

来源于土壤和灌溉水的砷在水稻根表及其体内的富集特性

刘文菊^{1,2}, 朱永官², 胡莹², 赵全利¹

(1. 河北农业大学资源与环境学院, 保定 071000; 2. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085)

摘要:采用土壤-玻璃珠联合培养的方式,选择2个氧化能力不同的水稻品种 YY-1、94D-64(品系)和采自浙江富阳的土壤(砷的本底值为 $13.8 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$),并设灌溉清水和含砷水2个处理(即在分蘖期、拔节期、孕穗期、开花期和灌浆期5个生育阶段灌溉含砷污水,随灌溉水进入土壤中砷的浓度为 $3.2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$),研究了砷在土壤-根表铁氧化物-水稻系统中的累积规律以及土壤和灌溉水对水稻秸秆和籽粒富集砷的贡献程度。结果表明,水稻的秸秆生物量及其籽粒产量并没有受到不同来源砷的显著影响;灌溉含砷水处理的两品系水稻根表铁氧化物沉积的数量(YY-1: $196 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 94D-64: $75.8 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$)高于对照(YY-1: $175 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 94D-64: $60.1 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$),但差异不显著。然而,在水稻5个不同的生育期灌溉含砷水均显著增加了砷在其根表及其体内不同部位的富集(94D-64 粒粒中砷含量除外)。没有灌溉含砷水的对照其秸秆和籽粒中累积的砷来源于土壤,而砷处理的水稻其秸秆和籽粒中富集的砷则来源于土壤和灌溉的含砷水。土壤对 YY-1 和 94D-64 秸秆中富集砷的贡献率分别为 76.5% 和 71.0%,灌溉水的贡献率分别为 23.5% 和 29.0%,2个水稻品系之间没有明显差异。YY-1 粒粒中的砷 66.4% 来源于土壤,33.6% 来源于含砷灌溉水,灌溉水对该品系籽粒中砷的富集贡献率较高。另一品系 94D-64 粒粒中砷 84.8% 来源于土壤,15.2% 由灌溉水贡献,灌溉水对此品系籽粒累积砷的贡献率较低。来源于土壤和灌溉水的砷在水稻籽粒中的富集没有超出我国的国家食品卫生标准($0.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)。

关键词:砷; 铁氧化物; 水稻; 含砷灌溉水

中图分类号:X131.3; X171.5 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2008)04-0862-07

Effects of Arsenic from Soil and Irrigation-Water on As Accumulation on the Root Surfaces and in Mature Rice Plants (*Oryza sativa L.*)

LIU Wen-ju^{1,2}, ZHU Yong-guan², HU Ying², ZHAO Quan-li¹

(1. College of Recourses and Environmental Sciences, Agricultural University of Hebei, Baoding 071000, China; 2. Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China)

Abstract: A compartmented soil-glass bead culture system was used to investigate characteristics of arsenic accumulation in iron plaque and in mature rice plants irrigated using water with arsenic in greenhouse. Arsenic was supplied as a solution of $\text{Na}_3\text{AsO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ at the following stages: tillering, stem elongation, booting, flowering and grain filling. The whole plant was separated into four parts and As concentrations were analyzed in DCB (dithionite-citrate-bicarbonate)-extraction, root, straw, rice husk and grain respectively. The results show that irrigation-water with arsenic has no significant effect on biomass of straw and grain. Arsenic concentrations are distributed in different components of mature rice with the ranking of iron plaque > root > straw > husk > grain. Arsenic in straw and grain just derive from soil in control, and derive from soil and irrigation-water in arsenic treatment. About 76.5% and 71.0% of total arsenic in rice straw are from soil for lines of YY-1 and 94D-64 respectively. There is no significant difference between two lines. However, about 33.6% of total arsenic in grain of YY-1 comes from irrigation-water with arsenic, and only 15.2% of total arsenic in grain of 94D-64 is from irrigation-water with arsenic. There is a significant difference between YY-1 and 94D-64. Arsenic concentrations in rice grain are lower than the food safety limitation in China ($0.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)。

Key words: arsenic; iron plaque; rice; irrigation-water with arsenic

砷作为一种有毒且有致癌作用的元素广泛存在于土壤环境中。土壤中的砷主要来源于2个途径:自然成因和人为因素。自然土壤中砷的背景值一般为 $5 \sim 10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (世界范围)^[1,2],在我国土壤中,砷的背景值为 $11.2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ^[3]。用含砷污水或砷污染的地下水灌溉农田会造成砷在土壤-植物系统中累积。调查研究表明,在地下水砷污染严重的孟加拉地区,大米中砷的含量可高达 $1.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,远远超出了我

国的国家食品卫生标准($0.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)。我国南方水稻田的研究同样显示,生长在污染土中的水稻其籽粒中累积了很高浓度的砷($0.725 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)^[4, 5]。我国是矿业大国,含砷矿广泛分布在我国中南和西南

