

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

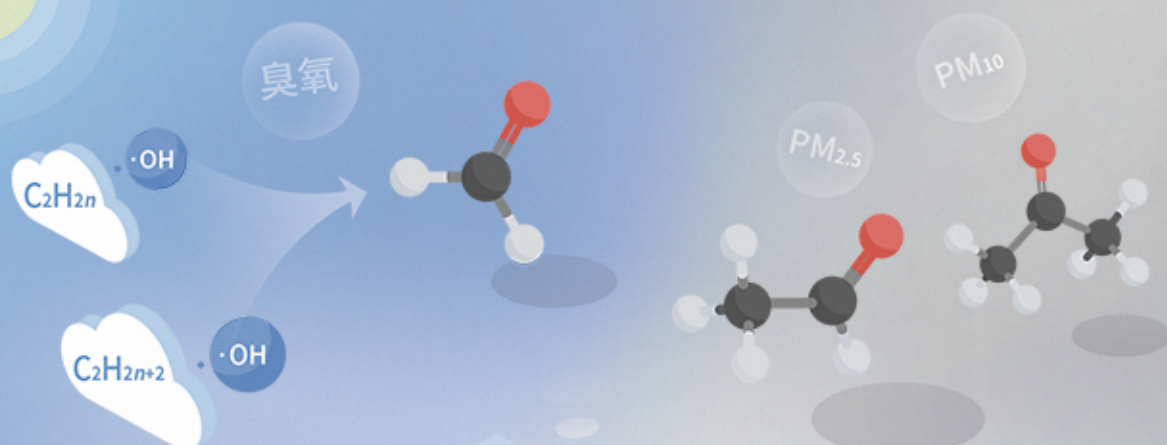
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

