

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第6期

Vol.39 No.6

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

北京市二次有机气溶胶生成潜势的日变化规律 刘俊, 楚碧武, 贺泓 (2505)

太原冬季 PM_{2.5} 影响霾污染的关键尺度谱特征 杨素英, 余欣洋, 赵秀勇, 李义宇, 孙洪娉, 田芷洁, 李岩, 吴尚, 王梓航 (2512)

盘锦市冬季 PM_{2.5} 水溶性离子特征及来源分析 张蕾, 姬亚芹, 王士宝, 赵静琦, 张军, 李越洋, 张伟 (2521)

广州市天河区 2016 年雨季挥发性有机物污染特征及来源解析 古颖纲, 虞小芳, 杨闻达, 田智林, 李梅, 程鹏 (2528)

热带树木燃烧颗粒物中脱水糖和醋非烯的排放特征 金诚妙, 崔敏, 韩勇, 陈颖军, 唐娇, 李军, 张干 (2538)

天津地区污染天气分析中垂直扩散指标构建及运用 蔡子颖, 韩素芹, 张敏, 姚青, 刘敬勇 (2548)

亚热带农田和林地大气氨湿沉降与混合沉降比较 朱潇, 王杰飞, 沈健林, 肖润林, 王娟, 吴金水, 李勇 (2557)

京津冀地区黄标车政策的总量减排效益评估 卢亚灵, 周佳, 程曦, 张伟, 蒋洪强 (2566)

北京北运河河流生态系统健康评价 顾晓昀, 徐宗学, 刘麟菲, 殷旭旺, 王汨 (2576)

长江武汉段丰水期水体和沉积物中多环芳烃及邻苯二甲酸酯类有机污染物污染特征及来源分析 董磊, 汤显强, 林莉, 邴超, 黎睿, 吴敏 (2588)

福建省敖江下游抗生素抗性基因分布特征 张丹丹, 郭亚平, 任红云, 周昕原, 黄福义, 张娴 (2600)

三峡库区支流河口沉积物重金属分布特征及风险评价 方志青, 陈秋禹, 尹德良, 王志康, 孙涛, 王永敏, 谢德体, 王定勇 (2607)

三峡水库蓄水至 175 m 后干流沉积物理化性质与磷形态分布特征 潘婵娟, 黎睿, 汤显强, 夏振尧, 李青云, 杨文俊, 许文年 (2615)

基于水化学和稳定同位素的白洋淀流域地表水和地下水硝酸盐来源 孔晓乐, 王仕琴, 丁飞, 梁慧雅 (2624)

天目湖沙河水库热分层变化及其对水质的影响 孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽, 李恒鹏, 李慧贇 (2632)

重庆雪玉洞洞穴滴水水文地球化学时空变化特征及其环境意义 曾泽, 蒋勇军, 吕现福, 曾思博, 胡刘焯, 雷佳琪 (2641)

岩溶地表河旱季有色溶解有机质组成及来源: 以金佛山碧潭河为例 刘跃, 贺秋芳, 刘宁坤, 刘九程, 王正雄, 段世辉 (2651)

托来河流域不同海拔降水稳定同位素的环境意义 李永格, 李宗省, 冯起, 肖莲桂, 吕越敏, 桂娟, 袁瑞丰, 张百娟 (2661)

五里峡水库初级生产力对水气界面二氧化碳和甲烷排放速率时空变化的影响 彭文杰, 李强, 宋昂, 靳振江 (2673)

西南山区典型河道型水库藻类功能群时空演替特征及其影响因素: 以紫坪铺水库为例 张耀文, 李洪, 李嘉, 宋洋, 张陵蕾, 李永, 蒲迅赤, 黄文典 (2680)

四明湖水库浮游植物功能类群的季节演替及其影响因子 郑诚, 陆开宏, 徐镇, 郑志明, 朱津永 (2688)

营养盐添加对水华蓝藻——卵孢金胞藻生长和竞争影响的原位实验 王梦梦, 张玮, 张军毅, 尚光霞, 杜彩丽, 王丽卿 (2698)

植物配置与进水碳氮比对沉水植物塘水质净化效果的影响 刘森, 陈开宁 (2706)

江汉平原水稻灌排单元沟渠中氮磷变化特征及其环境风险 华玲玲, 张富林, 翟丽梅, 刘宏斌, 范先鹏, 王洪霞 (2715)

冀西北典型北方小城镇污水处理厂中抗生素的分布和去除 柴玉峰, 张玉秀, 陈梅雪, 王瑞, 柳蒙蒙, 郑嘉熹, 魏源送 (2724)

臭氧-粉末炭联用作为预处理缓解膜污染的效果与机制 董秉直, 高昊旸, 胡孟柳 (2732)

中试 SAD-ASBR 系统处理含盐废水的启动与工艺特性 于德爽, 唐佳佳, 张军, 王晓霞, 赵红, 韩长民, 孙捷 (2740)

海藻酸钙/聚 N-异丙基丙烯酰胺半互穿网络凝胶球的除磷性能 曾学阳, 骆华勇, 张耀坤, 荣宏伟, 曾子君, 钟广汇 (2748)

玉米淀粉废水短程硝化快速启动及其稳定性 龙北生, 刘迅雷, 刘红波, 杨靖新, 袁树森 (2756)

硝化细菌的培养及包埋固定化中试 杨宏, 胡银龙 (2763)

不同运行策略下厌氧氨氧化的脱氮性能 安芳娇, 彭永臻, 董志龙, 邵兆伟, 赵智超, 黄剑明, 陈永志 (2770)

高含固污泥厌氧消化中蛋白质转化规律 詹瑜, 施万胜, 赵明星, 许之扬, 阮文权, 宋联, 朱葛 (2778)

污泥富磷堆肥前后重金属赋存形态及释放能力变化 李玉, 方文, 祁光霞, 魏勇红, 刘建国, 李润东 (2786)

丝状菌污泥膨胀对脱氮除磷功能菌群的影响 高晨晨, 游佳, 陈轶, 郑兴灿, 尚巍, 张文安 (2794)

同步去除并富集磷酸盐生物膜驯化过程中微生物种群分析 孟璇, 潘杨, 章豪, 廖恒弘, 徐林建, 冯鑫, 单捷 (2802)

四环素对人粪便好氧堆肥过程及微生物群落演替的影响 时红蕾, 王晓昌, 李倩, 刘源 (2810)

长期定位有机物料还田对关中平原夏玉米-冬小麦轮作土壤 NO 排放的影响 袁梦轩, 王晋峰, 谭跃慧, 魏静, 杨学云, 顾江新 (2819)

菌渣还田量对紫色水稻土净温室气体排放的影响 祁乐, 高明, 周鹏, 王富华, 高泳钦, 陈仕奇, 吴思琪, 邓静霖, 文婷 (2827)

¹³C 脉冲标记法定量冬小麦光合碳分配及其向地下的输入 孙昭安, 陈清, 韩笑, 吴文良, 孟凡乔 (2837)

西南喀斯特区植被恢复对土壤氮素转化通路的影响 杨怡, 欧阳运东, 陈浩, 肖孔操, 李德军 (2845)

江苏海岸带土壤重金属来源解析及空间分布 吕建树, 何华春 (2853)

黄河下游典型区域土壤重金属来源解析及空间分布 于元赫, 吕建树, 王亚梦 (2865)

典型小城市土壤重金属空间异质性及其风险评价: 以临安市为例 郑晴之, 王楚栋, 王诗涵, 林子也, 赵科理, 吴东涛, 傅伟军 (2875)

西南某铅锌矿区农田土壤重金属空间主成分分析及生态风险评价 周艳, 陈楠, 邓绍坡, 王金忠, 张胜田, 龙涛, 李群, 林玉锁, 吴运金 (2884)

典型山核桃产区土壤重金属空间异质性及其风险评价 张红桔, 赵科理, 叶正钱, 许斌, 赵伟明, 顾晓波, 张华锋 (2893)

生物炭添加对湿地植物生长及氧化应激响应的影响 黄磊, 陈玉成, 赵亚琦, 肖广全, 杨志敏 (2904)

厌氧条件水稻土铁对砷释放的影响 王欣, 钟松雄, 陈志良, 何宏飞, 董家华, 陈晓丽 (2911)

矿业活动影响区稻田土壤和稻米中重金属含量及健康风险 田美玲, 钟雪梅, 张云霞, 余元元, 庞瑞, 周浪, 宋波 (2919)