收稿日期:2007-05-05; 修订日期:2007-07-09

基金项目:国家自然科学基金项目(20477055, 40673060); 河北省自然科学基金项目(D2007000553)

作者简介:刘文菊(1971~),女,博士,教授,硕士生导师,主要研究方向为环境生物学, E-mail: wenjuli71@hotmail.com

的湖南、云南、广西、广东等省区,而这些地区又是水稻的主要产区。砷通过水体迁移污染土壤的情况在我国水稻生产区是比较普遍的,如湖南常宁县大面积水稻田受砷污染,其砷含量为 $92\sim840\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,在湖北,8 000 多 hm^2 水田正遭受着砷污染,其中含砷污水灌溉可能是导致砷污染的主要来源之一^[6]。

近年来,地球成因的地下水砷污染在东南亚一些国家频繁发生,如中国的内蒙古和新疆的一些地区,孟加拉国的大部分地区^[7~11]、印度的西孟加拉^[12]和中国的台湾。在砷污染严重的孟加拉地区,地下水中砷浓度可高达 $2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[13],远远超出了 WHO 推荐的饮用水标准 $0.05\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,当地居民不仅饮用砷污染的地下水,而且还用这种污染水灌溉食用农作物。孟加拉地区大约 75% 的农田需要用砷污染的地下水进行灌溉,而 83% 的灌溉农田用于水稻的种植^[14,15]。用这种地下水灌溉水稻田,在不到 10 a 时间就可使 $0\sim15\text{ cm}$ 土层中砷的浓度提高到 $83\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,而当地土壤砷背景值仅为 $4\sim8\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[16]。研究表明,生长在砷污染水稻土中的稻米很容易积累高浓度的砷^[4],对人体健康构成潜在威胁。此外,水稻的秸秆还可以作为燃料、牲畜的饲料以及加工其它产品的原材料(手工编制的物品)。水稻是一种典型的湿地植被,根表包裹的红棕色铁氧化物膜是其适应还原环境的必然结果^[17]。已有的研究结果表明,铁氧化物是水稻吸收五价砷的障碍层或缓冲带^[18~20],而水稻体内的砷主要来源于土壤和灌溉水,那么不同来源的砷在成熟水稻体内的分布和累积规律是否存在差异,灌溉含砷水是否会影响水稻根系表面铁氧化物的沉积及砷在水稻体内的富集程度。因此,本研究采用土壤-玻璃珠联合培养的方式,旨在探明砷在土壤-根表铁氧化物-水稻(根系到籽粒)系统中的累积和迁移规律,以及土壤和灌溉水对水稻秸秆和籽粒中富集砷的贡献程度。

1 材料与方法

1.1 植株培养

供试材料:水稻种子(*Oryza sativa L.*)品种为 YY-1 和 94D-64,2 个品系的氧化能力不同,均由中科院亚热带农业生态研究所的李达模研究员提供。30% H_2O_2 消毒 15 min,用去离子水洗净后播于湿润的珍珠岩中发芽。水稻育苗期间的生长条件: $28^\circ\text{C}/14\text{ h}$ 光照和 $20^\circ\text{C}/10\text{ h}$ 黑暗,光照强度为 $260\sim350\text{ }\mu\text{mol}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{s})^{-1}$,相对湿度为 60%~70%,在珍珠岩中生长 6 周。

1.2 根袋联合培养试验

1.2.1 供试土壤

试验用土取自浙江省富阳地区(以前是污灌水稻田,现在已改为清灌菜地)。供试土壤的基本理化性质分析用文献[21]提供的方法,分析结果见表 1。采回的土壤样品在温室自然条件下风干后,全部过 2 mm 筛。在试验开始装盆之前,土壤中混入底肥,氮磷钾的施入比例分别为(每 kg 土): $0.15\text{ g P}_2\text{O}_5$ 、 $0.2\text{ g K}_2\text{O}$ 和 0.2 g N ,分别以 $\text{CaH}_2\text{PO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、 KCl 和 $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$ 的形式混入土壤中,混合均匀平衡 2 周后,装入 2.5 L 瓷制培养钵中(半径: 12.5 cm; 高: 20 cm)。

表 1 供试土壤的基本理化性质

Table 1 Physico-chemical properties of the soil used in the pot experiment

土壤性质	测定值
pH 值 (H_2O)	6.49
有机质 OM/ $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	22.6
粘粒含量/%	13.2
阳离子交换容量 CEC/ $\text{cmol}\cdot\text{kg}^{-1}$	10.0
游离 Fe_2O_3 /%	18.7
游离 Al_2O_3 /%	1.85
游离 MnO_2 /%	0.74
碱解氮/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	35.8
速效磷/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	14.3
速效钾/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	137
总砷含量/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	13.8

