



# 土壤—农产品重金属累计特征及健康风险评价

——以三江平原东部某典型农业区为例

黄星,张永林\*,徐斌,张文俊,陈亚男,王俊亮,陈璐璐

(山东省地质矿产勘查开发局第二水文地质工程地质大队(山东省鲁北地质工程勘察院),山东 德州 253000)

**摘要:**为掌握三江平原东部某典型农业区农田土壤和农产品重金属累计特征及评价其健康风险,本文以三江平原东部面积约180 km<sup>2</sup>的某典型水稻种植区为研究对象,采用梅花法进行布点取样,共采集土壤样品和农产品样品各50件,采用电感耦合等离子体质谱仪、原子荧光分光光度计对土壤和农产品中Cr、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb、As、Hg重金属含量进行测定,采用污染负荷指数法分析土壤重金属污染水平,运用重金属健康风险评估模型评估农产品中重金属的非致癌和致癌风险。结果表明,研究区土壤重金属近半数点位处于中等污染水平,水稻中Ni和As超标可能造成食品安全风险。研究区水稻样品中As是非致癌风险的主要污染物,通过摄入研究区水稻暴露于重金属As会对人类健康造成非致癌风险;Ni、Pb、As和Cr是致癌风险的主要污染物,通过摄入研究区水稻暴露于Ni、Pb、As和Cr将会对人类造成致癌风险。研究结果可为粮食作物安全和环境管理提供决策依据。

**关键词:**土壤—农产品;重金属;健康风险;三江平原东部

**中图分类号:**X53

**文献标识码:**A

**doi:**10.12128/j.issn.1672-6979.2024.08.003

**引文格式:**黄星,张永林,徐斌,等.土壤—农产品重金属累计特征及健康风险评价——以三江平原东部某典型农业区为例[J].山东国土资源,2024,40(8):17-22. HUANG Xing, ZHANG Yonglin, XU Bin, et al. Accumulation Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in Soil—agricultural Products—Taking a Typical Agricultural Area in Eastern Sanjiang Plain as an Example[J]. Shandong Land and Resources, 2024, 40(8): 17-22.

## 0 引言

随着工业的快速发展,土壤和农产品中重金属污染问题越来越受到全球的关注<sup>[1]</sup>。不同于有机污染物、重金属污染物不易降解,容易在农产品中富集。摄入农产品是重金属进入人体的主要途径,从而引发相关的健康风险,如皮肤癌、肺癌和心血管疾病等。以往的研究表明,我国受重金属污染的耕地达2 000万hm<sup>2</sup>,受污染农产品达1 200万t<sup>[2]</sup>。因此,对土壤—农产品重金属累计特征和健康风险评价的需求日益增加。

重金属的健康风险可分为非致癌风险和致癌风险。其中,目标危险系数(THQ)、危害指数(HI)和目标致癌风险指数(TCR)是评价重金属非致癌风

险和致癌风险的常用指标<sup>[3]</sup>。近年来,针对农田土壤—农作物系统的重金属污染,前人已在健康风险评估方面开展了许多研究工作。熊霜<sup>[4]</sup>对安徽省淮北煤田临涣矿区玉米重金属健康风险进行评估,发现重金属对儿童引起的健康风险均大于成人,且健康风险指数的大小为Pb>Ni>Cu>Cd>Zn>Cr。叶脉<sup>[5]</sup>以鼻咽癌高发区四会市农田系统为研究对象,对食用当地稻米引发的健康风险进行评估,发现食用当地稻米具有一定的健康风险,且稻米中的As可能与当地鼻咽癌高发有关。宋亮<sup>[6]</sup>对郓城县北部地区土壤元素地球化学背景值特征,结果表明工业园区附近的土壤中镉元素有超标趋势,对周边蔬菜种植带来潜在的健康风险。王红晋<sup>[7]</sup>对济南市土壤开展了地球化学背景值及环境质量评价,结果表明

