{-2} | 1.64×10^{-1} |
| | Min | 3.58×10^{-4} | 2.30×10^{-3} | 4.48×10^{-7} | 8.74×10^{-5} | 3.35×10^{-6} | 5.59×10^{-6} | 3.61×10^{-4} | 2.39×10^{-3} |
| | Average | 2.76×10^{-3} | 1.78×10^{-2} | 3.46×10^{-6} | 6.75×10^{-4} | 2.59×10^{-5} | 4.31×10^{-5} | 2.79×10^{-3} | 1.85×10^{-2} |
| Cr | Max | 3.01×10^{-1} | 1.94 | 1.13×10^{-4} | 2.21×10^{-2} | 2.96×10^{-1} | 1.71×10^{-1} | 5.97×10^{-1} | 2.13 |
| | Min | 8.95×10^{-3} | 5.76×10^{-2} | 3.37×10^{-6} | 6.56×10^{-4} | 8.80×10^{-3} | 5.08×10^{-3} | 1.78×10^{-2} | 6.33×10^{-2} |
| | Average | 6.49×10^{-2} | 4.18×10^{-1} | 2.44×10^{-5} | 4.76×10^{-3} | 6.38×10^{-2} | 3.68×10^{-2} | 1.29×10^{-1} | 4.59×10^{-1} |
| HQ | Max | 8.91 | 57.40 | 5.32×10^{-3} | 1.04 | 3.02×10^{-1} | 1.80×10^{-1} | 9.16 | 58.20 |
| | Min | 9.75×10^{-2} | 6.28×10^{-1} | 6.27×10^{-5} | 1.22×10^{-2} | 1.10×10^{-2} | 8.41×10^{-3} | 1.11×10^{-1} | 6.49×10^{-1} |
| | Average | 7.27×10^{-1} | 4.68 | 5.13×10^{-4} | 1.00×10^{-1} | 6.79×10^{-2} | 4.36×10^{-2} | 7.95×10^{-1} | 4.82 |

2.3.2 致癌风险评价

依据《建设用地土壤污染风险评估技术导则》推荐的评估方法, 计算出 6 种土壤暴露途径综合致癌效应的土壤风险控制值见表 4, Cd、As、Cu、Cr 的安全控制值分别为, 9.63×10^{-3} 、 4.07×10^{-3} 、 8.95×10^{-2} 、 1.47×10^{-3} . 依据公式 (10)—(12) 计算得 3 种暴露途径的致癌风险值, 结果见表 7. 由结果可知, As、Cd 两种重金属存在经口摄入、皮肤接触和呼吸吸入 3 种途径的致癌风险, 结果表明, 2 种元素经口摄入对儿童和成人的风险相差较小, 但皮肤接触的致癌风险儿童大于成人, 呼吸吸入途径则表现出了成人的致癌风险高于儿童. Cu 和 Cr 两种元素仅计算出皮肤接触一种途径的致癌风险, 此种途径下 2 种元素对儿童的致癌风险均高于成人. Cd、As、Cu、Cr 对成年人总致癌风险的贡献率分别为: 2.93%、93.67%、0.03%、3.74%, 对儿童的贡献率分别为: 4.47%、51.22%、0.41%、43.90%. 可见成人致癌风险主要为 As 元素, 儿童主要为 As 和 Cr. 由于 As 具备经口摄入、皮肤接触、呼吸吸入等 3 种途径的致癌斜率因子, 且致癌斜率因子相对较高; 导致 As 成为主要的致癌因子^[29]. Cr 主要通过皮肤接触途径影响健康,

Cr 的皮肤接触致癌斜率因子较高, 导致 Cr 对于儿童的 TCR 的总贡献率达到 43.60%, As 经 3 种途径对儿童的致癌风险贡献率 51.22%, 因此, As 和 Cr 成为儿童的主要致癌因子。