1.2.2 土壤-玻璃珠联合培养系统

在本试验中,采用了土壤-玻璃珠联合培养系统。这一联合培养系统的特点是:此联合培养模式实际是一个根际和非根际分室培养系统,在该系统中植物生长室(根袋)和无植物生长的土壤之间以 $35\text{ }\mu\text{m}$ 孔径的尼龙网隔开,该尼龙网允许水分、养分和其它重金属、非金属等物质自由通过,但可以阻止水稻根系穿过而进入土壤。采用这种培养系统一是可以尽可能减少土壤或收获时对根表铁氧化物膜的损伤,使试验结果更为准确;二是较容易区分根际和非根际。首先,将 4~5 个叶片的水稻幼苗放入装有湿润玻璃珠的根袋中(孔径 $35\text{ }\mu\text{m}$ 的尼龙网,直径 8 cm,高 18 cm,1 个根袋中移入 1 棵水稻苗),然后将根袋放入体积更大的装有 1.25 kg 土壤的 2.5 L 瓷制培养钵中。

1.2.3 试验处理

本试验的目的是研究水稻生长环境中的砷在根表铁氧化物中的富集以及在成熟水稻不同部位的分布规律,在此基础上进一步分析土壤中和灌溉水中

砷对籽粒砷积累的贡献程度。因此,在该研究中设对照(CK: 灌溉清水处理, 水稻体内的砷完全来源于土壤, 以下用 CK 表示)和灌溉水砷处理(As: 灌溉含砷水处理, 水稻体内的砷分别来源于土壤和灌溉水, 以下该处理用 As 表示), 对于灌溉水砷处理: 分别在分蘖期、拔节期、孕穗期、开花期和灌浆期 5 个生育阶段用含砷水溶液灌溉, 每个时期处理 2 次, 每次灌溉砷的量为 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ As 40 mL, 以 $\text{Na}_3\text{AsO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ 的形式加入。选择该浓度的砷投入土壤中, 是因为该浓度不会对水稻产生毒害作用, 并且低于孟加拉污染严重地区灌溉水中砷的浓度。每个处理设 3 次重复。

此外, 在水稻的拔节期, 氮、钾的需求量增加, 因此, 在该时期补充氮钾养分, 分别以营养液的形式加入, 施用量和底肥一致。在试验的过程中, 水稻的叶片出现锌缺乏症状, 补含锌的溶液 1 次, 用量为 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的溶液 100 mL。此外, 在根袋玻璃珠中加入 MES 缓冲溶液 2 次。每次所用浓度为 $0.5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, 以保持生长介质中 pH 值的稳定性。

模拟自然条件下, 水稻田的水分管理模式调控每盆的水分(在培养钵中维持 2 cm 左右的水层), 在淹水条件下培养至成熟(中间有多次晒田)。移栽后的水稻植株放置在温室中, 温度控制在 $22 \sim 35^\circ\text{C}$, 光照强度是 $500 \sim 1100 \mu\text{mol} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{s})^{-1}$ 。

1.3 样品的采集、制备与分析

样品的采集与制备: 生长约 6 个月后, 水稻籽粒成熟, 分别收获水稻植株的不同部位。首先, 稻穗用不锈钢的剪刀将其剪下放入尼龙网的样品袋中自然风干; 其次, 在取秸秆样品时, 应该将淹水 2 cm 的部位去掉, 以避免浇入砷时造成的误差。每个品系的水稻秸秆与籽粒在同样的条件下风干。风干后的稻穗用去离子水冲洗干净, 放在干净的试验台上慢慢晾干, 然后将精米与颖壳分开, 用研钵分别磨碎后放置备用。而风干后的秸秆先用自来水清洗, 再用去离子水冲洗干净后放入鼓风干燥箱中于 70°C 烘干。干燥后的秸秆样品用不锈钢的粉碎机粉碎后备用。最后, 将根袋取出, 用水把根袋中的玻璃珠冲掉, 小心地把包裹着铁膜的根系从根袋中拿出来, 去离子水冲洗干净后放入 -20°C 的冰箱中储藏待用。

根表铁氧化物的 DCB 浸提与测定: 植株收获后, 水稻新鲜根系上的铁膜用 dithionite-citrate-bicarbonate (DCB) 的方法浸提(以下均以 DCB 表示), 此方法是在 Taylor 等^[22,23]的基础上改进的。DCB 浸提液由以下 3 种化合物组成 $0.03 \text{ mol/L Na}_3\text{C}_6\text{H}_5\text{O}_7 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 $0.125 \text{ mol/L NaHCO}_3$ 的混合液和