基于PMF和源示踪物比例法的大气羰基化合物来源解析：以南京市观测为例
胡崑，王鸣，王红丽，景盛翱，陈文泰，卢兴东



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年1月

第42卷 第1期
Vol.42 No.1

目次

2019年国庆节前后北京气态氨和气溶胶铵盐浓度的同步观测	顾梦娜, 潘月鹏, 宋琳琳, 李萍, 田世丽, 武岳洋, 杨婷婷, 李浩洋, 石生伟, 吐莉尼沙, 吕雪梅, 孙倩, 方运霆 (1)
基于无人机探空和数值模拟天津一次重污染过程分析	杨旭, 蔡子颖, 韩素芹, 史静, 唐颖潇, 姜明, 邱晓滨 (9)
中原城市群典型城市秋冬季大气 PM _{2.5} 污染特征及溯源	苗青青, 姜楠, 张瑞芹, 赵孝因, 齐静文 (19)
沈阳市冬季大气 PM _{2.5} 中水溶性离子污染特征及来源解析	王国祯, 任万辉, 于兴娜, 侯思宇, 张毓秀 (30)
保定地区 PM _{2.5} 中重金属元素的污染特征及健康风险评价	雷文凯, 李杏茹, 张兰, 徐静, 赵文吉, 刘子锐 (38)
基于 PMF 和源示踪物比例法的大气羰基化合物来源解析:以南京市观测为例	胡崑, 王鸣, 王红丽, 景盛翔, 陈文泰, 卢兴东 (45)
2019年天津市挥发性有机物污染特征及来源	高璟赞, 肖致美, 徐虹, 李立伟, 李鹏, 唐邈, 杨宁, 李源, 毕温凯, 陈魁 (55)
柳州市春季大气挥发性有机物污染特征及源解析	刘齐, 卢星林, 曾鹏, 于爽 (65)
天津市郊夏季的臭氧变化特征及其前体物 VOCs 的来源解析	罗瑞雪, 刘保双, 梁丹妮, 毕晓辉, 张裕芬, 冯银厂 (75)
2017年春夏期间南京地区臭氧污染输送影响及潜在源区	谢放尖, 陆晓波, 杨峰, 李文青, 李洁, 谢轶嵩, 王艳, 刘益和, 王庆九, 胡建林 (88)
2006~2019年珠三角地区臭氧污染趋势	赵伟, 高博, 卢清, 钟志强, 梁小明, 刘明, 马社霞, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳 (97)
大型石化企业邻近区域大气沉降中多环芳烃赋存特征及源解析	李大雁, 齐晓宝, 吴健, 黄沈发, 王敏, 沙晨燕, 沈城 (106)
叶片大气颗粒物滞纳能力评估方法的定量对比	岳晨, 李广德, 席本野, 曹治国 (114)
东江流域敌敌畏的排放量估算及归趋模拟	张冰, 张芊芊, 应光国 (127)
松花江哈尔滨段及阿什河抗生菌的分布规律与生态风险评估	杨尚乐, 王旭明, 王伟华, 胡雪莹, 高立伟, 孙兴滨 (136)
东北小兴凯湖沉积物 POPs 污染特征及生态风险评估	李慧, 李捷, 宋鹏, 程云轩, 焦立新, 杨亚铮 (147)
河南省地表水源中 PPCPs 分布及生态风险评估	周颖, 吴东海, 陆光华, 姚晶晶, 魏磊, 韩枫 (159)
无锡-常州地下水中内分泌干扰物的赋存特征和健康风险评估	王淑婷, 饶竹, 郭峰, 刘成海, 战楠, 王娅南, 彭洁, 杨鸿波 (166)
清江流域地表水重金属季节性分布特征及健康风险评估	刘昭, 周宏, 曹文佳, 刘伟, 兰圣涛 (175)
会仙岩溶湿地丰平枯时期地下水金属元素污染与健康风险	李军, 赵一, 邹胜章, 蓝美宁, 樊连杰, 谢浩, 秦月, 朱丹尼 (184)
三峡库区城镇化影响下河流 DOM 光谱特征季节变化	陈昭宇, 李思悦 (195)
不同植物覆盖下黄河三角洲湿地土壤中微塑料的分布	岳俊杰, 赵爽, 程昊东, 段鑫越, 石洪华, 汪磊, 端正花 (204)
基于宏基因组学探讨东平湖水库的菌群结构、耐药基因谱及其公共健康风险	张红娜, 崔娜, 申红妙 (211)
分层型水库藻类季相演替的细菌种群驱动机制	闫苗苗, 张海涵, 黄廷林, 宗容容, 刘凯文, 苗雨甜, 杨尚业, 黄鑫, 王娜 (221)
丹江口库区浮游真菌组成与功能及其影响因素	郑保海, 王晓宇, 李英军, 陈彦, 李百炼, 李玉英, 陈兆进 (234)
太湖出流河道藻颗粒变化及其水质效应	郭宇龙, 许海, 陈旭清, 郑建中, 詹旭, 朱广伟, 朱梦圆 (242)
石盘丘小流域不同土地利用方式下土壤氮磷流失形态及通量	邓华, 高明, 龙翼, 黎嘉成, 王莹燕, 王子芳 (251)
前期干旱天数对生物滞留系统除氮性能的影响	陈焱, 李欣芮, 郑爽, 刘臻, 余雪花, 程启洪 (263)
浒苔生物炭对雨水径流中氨氮的吸附特性及吸附机制	陈友媛, 李培强, 李闲驰, 孙萍, 赵新月, 李洁, 李晋, 辛至然 (274)
填料对潮汐流人工湿地中 CANON 作用强化的影响	刘冰, 郑煜铭, 秦会安, 古励 (283)
FeMnNi-LDHs 对水中 As(Ⅲ) 的吸附性能与机制	廖玉梅, 余杰, 魏世强, 蒋珍茂 (293)
硝酸钙添加和铅改性膨润土覆盖联用控制底泥中磷释放的效果及机制	张宏华, 林建伟, 詹艳慧, 俞阳, 张志斌 (305)
某市污水厂抗生素和抗生素抗性基因的分布特征	颜亚玮, 於驰晟, 李菲菲, 姚鹏城, 刘宏远 (315)
不同污泥在微波预处理-厌氧消化过程中抗性基因分布及菌群结构演替	李慧莉, 武彩云, 唐安平, 佟娟, 魏源送 (323)
天然富硒土地划定的富硒阈值	王惠艳, 曾道明, 郭志娟, 成晓梦, 彭敏, 孙跃 (333)
融合自然-人为因子改进回归克里格对土壤镉空间分布预测	高中原, 肖荣波, 王鹏, 邓一荣, 戴伟杰, 刘楚藩 (343)
南方典型水稻土镉(Cd)累积规律模拟	戴雅婷, 傅开道, 杨阳, 王美娥, 陈卫平 (353)
闽西南土壤-水稻系统重金属生物可给性及健康风险	林承奇, 蔡宇豪, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 黄华斌 (359)
干湿交替灌溉制度下纳米修复材料对杂交水稻籽粒 Cd 累积及产量的影响	杨茹, 陈馨睿, 张颖, 崔俊义, 武立权, 马友华, 廖江, 何海兵 (368)
三元复合调理剂对土壤镉赋存形态和糙米镉累积的调控效应	蒋毅, 刘雅, 辜娇峰, 杨世童, 曾雄, 王轩宁, 周航, 廖柏寒 (378)
风化煤组配改良剂结合水分管理对水稻根际土壤与稻米甲基汞含量的影响	郑顺安, 吴泽赢, 杜兆林, 倪润祥, 姚启星 (386)
不同施肥措施对水稻土壤微生物拮抗性的影响	郑开凯, 马志远, 孙波, 梁玉婷 (394)
氮添加影响下新疆天山雪岭云杉林土壤酶活性及其与环境因子的相关性	张涵, 贡璐, 刘旭, 邵康, 李昕竹, 李蕊希 (403)
黄土丘陵区撂荒农田土壤酶活性及酶化学计量变化特征	钟泽坤, 杨改河, 任成杰, 韩新辉 (411)
生物炭对土壤酶活性和细菌群落的影响及其作用机制	冯慧琳, 徐辰生, 何欢辉, 曾强, 陈楠, 李小龙, 任天宝, 姬小明, 刘国顺 (422)
植被恢复对刺萼龙葵根际土壤细菌群落结构与功能的影响	张瑞海, 宋振, 付卫东, 郭玲玲, 高金会, 王然, 王忠辉, 张国良 (433)
黄壤稻田土壤微生物量碳氮及水稻品质对生物炭配施氮肥的响应	史登林, 王小利, 刘安凯, 侯再芬, 梁国太 (443)
等碳量添加秸秆和生物炭对土壤呼吸及微生物量碳氮的影响	何甜甜, 王静, 符云鹏, 符新妍, 刘天, 李亚坤, 李建华 (450)
秸秆与氮肥配比对农田土壤内外源碳释放的影响	孙昭安, 张轩, 胡正江, 王开永, 陈清, 孟凡乔 (459)
生物炭与化肥混合对氨挥发和磷固定的影响	杨文娜, 邓正昕, 李娇, 郑杰炳, 王子芳, 高明 (467)
氮肥减投条件下膜材料使用对稻田氨挥发排放的影响	俞映惊, 王梦凡, 杨根, 何世颖, 段婧婧, 杨林章, 薛利红 (477)
微塑料对斑马鱼胚胎孵化影响及其在幼鱼肠道中的积累	赵佳, 饶本强, 郭秀梅, 高进勇 (485)
无人机热红外支持下的城市微尺度热环境模拟	阳少奇, 冯莉, 田慧慧, 刘艳霞 (492)
基于人居尺度的中国城市热岛强度时空变化及其驱动因子解析	孙艳伟, 王润, 郭青海, 高超 (501)

闽西南土壤-水稻系统重金属生物可给性及健康风险

林承奇^{1,2}, 蔡宇豪¹, 胡恭任³, 于瑞莲³, 郝春莉¹, 黄华斌^{1,3*}

(1. 厦门华厦学院环境与公共健康学院, 厦门 361024; 2. 环境监测福建省高校重点实验室, 厦门 361024; 3. 华侨大学化工学院, 厦门 361021)