硅酸钙和生物腐殖肥复配对葱生长和镉吸收的影响 刘德玲, 尹光彩, 陈志良, 林亲铁, 刘千钧, 钟松雄, 黄玲, 张建强 (2927)

吉林四平设施土壤和蔬菜中重金属的累积特征 李莲芳, 朱昌雄, 曾希柏, 李红娜, 叶婧, 李峰, 吴翠霞 (2936)

喷施锌肥对油菜镉生物可给性的影响 王林, 谷朋磊, 李然, 徐应明, 孙约兵, 梁学峰, 代晶晶 (2944)

贵州草海底栖动物汞分布及其对沉积物汞的响应特征 许议元, 曾玲霞, 何天容, 陈梦瑜, 钱晓莉, 李振吉 (2953)

废旧轮胎翻新过程中多环芳烃排放及健康风险 付建平, 赵波, 黎玉清, 刘沙沙, 尹文华, 黄锦琼, 周长风, 张素坤, 贺德春, 韩静磊 (2963)

县级尺度的重庆市碳排放时空格局动态 孙秀峰, 施开放, 吴健平 (2971)

颗粒尺寸对纳米氧化物环境行为的影响 严玉鹏, 唐亚东, 万彪, 王小明, 刘凡, 冯雄汉 (2982)

防晒剂的海洋环境行为与生物毒性 朱小山, 黄静颖, 吕小慧, 杜永芬, 蔡中华 (2991)

《环境科学》征订启事 (2527) 《环境科学》征稿简则 (2723) 信息 (2826, 2852, 2910)

矿业活动影响区稻田土壤和稻米中重金属含量及健康风险

田美玲¹, 钟雪梅², 张云霞¹, 余元元¹, 庞瑞¹, 周浪¹, 宋波^{1*}

(1. 桂林理工大学环境科学与工程学院, 桂林 541004; 2. 桂林理工大学地球科学学院, 桂林 541004)

摘要: 探讨了南丹矿业活动对周边稻田土壤和稻米中重金属含量的影响, 并评估当地居民通过稻米摄入重金属的健康风险。对位于矿业影响区车河镇、大厂镇、长老乡以及对照区六寨镇的 4 个典型村庄居民进行为期 3 d 的入户膳食调查, 同时采集稻田土壤样品 56 个和稻米样品 90 个, 用原子荧光形态分析仪(AFS-9700)、石墨炉原子吸收分光光谱仪(AA 700)和电感耦合等离子体发射光谱仪(Optima 7000)测定其重金属含量, 并通过污染指数法和重金属摄入量评价居民膳食暴露的健康风险。结果表明, 矿业活动影响区稻田土壤 As、Sb、Cd、Pb、Cu 和 Zn 的几何平均值分别为 58.1、16.4、1.22、49.1、52.1 和 271 mg·kg⁻¹, 除 Pb 外, 其他元素均显著高于对照区稻田土壤相应重金属含量($P < 0.05$), Nemerlo 综合指数(P_N)为 3.14, 属于重度污染水平。六寨、车河、大厂和长老地区稻米样品中 Cd 含量均超出标准限值, 超出倍数分别为 2.23、4.40、3.81 和 3.52 倍, As 也存在严重超标现象; 居民 Cd 的摄入量高于 FAO/WHO 提出的重金属人均日摄入可允许限量标准(PTDI)。说明南丹矿业活动对周边稻田土壤和稻米及人群健康的危害明显大于对照区人群, 食用当地稻米对人体存在较大的健康风险。

关键词: 土壤污染; 稻米; 重金属; 健康风险; 南丹

中图分类号: X53; X56; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)06-2919-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201711068

Concentrations and Health Risk Assessments of Heavy Metal Contents in Soil and Rice of Mine Contaminated Areas

TIAN Mei-ling¹, ZHONG Xue-mei², ZHANG Yun-xia¹, YU Yuan-yuan¹, PANG Rui¹, ZHOU Lang¹, SONG Bo^{1*}

(1. College of Environmental Science and Engineering, Guilin University of Technology, Guilin 541004, China; 2. College of Earth Sciences, Guilin University of Technology, Guilin 541004, China)

Abstract: Nandan County is famous for its mining of nonferrous metals. In order to investigate the effects of mining activities on the soil and rice and to evaluate the health risk of the exposure of typical local inhabitants to heavy metals via consumption of rice, a consecutive 3-day household diet survey in four villages in Nandan was conducted. Liuzhai is an uncontaminated contrast area, and Chehe, Dachang, and Zhanglao are contaminated areas. The data for rice consumption rates were obtained. At the same time, 56 soil samples from rice fields and 90 rice samples were collected for the analysis of As, Sb, Cd, Pb, Cu, and Zn. In addition, the potential health risk of the exposure of local people to heavy metals via consumption of the rice was assessed using the pollution index method and the data from the intake of heavy metals. Results showed that the mean contents of As, Sb, Cd, Pb, Cu, and Zn were 58.1, 16.4, 1.22, 49.1, 52.1, and 271 mg·kg⁻¹ in the soil samples from contaminated areas, with higher pollution risks than from the control area for soil heavy metal contents. The Nemerlo comprehensive contamination index (P_N) was 3.14, a heavy pollution grade. Cd contents in rice in Liuzhai, Chehe, Dachang, and Zhanglao were 2.23 times, 4.40 times, 3.81 times, and 3.52 times higher than those of GB 2762-2017. The content in rice exceeds the standard in all four areas. The daily intake (DI) of Cd in the four areas was higher than the provisional tolerable daily intake (PTDI) established by FAO/WHO. This indicates that Cd and As are the major heavy metal elements posing health risks to the health of the inhabitants in the mining areas and that the inhabitants in the mining areas are facing severe risks of exposure to heavy metals.

Key words: soil pollution; rice; heavy metals; health risk; Nandan County

重金属易在人体中蓄积, 会引起慢性中毒。进入土壤环境后可引起食物链中毒^[1-3]。近年来, 工业“三废”排放、矿产开采和后期管理不科学导致众多环境问题产生, 矿区周边农田土壤受到严重污染, 重金属在土壤中蓄积并进入农作物^[4], 最后通过食物链危害到人体健康。农产品作为环境的产物, 其安全状况受环境质量直接影响^[5, 6]。

南丹县位于广西壮族自治区西北部, 矿产资源

丰富, 已探明南丹有色金属矿种有锡、锑、锌、金、银、铜、铁、钨、钼等 20 余种, 总储量达 1 100 万

收稿日期: 2017-11-07; 修订日期: 2017-11-30

基金项目: 国家自然科学基金项目(41261082); 科技成果转化与推广计划项目(桂科转 1599001-1); “八桂学者”建设工程专项; 广西科学基金项目(2013GXNSFEA053002)

作者简介: 田美玲(1991~), 女, 硕士, 主要研究方向为污染土壤修复和区域环境调查与风险评估, E-mail: meilingtian@foxmail.com

* 通信作者, E-mail: songbo@glut.edu.cn

t^[7]. 其中南丹铅、锌矿保有储量在全国排名中靠前, 因此, 南丹被誉为“有色金属之乡”. 然而在矿山开采过程中产生的废水、粉尘和废渣等通过渗滤、大气沉降等途径进入土壤, 致使周边农田环境受到不同程度的影响. 水稻是南丹县第一大粮食作物, 且主要用于食用, 当地居民食用水稻成为重金属危害人体的重要暴露途径之一. 农田土壤重金属污染, 尤其是矿业活动影响区土壤重金属污染一直是学者们关注的重点问题^[8~11], 但只是停留在对污染事件高发区、重金属重度污染区及矿山尾矿周边区域的农产品样品采集调查检测分析, 然后基于国内外等资料推荐的人均农产品摄入量及人均体重进行风险评估, 结果具有一定的局限性和粗放性.

在此对南丹矿业活动影响区稻田土壤和稻米中重金属 As、Sb、Cd、Pb、Cu 和 Zn 等元素进行系统调查, 考虑到地区差异性, 通过进行为期 3 d 的全膳食调查^[12], 得到调查区域居民实际的稻米摄入量及人均体重, 进而评估南丹县居民通过食用稻米摄入的重金属健康风险, 评价结果更具有说服力, 同时对寻求当地农产品安全生产模式, 对保障消费者膳食安全具有重要意义.