表 7 土壤重金属致癌健康风险评估结果

Table 7 Results of carcinogenic health risk assessment of soil heavy metals

| 重金属 Heavy metal | | 经口摄入CRois | | 皮肤接触CRdcs | | 呼吸吸入CRpis | | 致癌风险TCR | |
|--------------------|---------|-----------------------|-----------------------|------------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|------------------------|-----------------------|
| | | 成人Adults | 儿童Children | 成人Adults | 儿童Children | 成人Adults | 儿童Children | 成人Adults | 儿童Children |
| Cd | Max | 5.31×10^{-6} | 8.54×10^{-6} | 4.11×10^{-7} | 2.18×10^{-5} | 1.99×10^{-6} | 8.29×10^{-7} | 7.41×10^{-6} | 3.12×10^{-5} |
| | Min | 6.67×10^{-9} | 1.07×10^{-8} | 1.22×10^{-8} | 3.18×10^{-7} | 2.50×10^{-9} | 1.04×10^{-9} | 2.67×10^{-8} | 3.29×10^{-7} |
| | Average | 2.72×10^{-7} | 4.38×10^{-7} | 8.87×10^{-8} | 2.45×10^{-6} | 1.02×10^{-7} | 4.25×10^{-8} | 4.63×10^{-7} | 2.93×10^{-6} |
| As | Max | 2.03×10^{-4} | 3.26×10^{-4} | 9.82×10^{-7} | 4.79×10^{-5} | 1.90×10^{-6} | 7.92×10^{-7} | 2.06×10^{-4} | 3.66×10^{-4} |
| | Min | 1.78×10^{-6} | 2.87×10^{-6} | 2.92×10^{-8} | 1.42×10^{-6} | 1.67×10^{-8} | 6.96×10^{-9} | 1.84×10^{-6} | 4.91×10^{-6} |
| | Average | 1.44×10^{-5} | 2.32×10^{-5} | 2.12×10^{-7} | 1.03×10^{-5} | 1.35×10^{-7} | 5.63×10^{-8} | 1.48×10^{-5} | 3.36×10^{-5} |
| Cu | Max | — | — | 4.89×10^{-8} | 2.39×10^{-6} | — | — | 4.89×10^{-8} | 2.39×10^{-6} |
| | Min | — | — | 7.14×10^{-10} | 3.48×10^{-8} | — | — | 7.14×10^{-10} | 3.48×10^{-8} |
| | Average | — | — | 5.51×10^{-9} | 2.68×10^{-7} | — | — | 5.51×10^{-9} | 2.68×10^{-7} |
| Cr | Max | — | — | 2.74×10^{-6} | 1.34×10^{-4} | — | — | 2.74×10^{-6} | 1.34×10^{-4} |
| | Min | — | — | 8.15×10^{-8} | 3.97×10^{-6} | — | — | 8.15×10^{-8} | 3.97×10^{-6} |
| | Average | — | — | 5.91×10^{-7} | 2.88×10^{-5} | — | — | 5.91×10^{-7} | 2.88×10^{-5} |
| CR | Max | 2.04×10^{-4} | 3.29×10^{-4} | 4.14×10^{-6} | 1.85×10^{-4} | 2.42×10^{-6} | 1.01×10^{-6} | 2.10×10^{-4} | 4.86×10^{-4} |
| | Min | 1.79×10^{-6} | 2.88×10^{-6} | 1.31×10^{-7} | 8.07×10^{-6} | 1.92×10^{-8} | 8.00×10^{-9} | 1.98×10^{-6} | 1.10×10^{-5} |
| | Average | 1.47×10^{-5} | 2.36×10^{-5} | 8.97×10^{-7} | 4.19×10^{-5} | 2.37×10^{-7} | 9.88×10^{-8} | 1.58×10^{-5} | 6.56×10^{-5} |

注: “—”表示无法计算. Note: “—”Means unable to calculate.

Cd、As、Cu 和 Cr 的致癌风险成人和儿童的 CR 均值均低于表 4 计算的风险控制值, 处于安全范围, 美国环境部对 Cr 和 As 的最大可接受致癌范围为 1.0×10^{-6} — 1.0×10^{-4} [30]。由表 7 可知, 成人和儿童的总致癌风险 (TCR) 均值分别为 1.58×10^{-5} 和 6.56×10^{-5} , 表明研究区域土壤重金属致癌风险整体处于可接受水平。

3 结论(Conclusion)