摘要: 结合简单的生物可给性提取法(SBET)与健康风险评估模型,研究了闽西南农田土壤-水稻系统中重金属的生物可给性及健康风险. 结果表明,闽西南农田土壤和稻米中部分重金属已存在富集. 土壤中 Cd、Zn、Pb 和 Cu 含量分别在 32.4%、15.5%、14.1% 和 12.7% 的区域超过农用地土壤污染风险筛选值(GB 15618-2018). 研究区稻米从土壤中富集重金属的能力为 $Cd > Zn > Cu > Ni > Hg > As > Cr > Pb$. 土壤和稻米中各重金属的生物可给性差异较大,且稻米中各重金属的生物可给性均大于土壤中对应重金属的生物可给性,稻米中重金属相对于土壤更容易被人体吸收. 重金属对成人和儿童的综合非致癌风险指数(HI)分别为 2.71 和 4.06,可能存在非致癌风险;重金属对成人和儿童的综合致癌风险指数(TCR)分别为 1.42×10^{-3} 和 5.28×10^{-4} ,可能存在致癌风险. 非致癌风险主要由 As 贡献,而致癌风险主要由 Cd 贡献. 重金属对儿童的非致癌风险高于成人,而致癌风险低于成人,可能与生理特征、暴露期限和饮食摄入量等有关. 通过食物经口摄入可能是该地区土壤-水稻系统中重金属产生健康风险的主要途径,在重金属健康风险管理中应重点关注饮食暴露途径的风险.

关键词: 重金属; 生物可给性; 健康风险; 土壤-水稻系统; 闽西南

中图分类号: X171.5; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)01-0359-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202005247

Bioaccessibility and Health Risks of the Heavy Metals in Soil-Rice System of Southwest Fujian Province

LIN Cheng-qi^{1,2}, CAI Yu-hao¹, HU Gong-ren³, YU Rui-lian³, HAO Chun-li¹, HUANG Hua-bin^{1,3*}

(1. College of Environment and Public Health, Xiamen Huaxia University, Xiamen 361024, China; 2. Key Laboratory of Fujian Universities for Environmental Monitoring, Xiamen 361024, China; 3. College of Chemical Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, China)

Abstract: The bioaccessibility and health risks of heavy metals in soil-rice system of southwestern Fujian province were studied by combining a simple bioavailability extraction method (SBET) with a health risk assessment model. The results showed that some heavy metals in the agricultural soils and rice of southwestern Fujian province were enriched. The contents of Cd, Zn, Pb, and Cu were greater than the screening value of soil pollution risk for agricultural land (GB 15618-2018) by 32.4%, 15.5%, 14.1%, and 12.7% in the study areas, respectively. The accumulation ability of heavy metals was different and followed the approximately decreasing order of $Cd > Zn > Cu > Ni > Hg > As > Cr > Pb$. The bioaccessibility of heavy metals in soils and rice were quite different. The bioaccessibility of each heavy metal in rice was greater than the bioaccessibility of the heavy metals in soil, which indicated that the heavy metals in rice were more easily absorbed by the human body. The comprehensive non-carcinogenic risk index (HI) of heavy metals to adults and children was 2.71 and 4.06, respectively, indicating that there were non-carcinogenic risks. The comprehensive carcinogenic risk index (TCR) of heavy metals to adults and children was 1.42×10^{-3} and 5.28×10^{-4} , respectively, indicating that there was a carcinogenic risk present. The non-carcinogenic risks were mainly due to As, while the carcinogenic risks were mainly contributed by Cd. The non-carcinogenic risk of children was higher than that of adults, while the carcinogenic risk of children was lower than that of adults. This result may be related to physiological characteristics, exposure period, and dietary intake. The dietary intake route may be the main pathway for heavy metals in the soil-rice system of southwest Fujian province to cause health risks. Therefore, more attention should be paid to the risks of dietary exposure in the risk management of heavy metals.

Key words: heavy metal; bioaccessibility; health risk; soil-rice system; southwest Fujian Province

土壤中的重金属污染是一个复杂的环境问题,越来越多学者从环境与健康的角度对其进行研究^[1,2]. 特别是农田土壤中的重金属,中国需要用世界 7% 的农田来养活世界 22% 的人口,对作物产量具有更高的要求,农药化肥的大量使用造成农田土壤重金属污染^[3,4]. 蓄积在农田土壤中的重金属既可能影响作物产量并通过食物链进入人体,也可能通过直接暴露途径(经口摄入、呼吸吸入和皮肤接触)进入人体^[5,6]. 而重金属在人体内累积则可能造

成健康危害,如镉和铅会影响神经系统并导致肾功能衰竭^[7]. 稻米是我国乃至世界人民的主食之一,世界上以稻米为主食的人口超过一半^[8]. 有研究表明,稻米中重金属主要来源于其生长的土壤^[9,10],因

收稿日期: 2020-05-23; 修订日期: 2020-07-01

基金项目: 国家自然科学基金项目(21777049); 福建省中青年教育科研项目(JT180785); 福建省高校杰出青年科研人才培育计划项目(MJK2018-31-158)