1 材料与与方法

1.1 研究区概况

研究区位于多金属矿核心地带, 与工矿区毗邻, 地势由东北向西南方倾斜, 境内多山. 多年来由于矿产资源的不合理开采, 矿山生态环境受到严重威胁. 研究区域分为受影响区和对照区. 受影响区共 3 个: 包括位于多金属带的大厂镇和车河镇境内的离矿业密集区 3~5 km 的典型自然村庄, 以及刁江中上游的长老乡受矿业废水灌溉影响的自然村庄. 同时在地面上风向西北方选取自然环境条件和生活方式与受影响区居民相似, 且基本不受矿业活动影响的六寨镇作为对照区(图 1). 在上述乡镇选定研究区域, 要求所选村庄有 30 户以上常住居民, 且相对集中. 在受影响区大厂镇、车河镇和长老乡分别调查 24、27 和 25 户居民, 对照区调查 26 户居民, 参照膳食调查方法进行为期 3 d 的调查, 并对研究区域居民进行体重测量, 同时采用称重法进行全膳食调查, 记录每户居民每天食用的稻米量及人数, 以估算当地居民的稻米消费量.

1.2 样品采集与处理

于 2014 年 7 月 19 日至 8 月 4 日在研究区域分别采集稻田土壤样品及对应稻米样品, 基于研究区

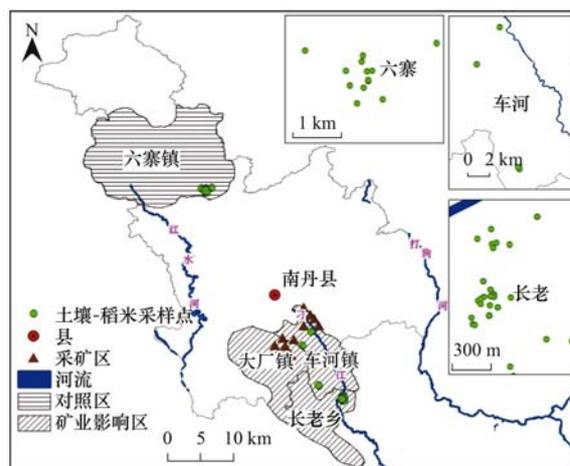


图 1 研究区域样点分布示意

Fig. 1 Regional location map

域中大厂镇和车河镇矿产密集, 居民种植稻米极少, 多从当地农贸市场直接购买, 其产地也难以确定; 而长老乡和六寨镇居民食用的稻米主要为自己种植. 故采集样品时在车河镇和大厂镇分别采集 1 对和 5 对稻田土壤样品及对应稻米样品, 样品量较少; 在长老乡和六寨镇分别采集 36 对和 14 对稻田土壤样品及对应稻米样品, 样品量相对较多(图 1). 考虑到研究区域中有居民食用市场购买的稻米, 故除现场采集样品外, 在各地临近的农贸市场购买稻米作为样品补充, 其中车河镇购买 15 份、大厂镇购买 9 份、长老乡购买 7 份、六寨镇购买 3 份. 综上, 稻田土壤样品和对应稻米样品 56 对, 市场购买稻米样品 34 个, 稻米样品共计 90 个. 土壤样品采用五点法采集, 各取耕作层(0~20 cm)土壤约 1 kg, 混匀后用四分法缩分留取约 1 kg 土壤作为该点的样品带回实验室, 除去石块和植物根系后风干, 之后磨碎分别过 0.841 mm 和 0.149 mm 尼龙筛网装袋密封保存. 土壤样品的采集、混合、研磨和过筛等处理均使用木头、塑料或玛瑙等工具. 稻米样品与土壤样品同步采集, 在稻田土壤样品对应位置采集 5 株水稻, 将稻谷粒从稻穗上碾下混匀作为一个样品置于封口袋中带回实验室, 把稻米和稻壳分开后用自来水清洗干净, 再用超纯水润洗 3~5 次, 自然晾干后于干燥箱中(80℃左右)烘干至恒重, 取出样品用不锈钢打磨机粉碎后装入聚乙烯瓶中拧紧盖子编号待分析.

1.3 样品分析与测试

土壤样品 pH 值分析采用土水比为 1:2.5 的 pH 电位法测定^[13], 土壤样品中重金属 As 和 Sb 用王水浸提法进行消解, 重金属 Cd、Pb、Cu、Zn 采用

HNO₃-H₂O₂ 方法(EPA 3050B)消解; 植物样品中的 As、Sb、Cd、Pb、Cu、Zn 均采用 HNO₃-HClO₄ 方法(EPA 3050B)消解, 消解过程中平行样品和空白对照与实验同步进行. 用电感耦合等离子体发射光谱仪(Optima 7000)测定土壤中的 Cd、Pb、Cu、Zn 含量和植物中的 Cu、Zn 含量, 用石墨炉-原子吸收光谱仪(AA-700)测定植物中的 Cd、Pb 含量, 用原子荧光形态分析仪(AFS-9700)测定土壤和植物中的 As、Sb 含量. 分析过程中加入土壤标准物质样品(GSS-6)和大米标准物质样品(GSB-23)进行质量控制, 回收率在 80% ~ 120% 之间, 分析所用试剂均为优级纯, 所用的水均为超纯水(亚沸水).

1.4 评价方法和数据处理

1.4.1 土壤重金属污染评价

土壤重金属污染评价采用单因子污染指数法和 Nemero 综合指数法进行综合评价^[14], 以我国《食用农产品产地环境质量评价标准》(HJ 332-2006)和《土壤环境质量标准(修订)》(GB 15618-2008)中的标准限值作为临界值参考. 计算公式如下:

$$P_i = \frac{C_i}{S_i} \quad (1)$$

$$P_N = \sqrt{\frac{P_{i_{ave}}^2 + P_{i_{max}}^2}{2}} \quad (2)$$

式中, P_i 为污染指数; C_i 为污染物实测值; S_i 为污染物评价标准值; i 代表某种污染物. 且当 $P_i \leq 1.0$ 时, 样品未受污染; $P_i > 1.0$ 时, 样品已被污染, 且 P_i 值越大, 表明样品受污染越严重; P_N 为 Nemero 综合污染指数, $P_{i_{ave}}$ 为土壤重金属元素中单因子污染指数的平均值, $P_{i_{max}}$ 为土壤重金属元素中单因子污染指数的最大值. 且当 $P_N \leq 0.7$ 时, 土壤样品污染等级为清洁; $0.7 < P_N \leq 1.0$ 时, 为警戒级; $1.0 < P_N \leq 2.0$ 时, 为轻度污染; $2.0 < P_N \leq 3.0$ 时, 为中度污染; $P_N > 3.0$ 时, 为重度污染. 且 P_N 值越大, 表明样品受污染越严重.

1.4.2 基于稻米摄入重金属的健康风险评价

以我国《食品安全国家标准 食品中污染物限量》(GB 2762-2017)作为评价标准, 来估算稻米样品中各重金属超标率.

采用日人均摄入量(daily intake, DI)来评估 4 个地区居民通过稻米摄入重金属量, 公式为:

$$DI = F_{ir} \times C \quad (3)$$

式中, F_{ir} 为食物日均消费量 [$g \cdot (人 \cdot d)^{-1}$], C 为食物中重金属的平均含量 ($mg \cdot kg^{-1}$).

稻米重金属的健康风险评估是指在一定时间内

重金属暴露对人体健康产生不利效应的概率, 采用环境健康风险评价法来评价和预测研究区域环境污染对当地居民是否存在风险, 并根据美国环保署(USEPA 2000)提出的健康风险浓度, 用靶标危害系数(target hazard quotients, THQ)评价当地居民通过摄入稻米途径产生的重金属健康风险^[15, 16]. 公式如下:

$$THQ = \frac{E_f \times E_d \times F_{ir} \times C}{R_f D \times W_{ab} \times T_a} \quad (4)$$

式中, E_f 为暴露频率 ($365 d \cdot a^{-1}$); E_d 为居民平均寿命 (70 a); F_{ir} 为食物日均消费量 [$g \cdot (人 \cdot d)^{-1}$]; C 为稻米中重金属的平均含量 ($mg \cdot kg^{-1}$); $R_f D$ 为参比剂量 [$mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$]; W_{ab} 为人体平均体重 ($kg \cdot 人^{-1}$); T_a 为平均暴露时间 ($d \cdot a^{-1}$). 当 $THQ < 1$, 表示通过膳食途径产生的重金属健康风险不明显; $THQ > 1$, 表示通过膳食途径对相关暴露人群会有重金属健康风险, 且 THQ 值越大表示健康风险越大.

1.4.3 数据处理

采用 Origin 8.0、SPSS 19.0 软件进行数据统计处理与分析, 利用 Arc GIS 10.2 等软件制作研究区域分布示意. 差异分析和相关性分析均采用原始数据进行分析.