(1) 贵州油茶产区土壤 Pb、Cd、Hg、As、Cu 和 Cr 6 种重金属平均含量分别为: 46.67、1.46、0.45、19.61、35.57 和 62.71 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 样点间 Pb 含量的标准偏差最大, 约为 54.99%, 其次为 Cu 和 Cr, 分别为 34.93% 和 34.66%, Hg 最低, 约为 0.35%。土壤中有 13.90% 的样点 Cd 含量超过管制值 (GB15618-2018), 0.39% 的样点 Hg 含量超过管制值, 而 Pb、As、Cu 和 Cr 无超过管制值的样点。因此, 研究区域主要受污染的重金属为 Cd, 超过管制值约 14.63% 样点需加强监测和修复, 约 86.37% 的样点土壤适宜油茶种植。

(2) 地积累指数大于 0 的元素为 Hg 和 Cd, 其余重金属均低于 0, 研究区域内主要污染风险来自于 Cd、Hg 两种元素。Cd 的污染程度主要为重度污染风险的样点约占 5.08%, 轻度和中度污染风险样点约占 24.22%, 极严重污染风险约占 0.78%。Hg 污染主要以轻微和轻度污染风险为主, 分别占样点数的 44.75% 和 29.30%, 中度和重度污染风险分别占 9.38% 和 2.73%。而 Pb、As、Cu 轻度和中度污染风险占比均低于 6.00%, 污染程度较低。

(3) 单一元素生态风险 (Ei) 大小依次为: $\text{Hg} > \text{Cd} > \text{As} > \text{Pb} > \text{Cu} > \text{Cr}$ 。除 Hg 和 Cd 外, 轻微污染占比 97.27% 以上, Cd 的污染程度主要集中在中等污染和轻度污染, 样点占比约为 35.94%, 强烈和极强污染风险的样点占比约为 19.53%。Hg 污染程度主要为重度污染风险, 样点占比约为 41.02%, 强烈和极强样点占比 25.39%。Cd 和 Hg 对综合生态风险平均贡献率分别为 30.84% 和 56.35%, 约占总 RI 值约

87.19%, Pb、As、Cu 和 Cr 的平均贡献率不到 7%。由于 Hg 和 Cd 的毒性系数较大, 因此成为潜在生态风险的主要贡献因子。

(4) 贵州油茶产区土壤重金属污染对儿童的总非致癌风险大于成人, 主要的暴露途径为经口摄入, 面临明显的非致癌风险, 主要贡献因子是 As。成年人的致癌风险主要来自 As 元素, 其贡献率占 93.67%, 儿童致癌风险主要来自 As 和 Cr, 其贡献率分别占约 51.22% 和 43.90%, 但综合致癌风险整体处于可接受水平。

参考文献 (References)