作者简介: 林承奇(1991~),男,硕士,讲师,主要研究方向为环境监测与评价, E-mail: lincengqia@163.com

* 通信作者, E-mail: Huanghuabinhx@163.com

此,研究稻田土壤-水稻系统重金属的健康风险具有重要意义。

对于重金属通过直接暴露和食物链等途径对人体产生的非致癌和致癌风险,美国环保署(USEPA)已建立了一套完整的评估模型^[11,12]。但是,早期的研究存在一些不足,一方面,在进行农田土壤重金属的健康风险评价时,只考虑土壤直接暴露途径^[13,14],或者只考虑食物链(稻米)途径^[15,16],这可能会使评价结果被低估;另一方面,大多数研究基于重金属总量进行健康风险评价^[17,18],但重金属进入人体并不是完全被吸收,因此,可能会使评价结果被高估。因此,在进行重金属健康风险评价时,应考虑重金属的生物可给性,即能被胃肠液溶出的重金属占总量的百分比,用来表征能被人体吸收的重金属相对量,可通过体外模拟胃肠液提取的方式进行测定^[19]。大多数重金属的生物可给性部分会在模拟胃液的酸性条件下溶出,因此,简单的生物可给性提取法(SBET)可以适用于大部分重金属^[20]。该方法操作简单,可短时处理大量样品,因而被 USEPA 确立为铅的生物可给性测定的标准方法^[21]。结合重金属的生物可给性进行健康风险评价,其结果将更具可比性和准确性。

福建省位于中国东南沿海,是我国南方主要的粮食产地之一^[22]。闽西南是福建省的主要水稻种植区域之一,主要是九龙江流域,包括龙岩、漳州和厦门等城市^[23]。该区域农业经济发达,以约福建省 1/8 的土地贡献着约 1/4 的 GDP,其农田土壤-水稻系统重金属污染状况关系着该地区经济的可持续发展及居民身体健康^[24~26]。

本文以闽西南农田土壤-水稻系统为研究对象,分析土壤和稻米中重金属含量及生物可给性,结合健康风险评价,通过阐明该地区稻米中重金属富集特征以及土壤中重金属通过直接暴露途径与食物链途径对人体的非致癌和致癌风险,以期为该地区农业生产安全及健康评估提供一定科学依据。

1 材料与方法

1.1 样品的采集及预处理

2017 年夏季水稻成熟期间,采集了农田土壤样品 71 个,采样期间部分点位的水稻已完成收割,因此只在其中 45 个采样点处同时采集了稻米样品,具体采样点分布见图 1。土壤样品为采样点处周围 5 个耕层(0~20 cm)土壤样品的混合样,用竹制铲子进行采样;稻米样品为对应采样点处周围 10 株成熟水稻的稻穗的混合样。土壤样品在

干净的实验台上自然风干,之后经碾碎去杂物并研磨,分别过 2 mm 筛(用于测定 pH 等理化参数)和 0.075 mm 筛(用于测定重金属含量)。稻米样品晾干后,用脱壳机脱壳制成糙米,然后用粉碎机研磨成粉末。

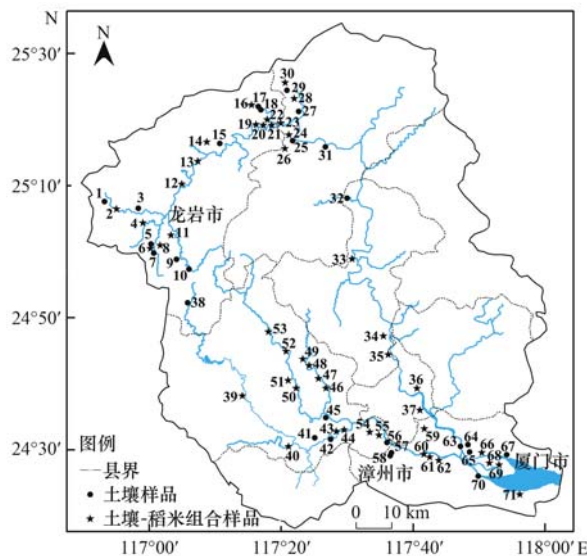


图 1 闽西南农田土壤-水稻采样点分布示意

Fig. 1 Sampling locations of agricultural soils and rice from southwest Fujian Province

1.2 样品中重金属含量测定

土壤中重金属(Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd 和 Pb)总量采用混酸(HNO_3 、 HCl 和 HF)湿法消解,土壤中 Hg 总量采用王水水浴消解,消解液经 0.45 μm 滤膜过滤后,用 2% HNO_3 溶液定容并于 4℃ 保存。稻米中重金属(Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Pb 和 Hg)总量采用混酸(HNO_3 和 HClO_4)湿法消解(压力消解罐),消解液经 0.45 μm 滤膜过滤后,用 2% HNO_3 溶液定容并于 4℃ 保存。土壤和稻米中重金属生物可给性采用简单的生物可给性提取法(SBET 法)提取。将样品与模拟胃液(0.4 mol·L⁻¹ 氨基乙酸溶液,盐酸调节 pH=1.5)按 1:100 的比例混合于离心管中,在 37℃ 100 r·min⁻¹ 的条件下振荡提取 1 h。提取液离心并经 0.45 μm 滤膜过滤后,置于 4℃ 保存。

重金属总量消解液及模拟胃提取液中重金属(Cr、Ni、Cu、Zn、Cd、Pb 和 As)用电感耦合等离子体质谱(ICP-MS, Agilent 7700x)进行测定, Hg 用原子荧光光谱(AFS, AFS-820)进行测定。各重金属的检出限见表 1。实验过程中,通过全程空白、平行样测定及标准物质同步分析等手段进行质量控制,其中,平行样测定的 RSD 在 5% 以下,标准物质测定的回收率在 $\pm 10\%$ 之内;测定过程中,通过内标进行质量控制,内标回收率在 $\pm 20\%$ 之内。

表 1 重金属检出限/mg·kg⁻¹
Table 1 Detection limits for the examined heavy metals/mg·kg⁻¹

项目	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb	Hg
土壤重金属总量	0.03	0.01	0.02	0.2	0.03	0.01	0.02	0.002
稻米重金属总量	0.05	0.2	0.05	0.5	0.02	0.01	0.02	0.001
重金属生物可给性	0.01	0.01	0.02	0.1	0.02	0.01	0.01	0.001

1.3 分析方法

1.3.1 稻米重金属生物富集系数

生物富集系数可以用于评价稻米从土壤中富集重金属的能力,其计算如式(1)^[27]:

$$BCF = C_G / C_T \tag{1}$$

式中,BCF 为稻米中重金属生物富集系数, C_G 和 C_T 分别为稻米和土壤中重金属含量,mg·kg⁻¹.