2 结果与分析

2.1 土壤重金属含量及污染评价

对研究区域稻田土壤酸度及重金属含量进行分析检测发现, 受影响区和对照区土壤样品 pH 值范围分别为 4.80 ~ 7.42 和 4.38 ~ 7.06, 平均水平表现为弱酸性 ($pH < 6.5$). 经 Kolmogorov-Smirnov (K-S) 正态性检验, 各区域土壤重金属含量经对数转换后均符合正态分布 ($P_{K-S} > 0.05$). 受影响区土壤重金属 As、Sb、Cd、Pb、Cu 和 Zn 的几何平均值分别为 58.1、16.4、1.22、49.1、52.1 和 271 $mg \cdot kg^{-1}$ (表 1), 独立样本 t 检验结果表明: 受影响区土壤 As、Sb、Cd、Cu 和 Zn 含量均显著高于对照区 ($P < 0.05$), 说明受影响区土壤受到多种重金属不同程度的污染, 超出倍数大小表现为: As (6.16 倍) > Sb (5.48 倍) > Zn (2.51 倍) > Cu (2.05 倍) > Cd (1.96 倍) > Pb (1.44 倍). 从地理分布来看, 调查区域处在多金属矿带上, 矿产资源丰富, 土壤重金属本底值偏高^[17]; 再加上开矿历史悠久, 采样区域又与当地铅锌矿及其他矿业活动区毗邻, 矿业开采和加工及“三废”的排放等因素导致重金属在土壤

表 1 受影响区和对照区稻田土壤重金属含量特征及污染评价¹⁾

Table 1 Contents of heavy metals in soils of the mining areas and the non-mining areas

地区	元素	范围 /mg·kg ⁻¹	中值 /mg·kg ⁻¹	算术平均值 /mg·kg ⁻¹	几何平均值 /mg·kg ⁻¹	P_{k-s}	超标率 /%	P_i
对照区 $n = 18$	As	1.01 ~ 213	8.22	22.5 ± 49.7	9.42(3.03)	0.164*	11.1	0.31
	Sb	1.05 ~ 47.1	1.99	6.13 ± 11.3	2.99(2.76)	0.291*	11.1	0.30
	Cd	0.024 ~ 2.46	0.634	0.85 ± 0.636	0.623(2.80)	0.090	93.3	2.08
	Pb	6.00 ~ 238	33.1	64.2 ± 76.1	34.0(3.29)	0.148	28.6	0.43
	Cu	4.22 ~ 97.0	19.2	38.1 ± 33.8	25.4(2.63)	0.226	28.6	0.51
	Zn	40.5 ~ 568	94.0	136 ± 128	108(1.88)	0.176	13.3	0.54
受影响区 $n = 38$	As	8.31 ~ 218	60.3	78.2 ± 55.6	58.1(2.35)	0.339	78.9	1.94
	Sb	1.04 ~ 381	19.0	32.7 ± 62.1	16.4(3.26)	0.223*	73.7	1.64
	Cd	0.108 ~ 8.81	1.11	1.77 ± 1.72	1.22(2.48)	0.13	91.2	4.07
	Pb	6.00 ~ 1736	43.8	108 ± 293	49.1(2.65)	0.441*	23.5	0.61
	Cu	12.1 ~ 146	53.7	57.5 ± 25.8	52.1(1.60)	0.35	52.9	1.04
	Zn	90.8 ~ 1055	315	312 ± 177	271(1.73)	0.155	75.8	1.36

1) * 表示对数转换后的值

环境中不断积累,使受影响区土壤受到严重的重金属污染。

根据稻田土壤样品重金属的实测含量值,我国《食用农产品产地环境质量评价标准》(HJ 332-2006)中规定的 As、Cd、Pb、Cu 和 Zn 标准限值以及《土壤环境质量标准(修订)》(GB 15618-2008)中 Sb 的第二级标准值,结合单因子污染指数和 Nemerlo 综合指数法计算公式(1)、(2)得出的结果(表 1),对照区土壤重金属超标率中最严重的为 Cd 元素,超标率达到 93.3%, P_{Cd} 为 2.08,远大于 1,除 Cd 元素外其他各重金属元素的单因子污染指数均小于 1,对照区土壤的综合污染指数 P_N 为 1.55,属于中度污染水平,而对照区土壤 Cd 含量偏高与当地的高 Cd 环境背景有密切关系^[18, 19]。若排除地质高背景影响因素,此时综合污染指数 P_N 仅为 0.482,表明对照区土壤样品污染等级为清洁,而此结果也符合本实验选定其为对照区的初衷。可见,高背景元素含量对综合污染评价的影响很大。

受影响区土壤各重金属元素中,除 Pb 元素外,其他各重金属元素的 P_i 值均大于 1, Cd 含量超标最为严重($P_{Cd} = 4.07$),超标率达到 91.2%,各重金属污染程度依次为: Cd > As > Sb > Zn > Cu > Pb, Nemerlo 综合指数 P_N 为 3.14,属于重度污染水平,表明受影响区稻田土壤重金属含量处于高危水平,以 Cd 污染最为突出。受影响区稻田土壤的重金属含量存在较高的超标现象,应尽快采取合理措施进行污染土壤治理。

2.2 稻米重金属含量及污染分析

4 个地区稻米样品中各重金属含量经对数转换后,除六寨和长老地区的稻米 Pb 含量不符合正态分布外,其他各重金属元素含量均符合正态分布($P_{k-s} > 0.05$)。通过独立样本 t 检验发现(表 2),对于稻米样品中的 As 含量,受影响区长老显著高于对照区六寨($P < 0.05$),可能由于长老的稻田土壤受到含重金属的刁江水灌溉,导致水体中的 As 在土壤中蓄积,故表现出受影响区稻米样品 As 含量相对对照区存在显著积累现象;对于稻米样品中的 Sb 元素,4 个地区差异均不显著($P > 0.05$);对于稻米样品中的 Cd 元素,受影响区车河、大厂和长老显著高于对照区六寨($P < 0.05$),这可能由于受影响区土壤本身 Cd 含量偏高,即使受影响区的稻米样品有一部分是在农贸市场购买所得,但购买的稻米可能产自附近农田,故也存在受污染的风险;对于稻米样品中的 Pb 元素,受影响区显著高于对照区($P < 0.05$),可能由于 Pb 和 Cd 元素为共生元素,两者通常存在相似性;对于稻米样品中的 Cu 和 Zn 元素,受影响区长老显著高于对照区六寨($P < 0.05$),可能由于研究区域本身是矿区,矿产资源丰富,尤其是铅锌矿,在洗选矿过程中,铅锌颗粒可能随大气沉降和风力作用影响到周边稻米质量,也可能通过根系作用,将土壤中 Pb 和 Zn 转移至水稻植株中,进而在稻米中蓄积,又因为 Pb 和 Zn 具有同源性,所以表现出相似的富集规律。

我国《食品安全国家标准 食品中污染物限量》(GB 2762-2017)标准中规定的糙米无机 As 含量限

表 2 南丹不同地区稻米中重金属含量状况¹⁾/mg·kg⁻¹Table 2 Heavy metal contents of rice in different regions from Nandan County/mg·kg⁻¹

地区	统计量	As	Sb	Cd	Pb	Cu	Zn
六寨	范围	0.030~0.214	0.012~0.134	0.111~7.30	0.104~7.84	0.225~1.25	6.20~15.7
	均值	0.120±0.040 b	0.028±0.029 a	1.53±2.50 b	1.15±2.60 b	0.825±0.414 b	10.4±2.40 b
车河	范围	0.071~0.293	0.012~0.581	0.101~8.47	0.109~9.11	0.487~2.17	5.95~16.7
	均值	0.126±0.053 ab	0.057±0.140 a	2.65±2.94 a	1.87±3.39 a	1.34±0.578 b	11.3±2.78 ab
大厂	范围	0.090~0.267	0.005~0.153	0.104~9.14	0.105~7.87	0.398~4.40	6.35~15.8
	均值	0.149±0.043 ab	0.029±0.037 a	2.56±3.62 a	3.08±3.02 a	1.45±1.16 ab	10.7±2.68 ab
长老	范围	0.005~0.451	0.001~0.101	0.155~9.89	0.116~19.9	0.275~3.48	7.28~19.5
	均值	0.160±0.074 a	0.021±0.016 a	1.13±1.66 b	1.71±3.43 a	2.03±0.769 a	12.2±2.93 a

1) 同一列中数据后小写英文字母不同, 表示区域间该指标元素差异显著($P < 0.05$)