收稿日期:2024-03-06;修订日期:2024-05-10;编辑:陶卫卫

基金项目:临邑县农业农村局第三次土壤普查项目(SDGP371424000202302000091)

作者简介:黄星(1991—),男,山西永和人,工程师,主要从事水文地质勘查、地热地质工作;E-mail:597639206@qq.com

\* 通讯作者:张永林(1977—),男,甘肃礼县人,工程师,主要从事地质矿产勘查工作;E-mail:ylzh821077@126.com

土壤质量较差区域分布在工况企业附近,与人类活动密切相关。

然而,以往的研究只考虑了农产品中少数重金属造成的健康风险,或只评估其非致癌风险<sup>[8-9]</sup>。因此,本研究在获取区内土壤重金属 Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Hg 和 Pb 污染综合信息的基础上,分析测定农产品中重金属的含量,评估农产品中重金属的非致癌和致癌风险,为确保粮食作物安全和环境管理提供决策依据。

1 研究区概况

研究区地处三江平原东部,是典型的以水稻为主要粮食作物的农业区,面积约 180 km<sup>2</sup>。该地区属半湿润半干旱大陆性季风气候,年平均气温为 3.6℃,年平均降水量为 505 mm。该地区黑土肥沃,有机质含量较高。近年来随着农业的快速发展和化肥、农药的广泛使用,土壤质量大幅度下降。

2 材料与方法

2.1 样品采集与测试

本研究采样点选择梅花法进行布点,采样深度为 0~20 cm。为提高样品的代表性,在每个采样点周边 1 m×1 m 的范围内采集 4 个子样均匀混合后按四分法缩分取样,采样过程中避开外来土并去掉土壤表面的杂物和砾石等。在土壤采样点相同位置处同步采集水稻籽粒样品,用去离子水洗净后装入布袋。本研究共采集土壤样品 50 件,农产品样品 50 件,研究区位置和采样点分布示意图见图 1。土壤样品自然风干后,用小木锤压碎后过 2 mm 筛。水稻样品在 38℃下烘干 48 h 除去水分。土壤样品用硝酸和盐酸消解,水稻籽粒样品用硝酸和过氧化氢做消解液进行微波消解。Cr、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb 采用电感耦合等离子体质谱仪测定,As、Hg 采用原子荧光分光光度计进行测定。测试数据要求在重复性条件下获得两次独立测定结果的绝对差值不得超过算术平均值的 20%<sup>[10]</sup>。

2.2 污染负荷指数法

污染负荷指数法可以确定土壤重金属污染水平,也可以直观地评价整个研究区域的污染情况,某一采样点的污染负荷指数公式如式(1)、式(2)<sup>[11]</sup>:

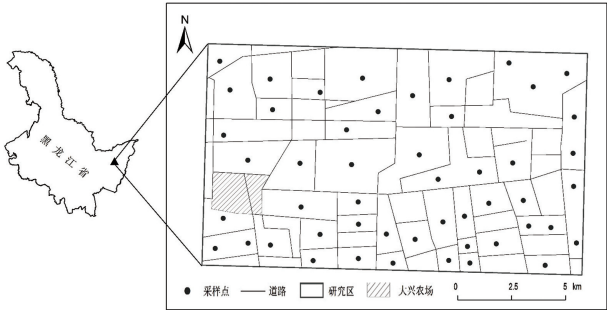


图 1 研究区位置和采样点分布示意图

$$C_f^i = \frac{C_s^i}{C_b^i} \tag{1}$$

$$PLI = (C_f^1 \times C_f^2 \times C_f^3 \times \cdots \times C_f^n)^{\frac{1}{n}} \tag{2}$$