1.3.2 生物可给性

SBET 方法用于分析胃部环境中可溶解并被生物吸收的重金属部分的比例,即重金属的生物可给性.土壤和稻米中的重金属生物可给性计算如式(2)^[28]:

$$BA = \left(\frac{C_i \cdot V_i}{C_s \cdot M_s} \right) \times 100\% \tag{2}$$

式中,BA 为重金属的生物可给性,%; C_i 为模拟胃液中重金属含量,mg·L⁻¹; V_i 为模拟胃液体积,L; C_s 为土壤或稻米中重金属含量,mg·kg⁻¹; M_s 为土壤或稻米的称样质量,kg.

1.3.3 健康风险评价方法

健康风险评价方法是用于评估人体经化学暴露后的非致癌风险和致癌风险^[29].本研究中,居民主要通过土壤颗粒经口摄入、皮肤接触、呼吸吸入以及稻米经口摄入这 4 个途径接触土壤中重金属.

成人和儿童通过这 4 种暴露途径的日均摄入量计算如式(3)~(6);重金属对人体的非致癌和致

癌风险指数计算如式(7)~(8)^[18,30-32]:

$$ADI_{\text{摄食-土}} = C_{\pm} \times BA_{\pm} \times \frac{\text{IngR}_{\pm} \times EF \times ED}{BW \times AT} \times 10^{-6} \tag{3}$$

$$ADI_{\text{呼吸吸入}} = C_{\pm} \times \frac{\text{InhR}_{\pm} \times EF \times ED}{PEF \times BW \times AT} \tag{4}$$

$$ADI_{\text{皮肤接触}} = C_{\pm} \times \frac{SA \times AF \times ABS \times EF \times ED}{BW \times AT} \times 10^{-6} \tag{5}$$

$$ADI_{\text{摄食-米}} = C_{\text{米}} \times BA_{\text{米}} \times \frac{\text{IngR}_{\text{米}} \times EF \times ED}{BW \times AT} \times 10^{-3} \tag{6}$$

$$HI = \sum_{i=1}^n HQ_i = \sum_{i=1}^n \frac{ADI_i}{\text{RfD}_i} \tag{7}$$

$$TCR = \sum_{i=1}^n CR_i = \sum_{i=1}^n (ADI_i \times SF_i) \tag{8}$$

式中,ADI 为日均摄入量,mg·(kg·d)⁻¹;BA 为经胃肠吸收的重金属生物可给性,%;HI 和 HQ 分别为综合及单元素致癌健康风险指数;TCR 和 CR 分别为综合及单元素致癌健康风险指数.公式(3)~(6)中所用参数的含义及取值见表 2;公式(7)~(8)中所用参数的含义及取值见表 3.

重金属的非致癌风险分为无风险(HI/HQ<1)和有风险(1≤HI/HQ);致癌风险分为无风险(TCR/CR<10⁻⁶)、有人体可耐受的风险(10⁻⁶≤TCR/CR<10⁻⁴)和有人体不可耐受的风险(10⁻⁴≤TCR/CR)^[37].

表 2 日均暴露量(ADI)计算参数

Table 2 Parameters used in the calculation of the average daily intake (ADI)

参数	含义	取值		单位	文献
		成人	儿童		
IngR _±	土壤颗粒摄入速率	100	200	mg·d ⁻¹	[30]
EF	暴露频率	350	350	d·a ⁻¹	[30]
ED	暴露期	24	6	a	[30]
InhR _±	土壤颗粒吸入速率	16	7.6	m ³ ·d ⁻¹	[33]
BW	体重	60.5	27.7	kg	[34,35]
AT	平均暴露时间(非致癌)	ED×365	ED×365	d	[34]
AT	平均暴露时间(致癌)	75.8×365	75.8×365	d	[34]
SA	暴露皮肤面积	5700	2800	cm ²	[31]
AF	皮肤黏附系数	0.07	0.2	mg·(cm·d) ⁻¹	[32]
ABS	皮肤吸收因子	0.001	0.001	—	[36]
PEF	颗粒物释放因子	1.36×10 ⁹	1.36×10 ⁹	m ³ ·kg ⁻¹	[32]
IngR _米	稻米摄入速率	336.7	227.6	g·d ⁻¹	[34,35]

表 3 健康风险指数计算参数^[14,18]

Table 3 Parameters used in the calculation of the health risk index

元素	参考剂量 RfD/mg·(kg·d) ⁻¹			斜率系数 SF/(kg·d)·mg ⁻¹		
	经口摄入	皮肤接触	呼吸吸入	经口摄入	皮肤接触	呼吸吸入
Cr	3.00 × 10 ⁻³	6.00 × 10 ⁻⁵	2.86 × 10 ⁻⁵	5.00 × 10 ⁻¹	2.0 × 10 ¹	4.2 × 10 ¹
Ni	2.00 × 10 ⁻²	5.40 × 10 ⁻³	9.00 × 10 ⁻⁵	1.7 × 10 ⁰	4.25 × 10 ¹	8.40 × 10 ⁻¹
Cu	4.00 × 10 ⁻²	1.20 × 10 ⁻²	4.02 × 10 ⁻²	— ¹⁾	—	—
Zn	3.00 × 10 ⁻¹	6.00 × 10 ⁻²	3.00 × 10 ⁻¹	—	—	—
As	3.00 × 10 ⁻⁴	1.23 × 10 ⁻⁴	3.00 × 10 ⁻⁴	1.50 × 10 ⁰	3.66 × 10 ⁰	1.51 × 10 ¹
Cd	1.00 × 10 ⁻³	1.00 × 10 ⁻⁵	1.00 × 10 ⁻⁵	6.1 × 10 ⁰	6.3 × 10 ⁰	6.30 × 10 ⁰
Pb	3.50 × 10 ⁻³	5.25 × 10 ⁻⁴	3.52 × 10 ⁻³	8.50 × 10 ⁻³	—	—
Hg	3.00 × 10 ⁻⁴	2.10 × 10 ⁻⁵	8.57 × 10 ⁻⁵	—	—	—