值为 $0.20 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 以无机 As 计, 根据前人对稻米中总 As 和无机 As 含量的测定及分析结果^[20], 稻米中无机 As 约占总 As 的 90%, 按照该比例, 将研究区域测得的稻米总 As 含量转换为无机 As 含量所得的平均值分别为: 六寨 ($0.101 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)、车河 ($0.106 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)、大厂 ($0.130 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)、长老 ($0.126 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)。研究区域稻米中无机 As 含量平均值小于标准限量, 即研究区域稻米中 As 含量未受污染。《食品安全国家标准 食品中污染物限量》(GB 2762-2017) 标准中糙米 Cd 含量限值为 $0.2 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 六寨、车河、大厂和长老稻米中 Cd 含量均超出标准限值, 超出倍数分别为 2.23、4.40、3.85 和 3.52 倍。六寨、车河、大厂和长老稻米中 Pb 含量与上述标准中 Pb 的限制值 ($0.2 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 相比, 超出倍数分别达到 1.50、2.41、6.35 和 3.61 倍。研究区域不同地区稻米中 Cd 和 Pb 含量均超标, 且受影响区超标倍数均比对照区严重, 显示采样区域环境中铅锌矿厂的运作及生产过程中产生的矿山废水, 粉尘和尾矿等因素严重影响到周边农作物水稻中重金属含量, 并对其造成污染。在车河和大厂大部分稻谷样品是从市场中购买, 其 Cd 和 Pb 含量几乎是最高的, 可以推理: 车河和大厂市场出售的稻谷有可能来自周边污染区, 虽说调查区极少看到水稻种植。

2.3 稻米对重金属的生物富集

稻米中重金属含量水平及其对土壤重金属的富集能力直接关系到稻米生产和食用安全。研究区稻米对重金属的富集系数显示(表 3), 稻米对不同重金属元素的富集能力不尽一致, 受影响区和对照区稻米对不同重金属的富集系数也有不同, 但比较发现, 受影响区稻米对 Cd 的富集能力最强, 富集系数达到 0.777, 其次为 Zn 和 Cu, Sb 最弱, 这与前

人研究结果相一致^[21]。可见, 土壤 Cd 易于在稻米中汇总富集, 而 Sb 在稻米中属于低富集元素。说明稻米易受土壤中 Cd 的影响, 且稻田土壤中 Cd 含量越高, 稻米 Cd 含量也会响应增加。Zn 和 Cu 作为农作物生长所必需的营养元素, 故对其有一定的需求和富集。

表 3 受影响区和对照区稻米重金属富集系数

Table 3 BCFs of heavy metals in rice of the mining areas and the non-mining areas

区域	As	Sb	Cd	Pb	Cu	Zn
对照区	0.003	0.001	0.445	0.012	0.034	0.042
受影响区	0.012	0.005	0.777	0.019	0.047	0.089

为探究土壤环境对稻米中重金属含量的直接影响, 对土壤重金属含量与对应稻米重金属含量进行 Pearson 相关性分析。结果显示: 对照区土壤和稻米中 Cd ($R = 0.967$, $P = 0.000$) 含量在 0.01 水平上呈显著正相关, Cu ($R = 0.772$, $P = 0.042$) 含量在 0.05 水平上呈显著正相关, 而其他对应重金属含量相关性未达到显著水平。受影响区土壤和稻米中 Cd ($R = 0.371$, $P = 0.074$) 含量在 0.1 水平上呈正相关, 对应其他重金属含量相关性均未达到显著水平。说明土壤中的高含量 Cd 和 Cu 元素在一定程度上可能促进了稻米对土壤中相应元素的吸收, 最终致使这些元素在稻米中积累。这与前文推测的稻田土壤中 Cd 含量越高, 稻米 Cd 含量也会响应增加的结论相一致。同时表明稻米重金属含量除受土壤重金属影响外, 还与其他环境因素有关。

2.4 通过稻米摄入重金属健康风险评估

假设稻米烹饪过程中不影响其中的重金属含量, 即稻米中的重金属含量与人体摄入稻米重金属的量相等。在研究区域调查选取 3 个受影响区(车

河、大厂和长老)和一个对照区(六寨),调查对象年龄范围、人数情况参照陆素芬等^[22]的相关调查.综合调查结果得出,受影响区和对照区成年人平均体重分别为 55.4 kg 和 51.6 kg. 入户对居民的膳食结构和稻米消费量调查,得出六寨、车河、大厂和长老居民的人均稻米消费量分别为 250、282、224 和 278 $\text{g}\cdot(\text{人}\cdot\text{d})^{-1}$,均低于中国居民膳食宝塔推荐量 300~500 $\text{g}\cdot(\text{人}\cdot\text{d})^{-1}$ ^[23],故对居民稻米消费量进行调查,有助于对居民通过稻米途径摄入重金属

的具体研究.

重金属对人体的毒害程度依赖于人们对食物的日摄入量,调查区域居民通过稻米途径每日摄入重金属 As、Sb、Cd、Pb、Cu 和 Zn 含量见表 4. 4 个地区居民对 Cd 的摄入量高于联合国粮食及农业组织(FAO)和世界卫生组织(WHO)提出的重金属人均日摄入可允许限量标准(PTDI)^[24],受影响区居民通过稻米摄入的重金属含量普遍高于对照区.从人体日均摄入重金属含量来看,受影响区应优先控制 Cd 元素.

表 4 调查区域居民通过稻米日摄入重金属量及其健康风险

Table 4 Estimated daily intake of heavy metals through rice consumption by adults in the different regions of Nandan County

重金属	参比剂量 $R_{\text{fD}}^{[25-27]}$ $/\mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$	人均日摄入可允许限量 标准 PTDI/ $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$	人均日摄入量 DI/ $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$				靶标危害系数 THQ			
			六寨	车河	大厂	长老	六寨	车河	大厂	长老
As	0.3	128	28.1	33.2	32.3	39.0	1.81	1.99	1.94	2.35
Sb	0.4	360	5.33	7.18	4.42	4.59	0.258	0.324	0.200	0.207
Cd	1	72	114	248	171	196	2.21	4.48	3.08	3.53
Pb	4	200	75.0	120	285	201	0.364	0.544	1.29	0.906
Cu	40	6500	172	341	250	511	0.083	0.154	0.113	0.231
Zn	300	33000	253	310	234	329	0.163	0.186	0.140	0.198

根据上述选定的参数及各重金属对应的 R_{fD} ,计算 4 个地区居民通过食用稻米的重金属健康风险 THQ 值,六寨、车河、大厂和长老 As 健康风险 THQ 值分别达到 1.81、1.99、1.94 和 2.35,具有潜在的重金属接触暴露健康风险,且长老居民通过稻米途径摄入的 As 健康风险最大,说明位于矿区下游被洪水淹没的农田土壤会受到严重的 As 污染. 4 个地区 Cd 健康风险 THQ 值均大于 1,且 THQ 值大小表现为:车河 > 长老 > 大厂 > 六寨,即受影响区居民通过食用稻米将会产生较高的 Cd 健康风险,风险最高的是车河,其 THQ 值为 4.48,显示车河镇居民食用的稻米存在严重的 Cd 污染. 大厂 Pb 健康风险 THQ 值为 1.29,说明当地居民食用的稻米存在一定的健康风险. 其他研究区域通过稻米摄入重金属的 THQ 值均小于 1,说明通过稻米途径摄入的其他类重金属的居民健康风险不明显.

3 讨论

土壤-作物-人体系统中重金属的迁移直接影响到人体健康,研究区域为多金属矿核心地带,由于当地采矿及选洗矿的发展,导致矿产冶炼加工过程中重金属元素暴露,经渗透或地表水径流进入矿区周边土壤,造成环境重金属污染. 研究表明:矿业活动影响区稻田土壤中平均 As 含量高于我国《食用农产品产地环境质量评价标准》(HJ 332-2006)中规定的标准限值,超标率达 78.9%,这些

超标样点大部分分布在车河、大厂和长老地区. 又六寨、车河、大厂和长老这 4 个地区稻米中平均 As 含量均低于国家相应标准,但仍存在超标稻米样品,且超标率为 11.1%,这些超标稻米样品主要分布在长老地区,而长老地区的稻米样品多数为现场采集样品,故可推测受刁江水灌溉影响,长老地区的稻米从土壤中过量富集 As 元素,进而威胁稻米的安全生产. 从居民通过稻米途径摄入重金属 As 的健康风险 THQ 值来看,六寨、车河、大厂和长老这 4 个地区 As 健康风险 THQ 值均大于 1. 稻田土壤中 As 的超标率很大,超标倍数也较大,污染比较严重,而稻米中 As 的平均含量并不高,超标率也较低,对人体的健康危害却相对较大,这可能是水稻对土壤中的 As 元素吸收和富集能力不大,而人体通过稻米可以吸收较多的 As 所导致,亦或由于土壤中的重金属具有隐蔽性和滞后性等特点,土壤中的重金属 As 总量与作物中的积累量并不具有很强的正相关性所致,这与齐雁冰等^[28]的研究结果相一致.