固体的 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ (连二亚硫酸钠, 俗称保险粉)。收获后的水稻新鲜根系用去离子水洗净, 放到 100 mL 的烧杯中, 加入 $0.03 \text{ mol/L Na}_3\text{C}_6\text{H}_5\text{O}_7 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 和 $0.125 \text{ mol/L NaHCO}_3$ 的混合液 30 mL, $1.0 \text{ g Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$, 混合均匀后, 在室温下($20 \sim 25^\circ\text{C}$)浸提 1 h, 然后将浸提液转入 100 mL 容量瓶中, 并用去离子水冲洗根系 3 次后定容至 100 mL。取出的根系在 70°C 烘箱中烘干至衡重, 称干重。铁氧化物膜的数量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)用 DCB 浸提液中铁含量与水稻根干重(root dry weight, RDW)之比来表示, 以下称 DCB-Fe。

样品分析与测定: 浸提后的水稻根系放入 70°C 鼓风干燥箱中烘干后, 待消煮测定。植物根系、秸秆、颖壳和籽粒的分析均采用密闭系统的微波消解法, 称取均匀的干燥样品放入 100 mL 干燥且干净的聚四氟乙烯消解罐中, 加入 5 mL 优级纯的浓硝酸后, 装罐后放入微波加速反应系统中(MARS5, CEM Microwave Technology Ltd. USA)进行消解。不同部位的消解程序如下(根据 CEM 公司推荐的方法修改)。

①根系消解程序为: 15 min 升到 160°C , 在此温度下保持 15 min, 然后 20 min 的降温过程; ②秸秆和颖壳消解程序: 15 min 升到 180°C , 在此温度下保持 15 min, 然后 20 min 的降温过程; ③籽粒的消解程序: 15 min 升到 185°C , 在此温度下保持 15 min, 然后 20 min 的降温过程。

在以上 3 个不同的程序中, 空白和标准样品同时做, 以确保消煮及以后测定的准确度。消煮后, 用超纯水(Easy-pure, Dubuque, IA, USA)稀释至 50 mL, 然后过滤到经酸泡过的干净 PE 塑料瓶中。用 ICP-OES (Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometer, Optima 2000 DV, Perkin Elmer, USA) 和原子荧光分光光度计(AFS 2202E, 北京海光分析仪器公司)测定 DCB 浸提液和消煮液中砷和铁的浓度。

1.4 数据分析

使用统计软件 SPSS11.0 和 Matlab5.0 对试验数据进行方差分析以及多重比较, 采用 Pearson's Correlation 进行相关性分析。

2 结果与分析

2.1 灌溉含砷水对水稻生长的影响

表 2 的结果表明, 灌溉含砷水的 YY-1 和 94D-64 其秸秆生物量低于对照(CK)。对籽粒生物量(经济产量)而言, 经含砷水灌溉的 YY-1 穗粒产量低于对照, 其产量为对照的 78%, 即含砷水的灌溉使 YY-1

最终减产 22%; 而 94D-64 的籽粒生物量却表现出与 YY-1 不同的趋势: 灌溉含砷水的产量略高于对照。但是从统计学上来看, 灌溉含砷水对水稻的生长和最后的经济产量没有产生显著的影响(表 2)。秸秆生物量和籽粒产量在品系之间也不存在明显差异。

表 2 不同品系成熟水稻的秸秆生物量和籽粒生物量¹⁾/g

砷处理	秸秆生物量		籽粒生物量	
	YY-1	94D-64	YY-1	94D-64
CK	13.0 ± 2.9a	10.0 ± 0.4a	11.1 ± 1.7a	9.9 ± 2.0a
As	10.4 ± 0.7a	8.9 ± 0.7a	8.7 ± 0.9a	10.7 ± 2.1a

1) 同列数据后字母相同表示差异不显著($p > 0.05$)

2.2 不同来源的砷对其在水稻不同部位富集程度的影响

从生物统计学的角度分析, 尽管水稻秸秆生物量及其籽粒产量并没有受到不同来源砷的显著影响(表 2), 但是灌溉含砷水对砷在水稻根系表面的富集和在水稻体内的累积有着显著的影响(表 3 和表 4)。

表 3 和表 4 的化学分析及统计结果表明, 与对照相比, 在水稻 5 个不同的生育期灌溉含砷水均显著增加了砷在水稻根系表面及其体内不同部位的富集(94D-64 的籽粒中砷含量除外)。从品系的角度来分析, 无论是对照还是砷处理, YY-1 根表富集的砷浓度显著高于 94D-64, 然而, 进入 YY-1 水稻根中的砷却明显低于 94D-64 根中积累的砷。这一结果与水稻根系表面可以形成铁氧化物的沉积有关。

表 3 砷在成熟水稻根表及体内不同部位的富集¹⁾/mg·kg⁻¹

Table 3 Arsenic accumulation in iron plaque and in different parts of mature rice plants/mg·kg⁻¹