式中: $i$  为重金属元素的种类; $C_s^i$  和  $C_b^i$  分别为重金属元素  $i$  的实测值和背景值(mg/kg); $C_f^i$  为重金属元素的最高污染系数(无量纲),其中当  $C_f^i < 1$ 、 $1 \leq C_f^i < 3$ 、 $3 \leq C_f^i < 6$  和  $C_f^i \geq 6$  时,其污染程度分别为低、中等、重和严重污染水平; $PLI$  为某一点的负荷污染指数(无量纲),其中当  $PLI < 1$ 、 $1 \leq PLI < 2$ 、 $2 \leq PLI < 3$  和  $PLI \geq 3$  时,其污染程度分别为无污染、中等污染、强污染和极强污染<sup>[12]</sup>。

2.3 水稻重金属健康风险评估模型

2.3.1 非致癌风险

利用目标危害商( $THQ$ )评估水稻重金属对人体造成的非致癌风险,其计算公式如式(3)<sup>[13-14]</sup>:

$$THQ = \frac{C \times DI \times EF \times ED_{total}}{RfD \times BW \times ATn} \tag{3}$$

式中: $C$  为水稻中重金属的平均含量(mg/kg); $DI$  为水稻的摄入量(kg/d),儿童和成人分别取 0.2 和 0.4 kg/d; $EF$  为暴露频率(d/a),取 350 d/a; $ED_{total}$  为暴露时间(a),儿童和成人分别取 6 和 24 a; $RfD$  为重金属暴露参考剂量(mg/(kg·d)),Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Hg 和 Pb 的值分别为 0.003 mg/(kg·d)、0.02 mg/(kg·d)、0.04 mg/(kg·d)、0.3mg/(kg·d)、0.0003 mg/(kg·d)、0.001 mg/(kg·d)、0.0003 mg/(kg·d)和0.0035 mg/(kg·d); $BW$  为平均体重(kg),儿童和成人分别为 19.2 kg 和 61.8 kg; $ATn$  为平均非致癌时间(d), $ED_{total} \times 365$ <sup>[15]</sup>。

假定重金属之间不存在拮抗和协同作用,通过对每种重金属的目标危害商进行叠加,可得到重金属对人体造成的总体非致癌风险,并用危害指数( $HI$ )来表示。其计算公式如式(4)<sup>[16]</sup>:

$$HI = \sum_{i=1}^n THQ_i \tag{4}$$

当  $THQ$  或  $HI < 1$  时,表明水稻中的重金属不会造成非致癌风险;当  $THQ$  或  $HI > 1$  时,表明水稻中的重金属有可能造成非致癌风险。

2.3.2 致癌风险

Cr、Ni、As、Cd 和 Pb 等重金属具有一定的致癌性。目标致癌风险指数( $TCR$ )可用于评估人群暴露于水稻中的致癌重金属而在一生中罹患癌症的可能性。其计算公式如式(5)<sup>[17]</sup>:

$$TCR = \frac{C \times DI \times EF \times ED_{total} \times SF}{BW \times ATc} \tag{5}$$

式中: $ATc$  为平均致癌时间(d),取 27 740 d; $SF$  为致癌斜率因子( $kg \cdot d/mg$ ),对于 Cr、Ni、As、Cd 和 Pb 分别取 0.50、1.70、1.50、0.38 和 15.00<sup>[15]</sup>;当  $TCR$  在  $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-4}$  时,表明水稻中的重金属不会造成致癌风险;当  $TCR > 1 \times 10^{-4}$  时,表明水稻中的重金属有可能造成致癌风险。

表 1 研究区土壤重金属含量统计表

元素	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Hg	Pb
最大值	89.60	39.60	35.80	85.10	15.90	0.13	39.70	41.30
最小值	62.30	23.50	18.60	50.90	1.20	0.06	21.50	19.30
均值	76.80	27.60	27.50	67.40	9.00	0.09	30.60	29.60
标准差	5.68	4.14	3.54	7.62	1.65	0.02	3.65	3.76
中位值	74.69	25.65	27.53	56.37	5.60	0.07	29.20	25.13
变异系数	0.10	0.11	0.18	0.15	0.45	0.18	0.19	0.23
土壤背景值	70.00	28.00	24.00	72.00	11.00	0.09	35.00	24.00