对于 Pb 元素,矿业活动影响区稻田土壤平均 Pb 含量低于我国《食用农产品产地环境质量评价标准》(HJ 332-2006)中规定的标准限值,但仍有部分水稻土壤样品 Pb 含量超标,超标率达 23.5%,存在一定的污染,而六寨、车河、大厂和长老这 4 个地区水稻中 Pb 含量出现严重的超标现象,超标率达到 70.2%,各个地区 Pb 健康风险 THQ 值除大厂

地区大于 1, 存在一定的健康风险外, 其他 3 个地区 Pb 健康风险 THQ 值均小于 1. 说明除大厂地区外, 六寨、车河和长老这 3 个地区居民通过稻米途径摄入 Pb 的健康风险不明显, 这可能是水稻对土壤中的 Pb 元素吸收和富集能力较大, 而人体通过稻米途径吸收的 Pb 含量较少所导致, 亦或由于评价稻田土壤和稻米中 Pb 的污染状况时采用了不一致的评价标准所致.

研究区域中对照区稻田土壤 Cd 存在污染, 受影响区 Cd 对土壤环境存在严重污染, 尤其是长老地区. 这是由于矿业活动影响区(长老)属于山地, 稻田灌溉水基本来源于流经矿山的刁江水系, 水体伴有矿渣在稻田土壤中蓄积, 导致稻田土壤重金属含量不断积累, 进而通过水稻的根系作用迁移至稻米, 最终对人体健康造成威胁. 又由于研究区域属于地质高背景区^[18, 19], 土壤中重金属含量本来就较一般水平高, 故出现对照区和受影响区稻田土壤 Cd 含量均较高的结果. 杭小帅等^[29]调查常熟市高风险区水稻籽粒重金属含量, 发现稻米中 Pb 和 Cd 超标严重, Pb 的超标率达 28.4%. 吴迪等^[30]对贵州典型铅锌矿区的水稻土壤和稻米中重金属含量进行了调查, 发现矿区水稻土壤污染严重, 以 Cd 最为突出, 超标 84.9 倍, 稻米也存在重金属污染风险. 可见矿区稻田土壤重金属污染形势严峻, 在一定程度上影响稻米品质. 调查显示, 研究区域稻米中 Cd 和 Pb 含量均超标, 且受影响区超标情况均比对照区严重.

食物摄入是生活在矿区及周边地区居民接触重金属最直接最主要的途径, 调查地区居民食用当地稻米存在 Cd、As 和 Pb 的健康风险, 除了稻米重金属含量, 居民健康风险值也与稻米消费量及进食其他食品(蔬菜、肉制品等)有关. 总结前人的研究结果并与本次研究结果相比较可看出, 南丹矿业活动影响区周边居民通过食用稻米摄入的重金属 As、Cd 和 Pb 接触暴露风险高于广东省北部某铅锌矿周边(As、Cd 和 Pb 对应的 THQ 分别为 0.894、2.74 和 0.334)、天津某污灌区(As、Cd 和 Pb 对应的 THQ 分别为 0.563、0.107 和 0.165)及蚌埠市(As、Cd 和 Pb 对应的 THQ 分别为 1.00、1.30 和 0.26)^[31-33], 说明矿业活动影响区居民食用的稻米存在 As、Cd 和 Pb 的健康风险. 为降低居民通过稻米摄入重金属的风险, 建议采取适当措施, 在综合考虑土壤污染、稻米对土壤中重金属富集能力的基础上, 对矿区重金属污染土壤进行治理, 同时建议

受影响区居民尽量在当地少种植稻米, 少食用当地稻米.

4 结论

(1) 南丹矿业活动影响区稻田土壤受到重金属不同程度的污染, 以 Cd、As 污染最为严重, 属于重度污染水平; 稻米样品中 Cd 和 Pb 含量均超标, 且受影响区稻米重金属含量普遍高于对照区, 对照区和受影响区稻米对 Cd 的富集能力最强, 富集系数达到 0.777.

(2) 调查区域稻米中 As 和 Cd 健康风险 THQ 值均大于 1, 为降低当地居民的健康风险, 建议应尽量少食用当地稻米.

参考文献:

- [1] 张甘霖, 朱永官, 傅伯杰. 城市土壤质量演变及其生态环境效应[J]. 生态学报, 2003, 23(3): 539-546.
Zhang G L, Zhu Y G, Fu B J. Quality changes of soils in urban and suburban areas and its eco-environmental impacts—a review [J]. Acta Ecologica Sinica, 2003, 23(3): 539-546.
- [2] Chen T B, Zheng Y M, Lei M, et al. Assessment of heavy metal pollution in surface soils of urban parks in Beijing, China [J]. Chemosphere, 2005, 60(4): 542-551.
- [3] Banat K M, Howari F M, Al-Hamad A A. Heavy metals in urban soils of central Jordan: should we worry about their environmental risks? [J]. Environmental Research, 2005, 97(3): 258-273.
- [4] Razo I, Carrizales L, Castro J, et al. Arsenic and heavy metal pollution of soil, water and sediments in a semi-arid climate mining area in Mexico [J]. Water, Air, and Soil Pollution, 2004, 152(1-4): 129-152.
- [5] 陈君石. 食品安全需要被全面科学认识: 食品质量安全—现状与趋势[J]. 食品工业科技, 2007, 28(6): 11.
- [6] 赵其国, 周炳中, 杨浩. 江苏省环境质量与农业安全问题研究[J]. 土壤, 2002, 34(1): 1-8.
- [7] 叶绪孙, 潘其云. 广西南丹大厂锡多金属矿田发现史[J]. 广西地质, 1994, 7(4): 85-94.
Ye X S, Pan Q Y. Discovery history of Dachang Tin-polymetallic orefield, Nandan county, Guangxi [J]. Guangxi Geology, 1994, 7(4): 85-94.
- [8] 范中亮, 季辉, 杨菲, 等. 不同土壤类型下杂交水稻地上部器官对重金属镉和铅的富集特征[J]. 中国水稻科学, 2010, 24(2): 183-188.
Fan Z L, Ji H, Yang F, et al. Accumulation Characteristics of Cadmium and Lead in aboveground organs of indica hybrid rice as affected by different soil types [J]. Chinese Journal of Rice Science, 2010, 24(2): 183-188.
- [9] Rahman A K M R, Hossain S M, Akramuzzaman M M. Distribution of heavy metals in rice plant cultivated in industrial effluent receiving soil [J]. EnvironmentAsia, 2010, 3(2): 15-19.
- [10] 汤文光, 唐海明, 罗尊长, 等. 不同种植模式对稻田土壤重金属含量及晚稻稻米品质的影响[J]. 作物学报, 2011, 37(8): 1457-1464.
Tang W G, Tang H M, Luo Z C, et al. Impacts of winter