品系	YY-1		94D-64	
	CK	As	CK	As
DCB-As	362 ± 54	515 ± 68	182 ± 34	317 ± 66
Root-As	70.9 ± 5.4	98.0 ± 2.9	89.6 ± 3.8	119 ± 8.5
Straw-As	11.4 ± 1.1	18.1 ± 0.8	12.5 ± 1.3	19.3 ± 3.0
Husk-As	1.74 ± 0.3	2.34 ± 0.03	1.51 ± 0.2	2.40 ± 0.4
Grain-As	0.27 ± 0.05	0.52 ± 0.04	0.22 ± 0.01	0.24 ± 0.01

1) DCB-As: 水稻根表铁氧化物膜中砷的浓度; Root-As: 水稻根中砷的浓度; Straw-As: 水稻秸秆中砷的浓度; Husk-As: 水稻颖壳中砷的浓度; Grain-As: 水稻籽粒中砷的浓度, 下同

表 4 砷在成熟水稻根表及其体内不同部位富集的方差分析结果

Table 4 ANOVA results for As concentrations in iron plaque and in rice plants

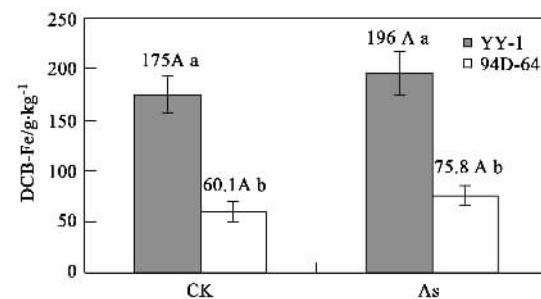
项目	DCB-As	Root-As	Straw-As	Husk-As	Grain-As
As	$p = 0.035$	$p = 0.001$	$p = 0.005$	$p = 0.034$	$p = 0.001$
Line (G)	$p = 0.011$	$p = 0.008$	NS	NS	$p = 0.003$
As × L	NS	NS	NS	NS	$p = 0.010$

2.3 不同来源的砷对水稻根表和根内铁砷关系的影响

表 3 和表 4 的研究结果已经表明, YY-1 根表富集的砷浓度显著高于 94D-64, 然而, 进入 YY-1 水稻根中的砷却明显低于 94D-64 根中积累的砷。这一结果与水稻根系表面可以形成铁氧化物的沉积有关。

图 1 显示, 灌溉含砷水处理的两品系水稻根系表面铁氧化物沉积的数量与对照相比有所增加, 但增加的幅度没有达到显著性水平。这说明不同来源的砷对水稻根表铁氧化物的形成有一定程度的影响, 即灌溉含砷水在一定程度上促进了铁氧化物在水稻根表的富集。从水稻根系表面铁氧化物沉积数量的品系差异来看, 无论是含砷水灌溉处理还是对照, YY-1 根表铁氧化物的沉积数量显著高于 94D-64 (图 1)。已有的研究表明, 水稻根表沉积的铁氧化物对其周围的砷酸根阴离子有很强的亲和力。在水稻 5 个不同的生育期灌溉含砷水显著增加了砷在水稻根系表面铁氧化物中的富集(表 3 和表 4)。并且在对照与砷处理情况下, 根表铁氧化物中砷与铁之间存在正相关关系(Pearson correlation 的显著性检验结果为: $r = 0.8112$, $p = 0.001$)(图 2)。从而进一步验证了表 3 中 DCB-As 的结果。

无论是来源于土壤中的砷还是来源于灌溉水中的砷, 均首先在根系表面沉积后再转运至根中。图 3



大写字母表示对照与处理间差异显著, 小写字母表示两品系之间的差异显著性

图 1 灌溉含砷水对铁氧化物在水稻根系表面沉积的影响

Fig. 1 Effect of irrigation-water with arsenate on the formation of iron oxides on the root surface of rice

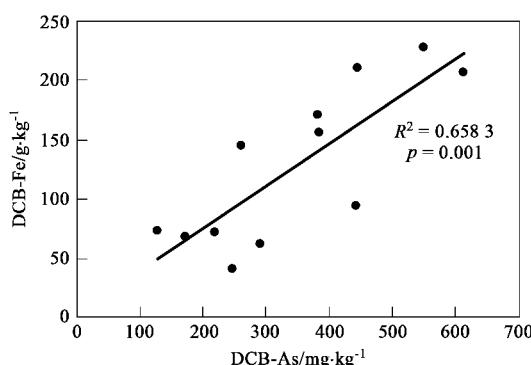


图 2 对照和含砷水灌溉条件下根表铁氧化物中砷与铁的相关性

Fig. 2 Relationship between iron and arsenic accumulated in iron oxides on the root surface of rice