注:变异系数(无量纲),其他元素单位为 mg/kg。

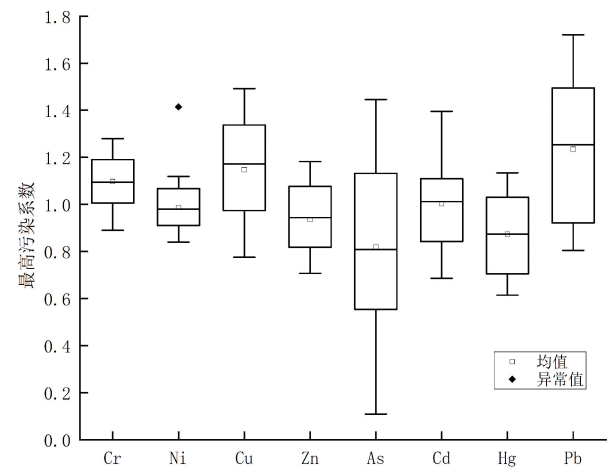


图 2 土壤重金属污染评价结果箱线图

土壤重金属污染评价结果如图 2 所示。从图 2 中可以看出,研究区土壤重金属的最高污染系数由大到小顺序为 Pb(1.23)>Cu(1.15)>Cr(1.10)>Cd

2.4 数据处理

本文应用 SPSS Statistics 26、Excel 2021 软件进行土壤重金属指标的统计性分析,运用 Origin 2021 软件绘制箱线图。

3 结果与讨论

3.1 土壤重金属含量特征

研究区土壤重金属元素统计见表 1。土壤中重金属 Cr 的平均含量最高,为 76.80 mg/kg,其次是 Zn 平均含量 67.40 mg/kg,再次为 Cu 平均含量 27.50 mg/kg。与土壤背景值<sup>[18]</sup>相比,研究区农田土壤重金属 Cr、Cu、Pb 的平均含量均不同程度地超过了研究区土壤元素背景值。对于重金属 Ni、Zn、As、Cd 和 Hg,尽管平均含量低于土壤背景值,但仍有 38.00%、34.00%、42.00%、32.00%和 26.00%的土壤样品超过研究区土壤背景值。

(0.99)>Ni(0.99)>Zn(0.94)>Hg(0.87)>As(0.82),表明土壤重金属 Pb、Cu、Cr 处于中等污染水平,且这些重金属很可能是研究区最主要的污染物。研究区土壤样品的  $PLI$  值介于 0.61~1.27 之间,平均值为 0.98,其中 44%土壤样品的  $PLI$  值大于 1,表明研究区土壤重金属近半数点位处于中等污染水平。以往的研究指出,过度使用化肥和杀虫剂通常会导致土壤中铬、铜、镍和铅的富集<sup>[19-21]</sup>。因此,人为活动可能是研究区土壤重金属的主要来源。

3.2 水稻重金属含量特征

研究区农产品水稻重金属元素统计见表 2。以《食品中污染物限量》(GB 2762—2005)《食品中锌限量卫生标准》(GB 13106—91)《食品中铜限量卫生标准》(GB 15199—94)以及《食品中镍限量卫生标准的研究》中规定的农产品重金属最大允许含量

作为标准值,水稻中重金属 Ni 和 As 的最大检测浓度超出标准值,分别为 0.59 mg/kg 和 0.19 mg/kg,最大超标倍数分别为 0.475 和 0.27。农产品重金属污染评价结果如图 3 所示。从图 3 中可以看出,研究区水稻中重金属含量平均值均低于标准值,部分

样点中 Ni 和 As 含量超过标准值,点位占总点位比例分别为 26% 和 32%。因此研究区水稻中 Ni 和 As 的超标造成食品安全风险,有必要进行健康风险评价。