1) “—”表示无该参数

2 结果与分析

2.1 土壤和稻米中重金属总量

闽西南农田土壤和稻米中重金属总量统计见表 4。土壤中各元素平均含量为 Cr(61.80 mg·kg⁻¹)、Ni(12.85 mg·kg⁻¹)、Cu(35.05 mg·kg⁻¹)、Zn(151.71 mg·kg⁻¹)、As(10.22 mg·kg⁻¹)、Cd(0.338 mg·kg⁻¹)、Pb(72.29 mg·kg⁻¹)和 Hg(0.167 mg·kg⁻¹)。对比福建省土壤元素背景值^[38],除 Ni 外,其他元素的平均含量均超过背景值,且土壤中 Cd、Zn、Pb 和 Cu 含量在部分地区(分别占比 32.4%、15.5%、14.1%和 12.7%)高于农用地土壤污染风险筛选值(GB 15618-2018),可见,土

壤中部分重金属已存在不同程度的富集,可能存在污染风险。

稻米中各元素平均含量为 Cr(0.362 mg·kg⁻¹)、Ni(0.266 mg·kg⁻¹)、Cu(4.122 mg·kg⁻¹)、Zn(26.29 mg·kg⁻¹)、As(0.158 mg·kg⁻¹)、Cd(0.103 mg·kg⁻¹)、Pb(0.067 mg·kg⁻¹)和 Hg(0.003 mg·kg⁻¹)。根据国家标准(GB 2762-2017 和 NY 861-2004),谷物中 Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Pb 和 Hg 的含量限值分别为 1、0.4、10、50、0.7、0.2、0.2 和 0.02 mg·kg⁻¹。研究区域稻米中 Cd、Ni 和 Cu 分别有 8.9%、4.4%和 2.2%超出标准限值,其余元素含量均在标准限值之内,可见,稻米中个别重金属已存在累积,应引起重视。

表 4 闽西南农田土壤和稻米中重金属含量统计

Table 4 Statistics of the heavy metal content in agricultural soil and rice from southwest Fujian Province

元素	土壤						稻米		
	含量(平均值 ± 标准差) /mg·kg ⁻¹	变异 系数	背景值 /mg·kg ⁻¹	风险筛选值/mg·kg ⁻¹			含量(平均值 ± 标准差) /mg·kg ⁻¹	变异 系数	标准限值 /mg·kg ⁻¹
				pH ≤ 5.5	5.5 < pH ≤ 6.5	pH > 6.5			
Cr	61.80 ± 21.79	0.35	41.3	250	250	300	0.362 ± 0.175	0.48	1
Ni	12.85 ± 5.17	0.4	13.5	60	70	100	0.266 ± 0.102	0.38	0.4
Cu	35.05 ± 15.56	0.44	21.6	50	50	100	4.122 ± 1.751	0.42	10
Zn	151.71 ± 63.52	0.42	82.7	200	200	250	26.29 ± 5.60	0.21	50
As	10.22 ± 2.22	0.22	5.78	30	30	25	0.158 ± 0.058	0.37	0.7
Cd	0.338 ± 0.163	0.48	0.054	0.3	0.4	0.6	0.103 ± 0.086	0.83	0.2
Pb	72.29 ± 27.64	0.38	34.9	80	100	140	0.067 ± 0.043	0.64	0.2
Hg	0.167 ± 0.041	0.24	0.081	0.5	0.5	0.6	0.003 ± 0.001	0.28	0.02

2.2 土壤和稻米中重金属生物可给性

闽西南农田土壤和稻米中重金属生物可给性结果见图 2。土壤中各重金属的生物可给性顺序为: Cd(65.01% ± 16.40%) > Pb(37.44% ± 15.11%) > Cu(28.31% ± 11.52%) > Zn(17.46% ± 10.46%) > Hg(14.71% ± 7.21%) > As(11.67% ± 6.60%) > Ni(7.12% ± 3.45%) > Cr(0.53% ± 0.36%)。这一顺序与李继宁等^[39]的研究结果相似。不同重金属的生物可给性差异较大,平均生物可给性最高的 Cd(65.01%)是最低的 Cr(0.53%)的约 123 倍。这一结果说明重金属进入人体后能被吸收

的比例不同,可能与重金属的种类及其在土壤中的赋存形态等有关。例如,本研究中 Cd 的生物可给性最高,其在研究区土壤中主要以弱酸溶态存在(46.2%),而 Cr 的生物可给性最低,其在研究区土壤中主要以残渣态存在(78.4%)^[40]。

稻米中各重金属的生物可给性顺序为: Pb(77.85% ± 14.04%) > Cd(72.86% ± 13.40%) > Zn(69.51% ± 9.82%) > Cu(59.96% ± 13.44%) > Ni(55.68% ± 6.67%) > As(53.88% ± 12.54%) > Hg(43.62% ± 8.37%) > Cr(11.29% ± 2.78%)。与土壤类似的是,不同重金属的生物可给性差异较

大;不同的是,各重金属生物可给性的大小顺序不一致,且稻米中各重金属的生物可给性均大于土壤中对应重金属的生物可给性,这一结果说明,稻米中重金属相对于土壤更容易被人体吸收,一旦食物受到重金属污染,其摄入的潜在健康危害较大,农产品中重金属的健康风险不容忽视。