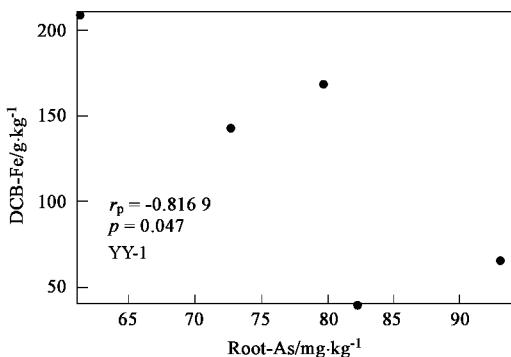


图 3 对照和含砷水灌溉条件下根表铁氧化物沉积数量与水稻根中砷含量之间的相关性分析

Fig. 3 Pearson's correlation between DCB-Fe and arsenic concentrations in the rice roots

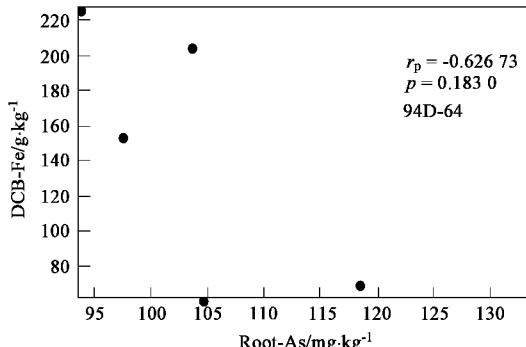
水稻秸秆虽然不是直接入口的可食部分,但是其作为燃料、牲畜的饲料以及加工其它产品的原材料(手工编制的物品),从而使砷通过食物链或人体的其他部位间接进入体内。籽粒是水稻的可食部分,籽粒中砷的累积程度直接关系到人体健康,因此,分析成熟水稻秸秆和籽粒中砷的主要来源十分重要。

水稻收获时,整个植株的秸秆和籽粒生物量被测定记录,从而可以计算出秸秆和籽粒中累积砷的数量(表 5 和表 6)。没有灌溉含砷水的对照秸秆和籽粒中累积的砷来源于土壤,而砷处理的水稻秸秆和籽粒中富集的砷来源于土壤和灌溉的含砷水。采

表明了对照和含砷水灌溉条件下根表铁氧化物富集的数量与水稻根中砷含量之间的相关关系。对于 YY-1, 二者之间存在显著的负相关性($r = -0.8169$, $p < 0.05$),对于 94D-64, 二者之间没有显著负相关关系($p > 0.05$)。原因可能在于后者根表形成的铁氧化物的数量较少,从而铁氧化物在根系表面面对根系吸收砷的缓冲能力就小。

综上所述,灌溉含砷水的 YY-1 水稻品系根表形成的铁氧化物最多,在根表富集的砷也最高,但是进入水稻根内的数量却明显低于灌溉水处理的 94D-64。

2.4 土壤中和灌溉水中砷对水稻秸秆和籽粒中累积砷的贡献率分析



自砷污染区浙江富阳的土壤中砷的本底值为 $13.8 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (占总砷的 81.2%),随灌溉水进入土壤中砷的浓度为 $3.2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (占总砷的 18.8%)。从试验数据来看,土壤对 YY-1 和 94D-64 稻秆中富集砷的贡献率分别为 76.5% 和 71.0%,灌溉水的贡献率分别为 23.5% 和 29.0%,品系之间却没有明显差异。YY-1 粒中的砷 66.4% 来源于土壤,33.6% 来源于含砷灌溉水,灌溉水对该品系籽粒中砷的富集贡献率较高。另一品系 94D-64 粒中的砷 84.8% 来源于土壤,15.2% 由灌溉水贡献,灌溉水对此品系籽粒累积砷的贡献率较低。

表 5 来源于土壤和灌溉水的砷在水稻秸秆和籽粒中累积数量分析

Table 5 Amounts of arsenic accumulated in straw and grain for control and As treatment

品系	YY-1				94D-64			
	CK		As		CK		As	
	mg·kg⁻¹	μg ¹⁾		mg·kg⁻¹	μg		mg·kg⁻¹	μg
Straw-As	11.4 ± 1.1	143	18.1 ± 0.8	187	12.5 ± 1.3	125	19.3 ± 3.0	176
Grain-As	0.27 ± 0.05	3.00	0.52 ± 0.04	4.52	0.22 ± 0.01	2.18	0.24 ± 0.01	2.57

1) μg 表示对照和含砷水灌溉的水稻秸秆和籽粒中富集砷的数量

表 6 来源于土壤和灌溉水的砷对水稻秸秆和籽粒中累积砷贡献率分析

Table 6 Percentage of As in straw and grain from soil and irrigation-water with Arsenic

砷处理	YY-1		94D-64	
	土壤贡献 /%	灌溉水贡献 /%	土壤贡献 /%	灌溉水贡献 /%
Straw-As	76.5	23.5	71.0	29.0
Grain-As	66.4	33.6	84.8	15.2