表 2 研究区农产品重金属含量统计表

元素	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Hg	Pb
最大值	0.29	0.59	3.89	25.01	0.19	0.005	0.005	0.05
最小值	0.02	0.10	0.15	15.35	0.004	0.001	0.001	0.010
均值	0.20	0.35	2.78	19.54	0.08	0.0038	0.0036	0.025
标准差	0.14	0.32	0.60	0.36	0.25	0.56	0.02	1.50
中位值	0.14	0.28	1.98	19.56	0.11	0.00	0.00	0.03
变异系数	0.70	0.91	0.22	0.02	3.05	147.37	4.47	60.00
最大允许量	1.00	0.40	10.00	50.00	0.15	0.20	0.02	0.20

注:变异系数(无量纲),其他元素单位为 mg/kg。

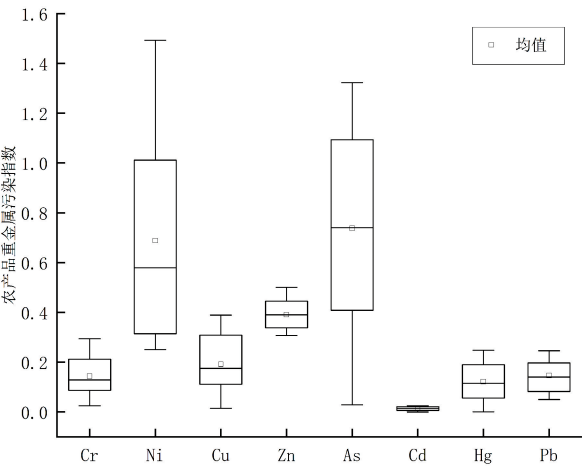


图 3 农产品重金属污染评价结果箱线图

3.3 水稻重金属健康风险评价

表 3 为研究区农产品非致癌风险评估 THQ

表 3 研究区农产品非致癌风险评估值

重金属		Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Hg	Pb	HI
THQ	儿童	0.67	0.17	0.69	0.65	2.73	0.04	0.12	0.07	5.14
	成人	0.41	0.11	0.43	0.40	1.70	0.02	0.07	0.04	3.20
贡献比率/%		12.94	3.40	13.49	12.65	53.07	0.74	2.33	1.39	100.00

表 4 为研究区农产品致癌风险评估 TCR 值,可以看出成人的 TCR 值高于儿童,其中 Ni 的 TCR 值最高,其次为 Pb、As、Cr、Cd。儿童 Ni 和 Pb 的 TCR 值均大于  $1\times10^{-4}$ ,表明通过摄入水稻暴露于重金属 Ni、Pb 会对儿童健康造成致癌风险;成人 Ni、Pb、As 和 Cr 的 TCR 值均大于  $1\times10^{-4}$ ,表明通

过摄入水稻暴露于重金属 Ni、Pb、As 和 Cr 会对成人健康造成致癌风险。研究区水稻样品中 Cd 的 TCR 值在  $2.83\times10^{-6}\sim1.14\times10^{-6}$  之间,表明样品中 Cd 对于成人和儿童的致癌风险可忽略。此外,不同重金属对致癌风险的贡献比率也存在明显的差异。其中,Ni 的贡献比率最大为 49.81%,其次为



Pb、As 和 Cr,Cd 的贡献比率则最小。综合以上表明,研究区水稻样品中重金属 Cd 造成的致癌风险可以忽略不计,而暴露于 Ni、Pb、As 和 Cr 将会对人类造成致癌风险。

表 4 研究区农产品致癌风险评估值

重金属		Cr	Ni	As	Cd	Pb
TCR	儿童	$7.89 \times 10^{-5}$	$4.69 \times 10^{-4}$	$9.70 \times 10^{-5}$	$1.14 \times 10^{-6}$	$2.96 \times 10^{-4}$
	成人	$1.96 \times 10^{-4}$	$1.17 \times 10^{-3}$	$2.41 \times 10^{-4}$	$2.83 \times 10^{-6}$	$7.35 \times 10^{-4}$
贡献比率/%		8.37	49.81	10.30	0.12	31.40