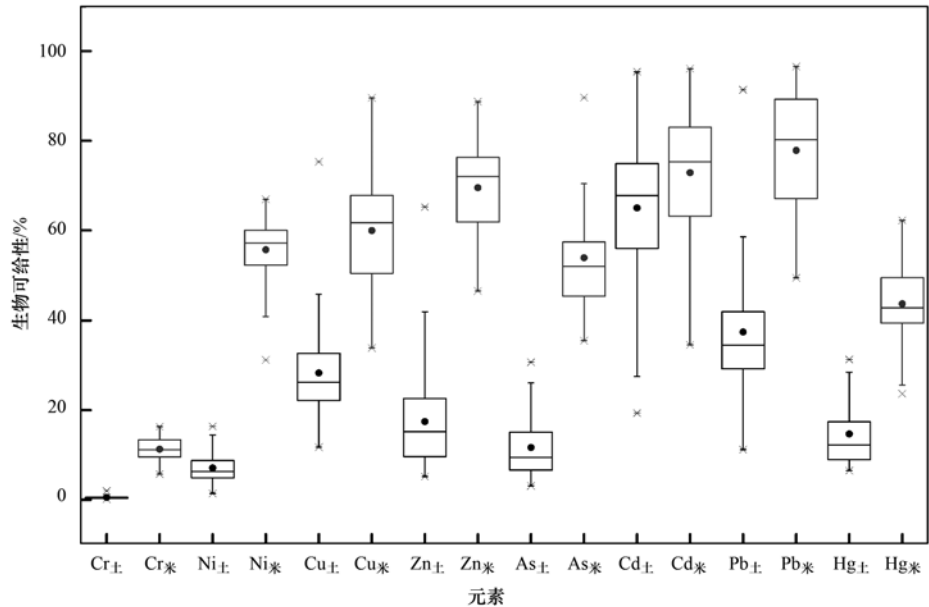


图2 土壤和稻米中重金属的生物可给性
Fig. 2 Bioaccessibility of heavy metals in agricultural soils and rice

2.3 土壤和稻米中重金属健康风险
闽西南农田土壤-水稻系统中重金属的非致癌风险指数和致癌风险指数计算结果见表5。不同重金属元素对人体的健康风险以及重金属通过不同暴露途径对人体的健康风险的贡献见图3。

只考虑单一重金属时,As对成人和儿童的非致

表5 不同重金属及暴露途径的致癌和非致癌风险指数¹⁾

Table 5 Results of non-carcinogenic and the carcinogenic risk of the different pathways and elements

不同元素/ 暴露途径	非致癌风险指数		致癌风险指数	
	成人	儿童	成人	儿童
	平均值±标准差	平均值±标准差	平均值±标准差	平均值±标准差
Cr	$7.58 \times 10^{-2} \pm 2.92 \times 10^{-2}$	$1.22 \times 10^{-1} \pm 4.50 \times 10^{-2}$	$3.54 \times 10^{-5} \pm 1.38 \times 10^{-5}$	$1.40 \times 10^{-5} \pm 5.25 \times 10^{-6}$
Ni	$4.00 \times 10^{-2} \pm 1.73 \times 10^{-2}$	$5.92 \times 10^{-2} \pm 2.55 \times 10^{-2}$	$4.31 \times 10^{-4} \pm 1.86 \times 10^{-4}$	$1.60 \times 10^{-4} \pm 6.85 \times 10^{-5}$
Cu	$3.36 \times 10^{-1} \pm 1.91 \times 10^{-1}$	$4.97 \times 10^{-1} \pm 2.83 \times 10^{-1}$	—	—
Zn	$3.25 \times 10^{-1} \pm 8.28 \times 10^{-2}$	$4.80 \times 10^{-1} \pm 1.22 \times 10^{-1}$	—	—
As	$1.43 \times 10^0 \pm 3.62 \times 10^{-1}$	$2.13 \times 10^0 \pm 5.34 \times 10^{-1}$	$2.04 \times 10^{-4} \pm 5.15 \times 10^{-5}$	$7.59 \times 10^{-5} \pm 1.90 \times 10^{-5}$
Cd	$3.89 \times 10^{-1} \pm 2.91 \times 10^{-1}$	$5.76 \times 10^{-1} \pm 4.30 \times 10^{-1}$	$7.51 \times 10^{-4} \pm 5.62 \times 10^{-4}$	$2.78 \times 10^{-4} \pm 2.08 \times 10^{-4}$
Pb	$8.71 \times 10^{-2} \pm 3.90 \times 10^{-2}$	$1.64 \times 10^{-1} \pm 6.58 \times 10^{-2}$	$8.13 \times 10^{-7} \pm 3.68 \times 10^{-3}$	$3.80 \times 10^{-7} \pm 1.55 \times 10^{-7}$
Hg	$2.21 \times 10^{-2} \pm 3.64 \times 10^{-3}$	$3.30 \times 10^{-2} \pm 5.34 \times 10^{-3}$	—	—
经口摄入-土	$1.92 \times 10^{-2} \pm 8.65 \times 10^{-3}$	$8.37 \times 10^{-2} \pm 3.78 \times 10^{-2}$	$2.45 \times 10^{-6} \pm 9.64 \times 10^{-7}$	$2.68 \times 10^{-6} \pm 1.05 \times 10^{-6}$
呼吸吸入	$4.32 \times 10^{-4} \pm 1.48 \times 10^{-4}$	$4.48 \times 10^{-4} \pm 1.54 \times 10^{-4}$	$1.58 \times 10^{-7} \pm 5.27 \times 10^{-8}$	$4.09 \times 10^{-8} \pm 1.37 \times 10^{-8}$
皮肤接触	$7.94 \times 10^{-3} \pm 2.29 \times 10^{-3}$	$2.43 \times 10^{-2} \pm 7.02 \times 10^{-3}$	$3.53 \times 10^{-6} \pm 1.25 \times 10^{-6}$	$2.70 \times 10^{-6} \pm 9.56 \times 10^{-7}$
经口摄入-米	$2.68 \times 10^0 \pm 4.36 \times 10^{-1}$	$3.95 \times 10^0 \pm 6.43 \times 10^{-1}$	$1.42 \times 10^{-3} \pm 6.30 \times 10^{-4}$	$5.23 \times 10^{-4} \pm 2.33 \times 10^{-4}$
总计	$2.71 \times 10^0 \pm 4.36 \times 10^{-1}$	$4.06 \times 10^0 \pm 6.43 \times 10^{-1}$	$1.42 \times 10^{-3} \pm 6.31 \times 10^{-4}$	$5.28 \times 10^{-4} \pm 2.33 \times 10^{-4}$