- planting patterns on soil heavy metal content and grain quality in late rice in double cropping rice area [J]. *Acta Agronomica Sinica*, 2011, **37**(8): 1457-1464.
- [11] Bennett J P, Chiriboga E, Coleman J, *et al.* Heavy metals in wild rice from northern Wisconsin [J]. *Science of the Total Environment*, 2000, **246**(2-3): 261-269.
- [12] 何丽, 赵文华. 120 膳食调查方法的特点与应用[J]. 国外医学卫生学分册, 2003, **30**(6): 368-371.
- [13] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000. 638.
- [14] Cheng J L, Shi Z, Zhu Y W. Assessment and mapping of environmental quality in agricultural soils of Zhejiang province, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2007, **19**(1): 50-54.
- [15] Han B C, Jeng W L, Chen R Y, *et al.* Estimation of target hazard quotients and potential health risks for metals by consumption of seafood in Taiwan[J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 1998, **35**(4): 711-720.
- [16] 甘国娟. 土壤-水稻系统重金属迁移特征与区域污染风险评估[D]. 长沙: 中南林业科技大学, 2013.
- [17] 余元元, 黄宇妃, 宋波, 等. 南丹县矿区周边土壤与农产品重金属含量调查及健康风险评估[J]. *环境化学*, 2015, **34**(11): 2133-2135.
- [18] 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990.
- [19] 宋波, 田美玲, 陈同斌, 等. 基于文献数据的广西典型土壤铅含量特征及其风险研究[J]. *土壤学报*, 2017, **54**(1): 92-107.
- Song B, Tian M L, Chen T B, *et al.* Characterization of Pb contents in typical soils of Guangxi and risk assessment based on literature data[J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2017, **54**(1): 92-107.
- [20] Roychowdhury T. Impact of sedimentary arsenic through irrigated groundwater on soil, plant, crops and human continuum from Bengal delta: special reference to raw and cooked rice[J]. *Food and Chemical Toxicology*, 2008, **46**(8): 2856-2864.
- [21] 尹伊梦, 赵委托, 黄庭, 等. 电子垃圾拆解区土壤-水稻系统重金属分布特征及健康风险评估[J]. *环境科学*, 2018, **39**(2): 916-926.
- Yin Y M, Zhao W T, Huang T, *et al.* Distribution characteristics and health risk assessment of heavy metals in a soil-rice system in an e-waste dismantling area [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(2): 916-926.
- [22] 陆素芬, 宋波, 伏凤艳, 等. 南丹矿业活动影响区蔬菜重金属含量及健康风险[J]. *生态与农村环境学报*, 2016, **32**(3): 478-485.
- Lu S F, Song B, Fu F Y, *et al.* Heavy metal content in vegetable and its health risk as affected by mining activities in Nandan county[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2016, **32**(3): 478-485.
- [23] 中国营养学会. 中国居民膳食指南及平衡膳食宝塔[J]. *营养学报*, 1998, **20**(4): 5-15.
- [24] Ostapczuk P, Valenta P, Rützel H, *et al.* Application of differential pulse anodic stripping voltammetry to the determination of heavy metals in environmental samples [J]. *Science of the Total Environment*, 1987, **60**: 1-16.
- [25] Ferré-Huguet N, Martí-Cid R, Schuhmacher M, *et al.* Risk assessment of metals from consuming vegetables, fruits and rice grown on soils irrigated with waters of the Ebro River in Catalonia, Spain[J]. *Biological Trace Element Research*, 2008, **123**(1-3): 66-79.
- [26] 高继军, 张力平, 黄圣彪, 等. 北京市饮用水源水重金属污染物健康风险的初步评价[J]. *环境科学*, 2004, **25**(2): 47-50.
- Gao J J, Zhang L P, Huang S B, *et al.* Preliminary health risk assessment of heavy metals in drinking waters in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2004, **25**(2): 47-50.
- [27] 李如忠, 潘成荣, 徐晶晶, 等. 典型有色金属矿业城市零星菜地蔬菜重金属污染及健康风险评估[J]. *环境科学*, 2013, **34**(3): 1076-1085.
- Li R Z, Pan C R, Xu J J, *et al.* Contamination and health risk for heavy metals via consumption of vegetables grown in fragmentary vegetable plots from a typical nonferrous metals mine city[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(3): 1076-1085.
- [28] 齐雁冰, 黄标, 杨玉峰, 等. 苏州市不同区域水稻籽粒重金属积累特征与健康风险评估[J]. *农业环境科学学报*, 2010, **29**(4): 659-665.
- Qi Y B, Huang B, Yang Y F, *et al.* Heavy metal accumulation characteristics and risk assessment of rice grain in different regions of Suzhou city, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2010, **29**(4): 659-665.
- [29] 杭小帅, 周健民, 王火焰. 常熟市高风险区水稻籽粒重金属污染特征及评价[J]. *中国环境科学*, 2009, **29**(2): 130-135.
- Hang X S, Zhou J M, Wang H Y. Heavy metal pollution characteristics and assessment of rice grain from a typical high risk area of Changshu city, Jiangsu Province [J]. *China Environmental Science*, 2009, **29**(2): 130-135.
- [30] 吴迪, 杨秀珍, 李存雄, 等. 贵州典型铅锌矿区水稻土壤和水中重金属含量及健康风险评估[J]. *农业环境科学学报*, 2013, **32**(10): 1992-1998.
- Wu D, Yang X Z, Li C X, *et al.* Concentrations and health risk assessments of heavy metals in soil and rice in zinc-lead mining area in Guizhou province, China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, **32**(10): 1992-1998.
- [31] 邹梦遥, 张磊, 周遗品, 等. 某铅锌矿周边地区大米重金属污染评价及膳食暴露风险评估[J]. *广东农业科学*, 2015, **42**(16): 64-70.
- Zou M Y, Zhang L, Zhou Y P, *et al.* Pollution evaluation and dietary exposure risk assessment of heavy metals in rice from a lead-zinc ore mine[J]. *Guangdong Agricultural Sciences*, 2015, **42**(16): 64-70.
- [32] 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估[J]. *农业环境科学学报*, 2015, **34**(4): 679-685.
- Sun Y F, Wang Z W, Meng W Q, *et al.* Contents and health risk assessment of heavy metals in wheat and rice grown in Tianjin sewage irrigation area, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2015, **34**(4): 679-685.
- [33] 朱兰保, 盛蒂, 戚晓明, 等. 蚌埠市水稻籽粒重金属污染及健康风险评估[J]. *食品安全*, 2014, **35**(4): 53-56.
- Zhu L B, Sheng D, Qi X M, *et al.* Heavy metal pollution and health risk assessment of rice grain in Bengbu city[J]. *Science and Technology of Food Industry*, 2014, **35**(4): 53-56.