4 结论

(1)研究区土壤中重金属 Cr、Cu、Pb 的平均含量均超过研究区土壤元素背景值,土壤中 8 种重金属的最高污染系数由大到小依次为 Pb(1.23)>Cu(1.15)>Cr(1.10)>Cd(0.99)>Ni(0.99)>Zn(0.94)>Hg(0.87)>As(0.82),土壤样品的 *PLI* 值介于 0.61~1.27 之间,平均值为 0.98,其中 44%土壤样品的 *PLI* 值大于 1,土壤重金属近半数点位处于中等污染水平。

(2)研究区水稻中重金属含量平均值均低于标准值,部分样点重金属 Ni 和 As 含量超过标准值,点位占总点位比例分别为 26%和 32%,其最大超标倍数分别为 0.475 和 0.27,表明研究区水稻中 Ni 和 As 超标可能造成食品安全风险。

(3)研究区水稻样品中 As 是非致癌风险的主要污染物,对于儿童和成人,As 的非致癌风险值 *THQ* 值均大于 1,表明通过摄入研究区水稻暴露于重金属 As 会对人类健康造成非致癌风险;Ni、Pb、As 和 Cr 是致癌风险的主要污染物,通过摄入研究区水稻暴露于 Ni、Pb、As 和 Cr 将会对人类造成致癌风险。

(4)针对研究区土壤重金属污染评价和水稻重金属健康风险评价,建议下一步研究中开展针对 Ni、Pb、As、Cr、Cu 等重金属的协同控制措施,降低食用的健康风险。

参考文献:

[1] 韩晋仙,李二玲.山西寿阳县玉米籽粒重金属含量及健康风险评价[J].干旱区资源与环境,2022,36(5):160-165.

[2] WU G,KANG H B,ZHANG X Y,et al.A critical review on the bioemoval of hazardous heavy metals from contaminated soils:issues,progress,eco-environmental concerns and opportunities[J].Journal of Hazardous Materials,2010,174 (112/3):1-8.

[3] 胡宇楠,林承奇,黄华斌.九龙江流域稻米重金属生物可给性及食用健康风险[J/OL].环境化学:1-10[2022-05-27].http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.1844.X.20220511.1309.035.

[4] 熊霜,桂和荣,彭位华.矿区土壤-玉米重金属富集及健康风险[J].科学技术与工程,2017,17(8):80-86.

[5] 叶脉,张景茹,张路路,等.广东鼻咽癌高发区土壤-作物系统重金属迁移特征及健康风险评价[J].环境科学,2020,41(12):5579-5588.

[6] 宋亮,白新飞,杨时骄,等.郓城县北部地区土壤元素地球化学背景值特征[J].山东国土资源,2024,40(1):31-36.

[7] 王红晋,郭艳,任文凯,等.济南市土壤地球化学背景值及环境质量评价[J].山东国土资源,2021,37(12):50-55.

[8] VATANPOUR N,FEIZY J,TALOUKI HH,et al.The high levels of heavy metal accumulation in cultivated rice from the Tajan river basin: Health and ecological risk assessment[J].Chemosphere,2020,245:125639.

[9] BIAN B,LIN C,LV L.Health risk assessment of heavy metals in soil-plant system amended with biogas slurry in Taihu basin,China[J].Environmental Science and Pollution Research,2016,23(17):16955-16964.

[10] GB 5009.268-2016.食品安全国家标准 食品中多元素的测定[S].

[11] TOMLINSON DL,WILSON IG,HARRIS C R,et al.Problems in the assessment of heavy-metal levels in estuaries and the formation of a pollution index[J].Helgolinder Meeresuntersuchungen,1980,33(1):566-575.

[12] 唐雪平,李静,庄马展,等.厦门集美杏林湾水库底泥重金属污染状况评价[J].华侨大学学报(自然科学版),2024,45(2):262-270.