3 讨论

试验结果表明,水稻秸秆生物量和籽粒产量不存在明显的品系差异,灌溉含砷水虽然降低了成熟水稻秸秆和籽粒的产量,但没有达到显著水平(表2).在本研究中采用的土壤其总砷浓度为 $13.8 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ (以前是污灌水稻田,现在已改为清灌菜地),稍高于我国土壤中砷的背景值: $11.2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,通过在水稻的5个生育时期灌溉含砷水向土壤中投入的砷浓度为 $3.2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,土壤中原有砷浓度是灌溉水的4.3倍,尽管灌溉水中的砷进入土壤后其有效性可能高于土壤砷的有效性,但是在含砷总量上二者相差较大,后者明显高于前者,并且在淹水条件下,水稻土中砷的有效性也会增加.因此,以该试验中灌溉水中砷的浓度和灌溉次数处理水稻并不会显著影响其最终收获时的经济产量.这文献[14]的研究结果一致.

从生物统计学的角度分析,尽管水稻的秸秆生物量及其产量并没有受到不同来源砷的显著影响,但是灌溉含砷水确实显著增加了砷在水稻根系表面的富集和在水稻体内的累积,尤其是在秸秆和籽粒中富集,但是,来源于土壤和灌溉水的砷在水稻籽粒中的富集没有超出我国的国家食品卫生标准($0.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$). Abedin等^[14]在温室环境中土壤培养试验表明,虽然用含砷水长期灌溉水稻且砷的投入量和孟加拉地区含砷地下水的水平一致,但收获后籽粒中的砷含量也没有超过 $0.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的标准.这在一定程度上可以说明砷污染地区的主要粮食——稻米可能是安全的,但是不能否认砷的累积效应,因为在以稻米为主食的当地居民一日三餐摄入稻米的数量是可观的,从人的整个生命周期考虑,随之产生的砷在人体内的累积效应是不容忽视的^[5]. Das等^[25]在孟加拉地区的田间调查结果显示,地下水含砷量在 $60 \sim 720 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,土壤中砷浓度在 $7.31 \sim 27.28 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,相应的稻米中砷浓度为 $0.14 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,稻

秆中含砷 $0.73 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,根内富集的砷为 $2.4 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$.由此可见,自然条件下,生长在稻田中的水稻,砷在不同部位的分布趋势与实验室研究的结果一致.秸秆经常作为牲畜饲料和编制手工制品的原料,因此秸秆中砷浓度的增加会通过食物链或者直接和人体接触而对人体健康产生潜在的威胁.英国规定作为牛饲料的秸秆中砷的浓度不能超过 $0.2 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ^[26],本研究中无论是对照还是灌溉含砷水的处理水稻秸秆中砷浓度均超过了这一界限.并且本研究的数据分析结果显示,两品系水稻秸秆和籽粒中富集的砷 $66\% \sim 85\%$ 来源于土壤,只有一少部分来源于灌溉水.因此,在砷污染的水稻种植区应该重点考虑降低土壤中砷的本底值,其次是控制灌溉水中砷的浓度或者尽量减少甚至不用含砷污水灌溉,此外筛选砷低吸收和低转运的水稻品种也是有效降低砷在水稻体内积累的措施之一.

4 结论

(1) 水稻的秸秆生物量及其籽粒产量并没有受到不同来源砷的显著影响.

(2) 灌溉含砷水处理的2个品系水稻根表铁氧化物沉积数量高于对照,但是差异未达到显著水平.

(3) 秸秆和籽粒中富集的砷则主要来源于土壤,灌溉含砷水的贡献率为 $15\% \sim 34\%$.

(4) 来源于土壤和灌溉水的砷在水稻籽粒中的富集量没有超出我国国家食品卫生标准($0.7 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$).

致谢:衷心感谢中国科学院亚热带农业生态研究所的李达模研究员为本研究提供了植物材料.

参考文献:

- [1] Ure A, Berrow M. Chapter 3: The elemental constituents of soils [A]. In: Bowen H J M (Ed.), Environmental Chemistry [C]. Royal Society of Chemistry, London, 1982. 94-203.
- [2] Boyle R W, Jonasson I R. The geochemistry of As and its use as an indicator element in geochemical prospecting [J]. J Geochem Explor, 1973, 2: 251-296.
- [3] 陈怀满. 环境土壤学[M]. 北京:科学出版社, 2005.
- [4] Xie Z M, Huang C Y. Control of arsenic toxicity in rice plants grown on an arsenic-polluted paddy soil [J]. Commun Soil Sci Plant Anal, 1998, 29: 2471-2477.
- [5] Meharg A A, Rahman M. Arsenic contamination of Bangladesh paddy soils: Implication for rice contribution to arsenic consumption [J]. Environ Sci Technol, 2003, 37(2): 229-234.
- [6] 廖晓勇, 陈同斌, 肖细元, 等. 污染水稻田中土壤含砷量的空间变异特征[J]. 地理研究, 2003, 22(5): 635-643.
- [7] Nickson R, McArthur J, Burgess W, et al. Arsenic poisoning in Bangladesh groundwater [J]. Nature, 1998, 395(6700): 338.