- [1] 秦旭芝, 罗志祥, 季文兵, 等. 桂西北地质高背景区有色金属冶炼对周边土壤重金属污染与生态风险评价 [J]. *生态学杂志*, 2021, 40(8): 2324-2333.
QIN X Z, LUO Z X, JI W B, et al. Pollution and ecological risk assessment of heavy metals in surrounding soil by nonferrous metal smelting with high geological background in Northwest Guangxi [J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2021, 40(8) : 2324-2333(in Chinese).
- [2] 黄钟霆, 易盛炜, 陈贝贝, 等. 典型锰矿区周边农田土壤-农作物重金属污染特征及生态风险评价 [J]. *环境科学*, 2022, 43(2): 975-984.
HUANG Z T, YI S W, CHEN B B, et al. Pollution properties and ecological risk assessment of heavy metals in farmland soils and crops around a typical manganese mining area [J]. *Environmental Science*, 2022, 43(2): 975-984(in Chinese).
- [3] LI Z Y, MA Z W, van der KUIJP T J, et al. A review of soil heavy metal pollution from mines in China: Pollution and health risk assessment [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 468/469: 843-853.
- [4] BOŠKOVIĆ-RAKOČEVIĆ L, MILIVOJEVIĆ J, MILOŠEVIĆ T, et al. Heavy metal content of soils and plum orchards in an uncontaminated area [J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2014, 225(11): 1-13.
- [5] 马鑫鹏. 泰来县耕地土壤重金属污染评价及安全利用分区研究 [D]. 哈尔滨: 东北农业大学, 2019.
MA X P. Heavy metal pollution assessment and safety utilization zoning of cultivated soil in Tailai County [D]. Harbin: Northeast Agricultural University, 2019(in Chinese).
- [6] 曾庆庆, 付天岭, 邹洪琴, 等. 贵州省某县辣椒种植区土壤重金属空间分布特征及来源解析 [J]. *农业环境科学学报*, 2021, 40(1): 102-113.
ZENG Q Q, FU T L, ZOU H Q, et al. Spatial distribution characteristics and sources of heavy metals in soil in a pepper growing area of County in Guizhou Province, China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2021, 40(1): 102-113(in Chinese).
- [7] 苏翠兰, 杨乐. 贵州省望谟县耕地土壤重金属含量特征及影响因素 [J]. *现代矿业*, 2020, 36(7): 17-19,22.
SU C L, YANG L. Characteristics of heavy metal content in cultivated soil of Wangmo County, Guizhou Province and their influencing factors [J]. *Modern Mining*, 2020, 36(7): 17-19,22(in Chinese).
- [8] 汤向宸. 万山汞矿区重金属污染特征及环境风险评估 [D]. 贵阳: 贵州师范大学, 2020.
TANG X C. Heavy metal pollution characteristics and environmental risk assessment in Wanshan mercury mining area [D]. Guiyang: Guizhou Normal University, 2020(in Chinese).
- [9] HAKANSON L. An ecological risk index for aquatic pollution control. a sedimentological approach [J]. *Water Research*, 1980, 14(8): 975-1001.
- [10] HU B F, WANG J Y, JIN B, et al. Assessment of the potential health risks of heavy metals in soils in a coastal industrial region of the Yangtze River Delta [J]. *Environmental Science and Pollution Research International*, 2017, 24(24): 19816-19826.
- [11] YANG J, LV F H, ZHOU J C, et al. Health risk assessment of vegetables grown on the contaminated soils in Daye City of Hubei Province, China [J]. *Sustainability*, 2017, 9(11): 2141.
- [12] WANG M L, LIU R H, LU X Y, et al. Heavy metal contamination and ecological risk assessment of swine manure irrigated vegetable soils in Jiangxi Province, China [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2018, 100(5): 634-640.
- [13] ZHU D W, WEI Y, ZHAO Y H, et al. Heavy metal pollution and ecological risk assessment of the agriculture soil in Xunyang mining area, Shaanxi Province, northwestern China [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2018, 101(2): 178-184.
- [14] RAHMAN M S, BISWAS P K, AL HASAN S M, et al. The occurrences of heavy metals in farmland soils and their propagation into paddy plants [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2018, 190(4): 201.
- [15] 中华人民共和国环境保护部. 土壤和沉积物 12 种金属元素的测定 王水提取-电感耦合等离子体质谱法: HJ 803—2016 [S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2016.
Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. Soil and sediment-Determination of aqua regia extracts of 12 metal elements-Inductively coupled plasma mass spectrometry: HJ 803 —2016 [S]. Beijing: China Environment Science Press, 2016(in Chinese).