[13] DING X G,YE S Y,LAWS E A,et al. The concentration distribution and pollution assessment of heavy metals in surface sediments of the Bohai Bay,China[J]. Marine Pollution Bulletin,2019,149:110497.

[14] 孙亚芳,王祖伟,孟伟庆,等.天津污灌区小麦和水稻重金属的含量及健康风险评价[J].农业环境科学学报,2015,34(4):679-685.

[15] HJ25.3-2019.建设用地土壤污染风险评估技术导则[S].

[16] ZANG F,WANG S L,NAN Z R,et al. Accumulation, spatio-temporal distribution, and risk assessment of heavy metals in the soil-corn system around a polymetallic mining area from the Loess Plateau, northwest China [J]. Geoderma,

2017,305:188-196.

[17] LIU Y M,LIU D Y,ZHANG W,et al.Health risk assessment of heavy metals(Zn,Cu,Cd,Pb,As and Cr)in wheat grain receiving repeated Zn fertilizers[J].Environmental Pollution,2020,257:113581.

[18] 迟清华,鄢明才.应用地球化学元素丰度数据手册[M]. 北京:地质出版社,2007:87-88.

[19] CHEN T,LIU X M,ZHU M Z,et al.Identification of trace element sources and associated risk assessment in vegetable soils of the urban-rural transitional area of Hangzhou,China[J]. Environmental Pollution,2008,151(1):67-78.

[20] CHEN H Y,TENG Y G,LU S J,et al.Contamination features and health risk of soil heavy metals in China[J].Science of the Total Environment,2015,512:143-153.

[21] JAYASUMANA C,FONSEKA S,FERNANDO A,et al. Phosphate fertilizer is a main source of arsenic in areas affected with chronic kidney disease of unknown etiology in Sri Lanka[J]. Springerplus,2015(4):90.

Accumulation Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in Soil—agricultural Products

——Taking a Typical Agricultural Area in Eastern Sanjiang Plain as an Example

HUANG Xing, ZHANG Yonglin, XU Bin, ZHANG Wenjun, CHEN Ya’nan, WANG Junliang, CHEN Lulu

(No.2 Hydrogeological Engineering Geological Brigade of Shandong Provincial Bureau of Geology and Mineral Resources(Lubei Geo-engineering Exploration Institute) , Shandong Dezhou 253000, China)

**Abstract:** In order to grasp the cumulative characteristics of heavy metals in farmland soil and agricultural products in a typical agricultural area in eastern Sanjiang plain and evaluate their health risks, taking a typical rice planting area with an area of about 180km<sup>2</sup> in eastern Sanjiang plain as the research object, by using plum blossom method for sampling, a total of 50 soil and agricultural product samples have been collected. By using inductively coupled plasma mass spectrometry and atomic fluorescence spectrophotometry, the content of Cr, Ni, Cu, Zn, Cd, Pb, As and Hg heavy metals in soil and agricultural products have been measured. The pollution load index method has been used to analyze the level of soil heavy metal pollution, and a heavy metal health risk assessment model has been used to evaluate the non carcinogenic and carcinogenic risks of heavy metals in agricultural products. It is indicated that nearly half of the soil heavy metal sites in the study area are at a moderate pollution level, and excessive Ni and As in rice may cause food safety risks. After conducting a heavy metal health risk assessment, it is found that As is the main non carcinogenic pollutant in the rice samples from the study area. Exposure to heavy metal As by ingesting rice from the study area can pose a non carcinogenic risk to human health; Ni, Pb, As, and Cr are the main pollutants at risk of carcinogenesis. Exposure to Ni, Pb, As and Cr through ingestion of rice in the study area will pose a carcinogenic risk to humans.The research results will provide a decision-making basis for food crop safety and environmental management.

**Key words:** Soil—agricultural products; heavy metal; health risk; eastern Sanjiang plain