- [8] Chowdhury T R, Basu G K, Mandal B K, et al. Arsenic poisoning in the Ganges delta [J]. *Nature*, 1999, **401**(6753): 545-546.
- [9] Chowdhury U K, Biswas B K, Chowdhury T R, et al. Groundwater arsenic contamination in Bangladesh and West Bengal, India [J]. *Environ Health Persp*, 2000, **108**(5): 393-397.
- [10] Biswas B K, Dhar R K, Samanta G, et al. Detailed study report of Samta, one of the arsenic affected village of Jessore District, Bangladesh [J]. *Curr Sci*, 1998, **74**(1): 134-145.
- [11] Dhar R K, Biswas B K, Samanta G, et al. Groundwater arsenic calamity in Bangladesh [J]. *Curr Sci*, 1997, **73**(1): 48-59.
- [12] Mandal B K, Chowdhury T R, Samanta G, et al. Arsenic in groundwater in seven districts of west Bengal, India: The biggest arsenic calamity in the world [J]. *Curr Sci*, 1996, **70**(11): 976-986.
- [13] Tondel M, Rahman M, Magnuson A, et al. The relationship of arsenic levels in drinking water and the prevalence rate of skin lesions in Bangladesh [J]. *Environ Health Persp*, 1999, **107**(9): 727-729.
- [14] Abedin M J, Cresser M S, Meharg A A, et al. Arsenic accumulation and metabolism in rice (*Oryza sativa* L.) [J]. *Environ Sci Technol*, 2002, **36**(5): 962-968.
- [15] Dey M M, Miah M N I, Mustafi B A A, et al. Rice production constraints in Bangladesh: implications for further research priorities [A]. In: Evenson R E, Herdt R W, Hossain M, et al. (eds) *Rice Research in Asia: Progress and Priorities* [C]. CAB International, Wallingford, UK, and International Rice Research Institute, Manila, Philippines, 1996. 179-191.
- [16] Ullah S M. Arsenic contamination of groundwater and irrigated soils of Bangladesh [A]. In: International Conference on Arsenic Pollution of Groundwater in Bangladesh: Causes, Effects and Remedies [C]. Dhaka Community Hospital, Dhaka, Bangladesh, 1998. 133.
- [17] Chen C C, Dixon J B, Turner F T. Iron coatings on rice roots: Morphology and models of development [J]. *Soil Sci Soc Am J*, 1980, **44**: 1113-1119.
- [18] Liu W J, Zhu Y G, Smith F A, et al. Do iron plaque and genotypes affect arsenate uptake and translocation by rice seedlings (*Oryza sativa* L.) grown in solution culture? [J]. *J Exp Bot*, 2004, **55**(403): 1707-1713.
- [19] Chen Z, Zhu Y G, Liu W J, et al. Direct evidence showing the effect of root surface iron plaque on arsenite and arsenate uptake into rice (*Oryza sativa* L.) roots [J]. *New Phytol*, 2005, **165**(1): 91-97.
- [20] Liu W J, Zhu Y G, Smith F A. Effects of iron and manganese plaques on arsenic uptake of by rice seedlings (*Oryza sativa* L.) grown in solution culture supplied with arsenate and arsenite [J]. *Plant Soil*, 2005, **277**(1): 127-138.
- [21] 鲁如坤主编. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000.
- [22] Taylor G J, Crowder A A. Use of DCB technique for extraction of hydrous iron oxides from roots of wetland plants [J]. *Am J Bot*, 1983, **70**: 1254-1257.
- [23] Otte M L, Dekkers M J, Rozema J, et al. Uptake of arsenic by *Aster tripolium* in relation to rhizosphere oxidation [J]. *Can J Bot*, 1991, **69**: 2670-2677.
- [24] Liu W J, Zhu Y G, Hu Y, et al. Arsenic sequestration in iron plaque: its accumulation and speciation in mature rice plants (*Oryza sativa* L.) [J]. *Environ Sci Technol*, 2006, **40**(18): 5730-5736.
- [25] Das H K, Mitrab A K, Senguptac P K, et al. Arsenic concentrations in rice, vegetables, and fish in Bangladesh: a preliminary study [J]. *Environ Int*, 2004, **30**(3): 383-387.
- [26] Nicholson F A, Chambers B J, Williams J R, et al. Heavy metal contents of livestock feeds and animal manures in England and Wales [J]. *Bioresour Technol*, 1999, **70**(1): 23-31.