CONTENTS

Diurnal Variation of SOA Formation Potential from Ambient Air at an Urban Site in Beijing	LIU Jun, CHU Bi-wu, HE Hong (2505)
Characteristics of Key Size Spectrum of PM _{2.5} Affecting Winter Haze Pollution in Taiyuan	YANG Su-ying, YU Xin-yang, ZHAO Xiu-yong, <i>et al.</i> (2512)
Characteristics and Source Apportionment of Water-soluble Ions in PM _{2.5} During Winter in Panjin	ZHANG Lei, JI Ya-qin, WANG Shi-bao, <i>et al.</i> (2521)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds in the Rainy Season of Guangzhou City	GU Ying-gang, YU Xiao-fang, YANG Wen-da, <i>et al.</i> (2528)
Emission Characteristics of Dehydrated Sugar and Acephenanthrylene in Particles from Tropical Forest Burning	JIN Cheng-miao, CUI Min, HAN Yong, <i>et al.</i> (2538)
Construction and Application of Vertical Diffusion Index for Analyzing Weather During Pollution Events in Tianjin	CAI Zi-ying, HAN Su-jin, ZHANG Min, <i>et al.</i> (2548)
Comparison Between Atmospheric Wet-only and Bulk Nitrogen Depositions at Two Sites in Subtropical China	ZHU Xiao, WANG Jie-fei, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2557)
Emission Reduction Benefits When Eliminating Yellow-label Vehicles in the Jing-jin-ji Region	LU Ya-ling, ZHOU Jia, CHENG Xi, <i>et al.</i> (2566)
Health Assessment of the Stream Ecosystem in the North Canal River Basin, Beijing, China	GU Xiao-yun, XU Zong-xue, LIU Lin-fei, <i>et al.</i> (2576)
Pollution Characteristics and Source Identification of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Phthalic Acid Esters During High Water Level Periods in the Wuhan Section of the Yangtze River, China	DONG Lei, TANG Xian-qiang, LIN Li, <i>et al.</i> (2588)
Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Downstream Areas of the Aojiang River, Fujian Province	ZHANG Dan-dan, GUO Ya-ping, REN Hong-yun, <i>et al.</i> (2600)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in the Sediments of the Estuary of the Tributaries in the Three Gorges Reservoir, SW China	FANG Zhi-qing, CHEN Qiu-yu, YIN De-liang, <i>et al.</i> (2607)
Assessment of Physico-chemical Properties and Phosphorus Fraction Distribution Characteristics in Sediments after Impounding of the Three Gorges Reservoir to 175 m	PAN Chan-juan, LI Rui, TANG Xian-qiang, <i>et al.</i> (2615)
Source of Nitrate in Surface Water and Shallow Groundwater Around Baiyangdian Lake Area Based on Hydrochemical and Stable Isotopes	KONG Xiao-le, WANG Shi-qin, DING fei, <i>et al.</i> (2624)
Thermal Stratification and Its Impacts on Water Quality in Shahe Reservoir, Liyang, China	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i> (2632)
Spatial and Temporal Variation Characteristics of Drip Water Hydrogeochemistry in the Xueyu Cave of Chongqing and Its Implications for Environmental Research	ZENG Ze, JIANG Yong-jun, LÜ Xian-fu, <i>et al.</i> (2641)
Distinguishing the Compositions and Sources of the Chromophoric Dissolved Organic Matter in a Typical Karst River During the Dry Season; A Case Study in Bitan River, Jinfo Mountain	LIU Yue, HE Qiu-fang, LIU Ning-kun, <i>et al.</i> (2651)
Environmental Significance of the Stable Isotopes in Precipitation at Different Altitudes in the Tuolai River Basin	LI Yong-ge, LI Zong-xing, FENG Qi, <i>et al.</i> (2661)
Spatial-Temporal Variations of CO ₂ and CH ₄ Flux Through a Water-air Interface Under the Effect of Primary Productivity in Wulixia Reservoir	PENG Wen-jie, LI Qiang, SONG Ang, <i>et al.</i> (2673)
Spatiotemporal Succession Characteristics of Algal Functional Groups and Its Impact Factors for a Typical Channel-Type Reservoir in a Southwest Mountainous Area	ZHANG Yao-wen, LI Hong, LI Jia, <i>et al.</i> (2680)
Seasonal Succession of Phytoplankton Functional Groups and Their Driving Factors in the Siminghu Reservoir	ZHENG Cheng, LU Kai-hong, XU Zhen, <i>et al.</i> (2688)
Effects of Nutrient Addition on the Growth and Competition of Bloom Forming Cyanobacterium <i>Chrysochloris ovalisporum</i> ; An In-situ Experiment	WANG Meng-meng, ZHANG Wei, ZHANG Jun-yi, <i>et al.</i> (2698)
Purification Effect of Submerged Macrophyte System with Different Plants Combinations and C/N Ratios	LIU Miao, CHEN Kai-ning (2706)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Concentration Dynamics in Natural Ditches Under an Irrigation-Drainage Unit in the Jiangnan Plain	HUA Ling-ling, ZHANG Fu-lin, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (2715)
Distribution and Treatment of Antibiotics in Typical WWTPs in Small Towns in China	CHAI Yu-feng, ZHANG Yu-xiu, CHEN Mei-xue, <i>et al.</i> (2724)
Effects and Mechanism of the Combination of Ozone-PAC as a Pretreatment for the Reduction of Membrane Fouling	DONG Bing-zhi, GAO Hao-yang, HU Meng-liu (2732)
Start-up and Process Characteristics of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification (SAD) in a Pilot-scale Anaerobic Sequencing Batch Reactor (ASBR)	YU De-shuang, TANG Jia-jia, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (2740)
Phosphate Removal on Zirconium Alginate/Poly(<i>N</i> -isopropyl acrylamide) Hydrogel Beads with a Semi-interpenetrating Network	ZENG Xue-yang, LUO Hua-yong, ZHANG Yao-kun, <i>et al.</i> (2748)
Shortcut Nitrification Rapid Start and Stability of Corn Starch Wastewater	LONG Bei-sheng, LIU Xun-lei, LIU Hong-bo, <i>et al.</i> (2756)
Nitrifying Bacteria Culture in Entrapment Immobilization	YANG Hong, HU Yin-long (2763)
Performance of the Removal of Nitrogen During Anaerobic Ammonia Oxidation Using Different Operational Strategies	AN Fang-jiao, PENG Yong-zhen, DONG Zhi-long, <i>et al.</i> (2770)
Transformation of Protein in Sludge During High Solids Anaerobic Digestion	ZHAN Yu, SHI Wan-sheng, ZHAO Ming-xing, <i>et al.</i> (2778)
Changes in Heavy Metal Speciation and Release Behavior Before and After Sludge Composting Under a Phosphate-rich Atmosphere	LI Yu, FANG Wen, QI Guang-xia, <i>et al.</i> (2786)
Effect of Denitrification and Phosphorus Removal Microorganisms in Activated Sludge Bulking Caused by Filamentous Bacteria	GAO Chen-chen, YOU Jia, CHEN Yi, <i>et al.</i> (2794)
Microbial Population Dynamics During Domestication and Cultivation of Biofilm to Remove and Enrich Phosphate	MENG Xuan, PAN Yang, ZHANG Hao, <i>et al.</i> (2802)
Effects of Elevated Tetracycline Concentrations on Aerobic Composting of Human Feces: Composting Behavior and Microbial Community Succession	SHI Hong-lei, WANG Xiao-chang, LI Qian, <i>et al.</i> (2810)
Effect of Long-term Organic Amendments on Nitric Oxide Emissions from the Summer Maize-Winter Wheat Cropping System in Guanzhong Plain	YUAN Meng-xuan, WANG Jin-feng, TAN Yue-hui, <i>et al.</i> (2819)
Effects of Mushroom Residue Application Rates on Net Greenhouse Gas Emissions in the Purple Paddy Soil	QI Le, GAO Ming, ZHOU Peng, <i>et al.</i> (2827)
Estimation of Winter Wheat Photosynthesized Carbon Distribution and Allocation Belowground via ¹³ C Pulse-labeling	SUN Zhao-an, CHEN Qing, HAN Xiao, <i>et al.</i> (2837)
Effects of Vegetation Restoration on Soil Nitrogen Pathways in a Karst Region of Southwest China	YANG Yi, OUYANG Yun-dong, CHEN Hao, <i>et al.</i> (2845)
Identifying the Origins and Spatial Distributions of Heavy Metals in the Soils of the Jiangsu Coast	LÜ Jian-shu, HE Hua-chun (2853)
Source Identification and Spatial Distribution of Heavy Metals in Soils in Typical Areas Around the Lower Yellow River	YU Yuan-he, LÜ Jian-shu, WANG Ya-meng (2865)
Spatial Variation of Soil Heavy Metals in Lin'an City and Its Potential Risk Evaluation	ZHENG Jing-zhi, WANG Chu-dong, WANG Shi-han, <i>et al.</i> (2875)
Principal Component Analysis and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Farmland Soils around a Pb-Zn Mine in Southwestern China	ZHOU Yan, CHEN Qiang, DENG Shao-po, <i>et al.</i> (2884)
Spatial Variation of Heavy Metals in Soils and Its Ecological Risk Evaluation in a Typical <i>Carya cathayensis</i> Production Area	ZHANG Hong-ju, ZHAO Ke-li, YE Zheng-qian, <i>et al.</i> (2893)
Influence of Biochar Application on Growth and Antioxidative Responses of Macrophytes in Subsurface Flow Constructed Wetlands	HUANG Lei, CHEN Yu-cheng, ZHAO Ya-qi, <i>et al.</i> (2904)
Effect of Iron on the Release of Arsenic in Flooded Paddy Soils	WANG Xin, ZHONG Song-xiong, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2911)
Concentrations and Health Risk Assessments of Heavy Metal Contents in Soil and Rice of Mine Contaminated Areas	TIAN Mei-ling, ZHONG Xue-mei, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (2919)
Effect of Calcium Silicate-biological Humus Fertilizer Composite on Uptake of Cd by Shallots from Contaminated Agricultural Soil	LIU De-ling, YIN Guang-cai, CHEN Zhi-liang, <i>et al.</i> (2927)
Accumulation Characteristics of Heavy Metals in Greenhouse Soil and Vegetables in Siping City, Jilin Province	LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, ZENG Xi-hai, <i>et al.</i> (2936)
Effect of Foliar Zinc Application on Bioaccessibility of Cadmium and Zinc in Pakchoi	WANG Lin, GU Peng-lei, LI Ran, <i>et al.</i> (2944)
Mercury Distribution of Benthonic Animals and Response to Mercury in Sediments in Caohai Wetland, Guizhou Province	XU Yi-yuan, ZENG Ling-xia, HE Tian-rong, <i>et al.</i> (2953)
Discussion of Emissions and Health Risk of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) from the Retreading Process of Waste Tires	FU Jian-ping, ZHAO Bo, LI Yu-qing, <i>et al.</i> (2963)
Spatiotemporal Dynamics of CO ₂ Emissions in Chongqing: An Empirical Analysis at the County Level	SUN Xiu-feng, SHI Kai-fang, WU Jian-ping (2971)
Impact of Size on Environmental Behavior of Metal Oxide Nanoparticles	YAN Yu-peng, TANG Ya-dong, WAN Biao, <i>et al.</i> (2982)
Fate and Toxicity of UV Filters in Marine Environments	ZHU Xiao-shan, HUANG Jing-ying, LÜ Xiao-hui, <i>et al.</i> (2991)