- [16] 中华人民共和国环境保护部. 土壤和沉积物 汞、砷、硒、铋、锑的测定 微波消解/原子荧光法: HJ 680—2013[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2014.
Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. Soil and sedimen—determination of mercury, arsenic, selenium, bismuth, antimony—microwave dissolution/atomic fluorescence spectrometry: HJ 680—2013[S]. Beijing: China Environment Science Press, 2014(in Chinese).
- [17] WANG N, HAN J C, WEI Y, et al. Potential ecological risk and health risk assessment of heavy metals and metalloid in soil around Xunyang mining areas [J]. *Sustainability*, 2019, 11(18): 4828.
- [18] 蔡大为, 李龙波, 蒋国才, 等. 贵州耕地主要元素地球化学背景值统计与分析 [J]. *贵州地质*, 2020, 37(3): 233-239.
CAI D W, LI L B, JIANG G C, et al. Statistics and analysis of geochemical backgrounds of main elements of cultivated land in Guizhou Province [J]. *Guizhou Geology*, 2020, 37(3): 233-239(in Chinese).
- [19] 中华人民共和国环境保护部. 污染场地风险评估技术导则: HJ 25.3—2014[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2014.
Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. Technical guidelines for risk assessment of contaminated sites: HJ 25.3—2014[S]. Beijing: China Environment Science Press, 2014(in Chinese).
- [20] 崔云霞, 曹炜琦, 李伟迪, 等. 长三角农业活动区农田土壤重金属风险评价 [J]. *农业环境科学学报*, 2021, 40(7): 1441-1450.
CUI Y X, CAO W Q, LI W D, et al. Risk assessment of heavy metals in farmland soils in an agricultural region in the Yangtze River Delta [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2021, 40(7): 1441-1450(in Chinese).
- [21] HOU S N, ZHENG N, TANG L, et al. Effect of soil pH and organic matter content on heavy metals availability in maize (*Zea mays* L.) rhizospheric soil of non-ferrous metals smelting area [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2019, 191(10): 634.
- [22] 生态环境部, 国家市场监督管理总局. 土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准: GB 15618—2018[S]. 北京: 中国标准出版社, 2013.
Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, State Administration for Market Regulation. . Soil environmental quality Risk control standard for soil contamination of agricultural land: GB 15618—2018[S]. Beijing: Standards Press of China, 2013(in Chinese).
- [23] HAN Y X, NI Z L, LI S L, et al. Distribution, relationship, and risk assessment of toxic heavy metals in walnuts and growth soil [J]. *Environmental Science and Pollution Research International*, 2018, 25(18): 17434-17443.
- [24] TOKATLI C, UĞURLUOĞLU A, KÖSE E, et al. Ecological risk assessment of toxic metal contamination in a significant mining basin in Turkey [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2021, 80(1): 1-19.
- [25] 雷雷佳, 刘俊, 刘卫国, 等. 工业园周边土壤重金属污染特征及潜在生态风险评价 [J]. *江苏农业科学*, 2021, 49(16): 227-233.
LEI L J, LIU J, LIU W G, et al. Pollution characteristics and potential ecological risk assessment of heavy metals in soil around industrial park [J]. *Jiangsu Agricultural Sciences*, 2021, 49(16): 227-233(in Chinese).
- [26] 尹宇莹, 彭高卓, 谢意南, 等. 洞庭湖表层沉积物中营养元素、重金属的污染特征与评价分析 [J]. *环境化学*, 2021, 40(8): 2399-2409.
YIN Y Y, PENG G Z, XIE Y N, et al. Characteristics and risk assessment of nutrients and heavy metals pollution in sediments of Dongting Lake [J]. *Environmental Chemistry*, 2021, 40(8): 2399-2409(in Chinese).
- [27] 郑堃, 任宗玲, 覃小泉, 等. 韶关工矿区水稻土和稻米中重金属污染状况及风险评价 [J]. *农业环境科学学报*, 2018, 37(5): 915-925.
ZHENG K, REN Z L, QIN X Q, et al. Status and risk assessment of heavy metal pollution in paddy soil and rice grains from the industrial and mining area of Shaoguan, Guangdong Province [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2018, 37(5): 915-925(in Chinese).
- [28] 李星谕, 毛瑶, 陈展乐, 等. 华中地区冬季灰霾天气下PM_{2.5}中重金属污染特征及健康风险评价: 以湖北黄冈为例 [J]. *环境科学*, 2021, 42(10): 4593-4601.
LI X Y, MAO Y, CHEN Z L, et al. Characteristics and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} under winter haze conditions in central China: A case study of Huanggang, Hubei Province [J]. *Environmental Science*, 2021, 42(10): 4593-4601(in Chinese).
- [29] 谢团辉, 郭京霞, 陈炎辉, 等. 福建省某矿区周边土壤-农作物重金属空间变异特征与健康风险评价 [J]. *农业环境科学学报*, 2019, 38(3): 544-554.
XIE T H, GUO J X, CHEN Y H, et al. Spatial variability and health risk assessment of heavy metals in soils and crops around the mining area in Fujian Province, China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2019, 38(3): 544-554(in Chinese).
- [30] 林承奇, 蔡宇豪, 胡恭任, 等. 闽西南土壤-水稻系统重金属生物可给性及健康风险 [J]. *环境科学*, 2021, 42(1): 359-367.
LIN C Q, CAI Y H, HU G R, et al. Bioaccessibility and health risks of the heavy metals in soil-rice system of southwest Fujian Province [J]. *Environmental Science*, 2021, 42(1): 359-367(in Chinese).