1) “—”表示缺计算参数而无该结果

癌风险指数(HQ)大于1,说明存在非致癌风险,而其他元素对成人和儿童的非致癌风险指数(HQ)均小于1,说明无非致癌风险。但是,考虑多元素时,重金属对成人和儿童的综合非致癌风险指数(HI)平均值分别为2.71和4.06。对于成人和儿童,在所研究样品中的HI均大于1,说明该地区可能存在由重金属引起的综合非致癌风险。

只考虑单一重金属时,Cd和Ni对成人和儿童以及As对成人的致癌风险指数(CR)大于 1×10^{-4} ,说明存在人体不可耐受的致癌风险;Cr对成人和儿童以及As对儿童的致癌风险指数(CR)介于 1×10^{-6} 和 1×10^{-4} 之间,说明存在人体可耐受的致癌风险;而Pb对成人和儿童的致癌风险指数(CR)小于 1×10^{-6} ,说明无致癌风险。考虑多元素时,重

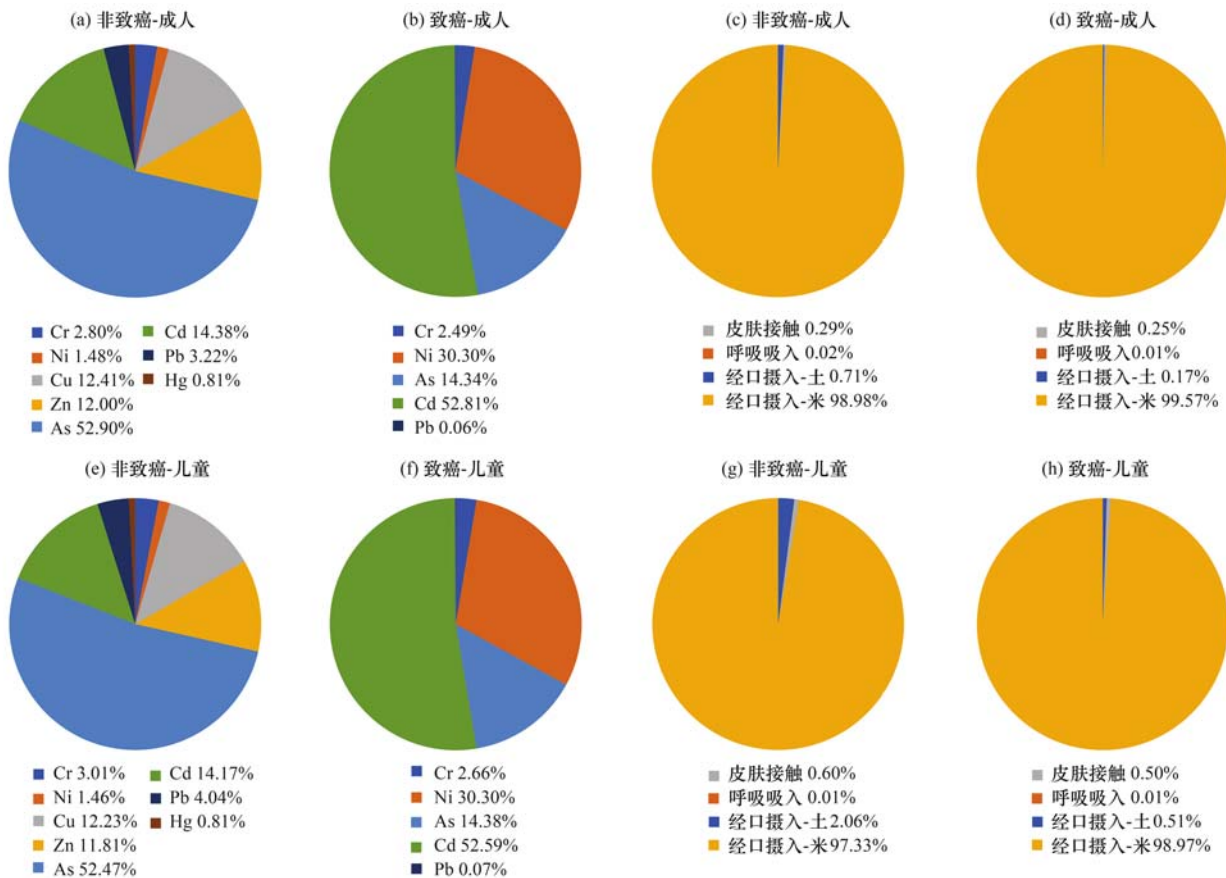


图3 不同重金属及暴露途径对健康风险指数的贡献

Fig. 3 Contributions of various exposure pathways and different metals to the health risk index

金属对成人和儿童的综合致癌风险指数(TCR)分别为 1.42×10^{-3} 和 5.28×10^{-4} . 对于成人和儿童,在所研究样品中的 TCR 均大于 1×10^{-4} ,说明该地区可能存在由重金属引起的致癌风险.

对于成人和儿童,不同重金属元素对人体的健康风险以及重金属通过不同暴露途径对人体的健康风险的贡献相似. 以成人例如,As 的非致癌风险贡献最大,达到 52.90%,其次为 Cd、Cu 和 Zn,非致癌风险贡献分别为 14.38%、12.41% 和 12.00%,而 Hg 的非致癌风险贡献最小(仅为 0.81%). Cd 的致癌风险贡献最大,达到 52.81%,其次为 Ni,致癌风险贡献为 30.30%,而 Pb 的致癌风险贡献最小,仅有 0.06%. 对于成人和儿童,经口摄入稻米途径的非致癌风险贡献分别达到 98.98% 和 97.33%,致癌风险贡献分别达到 99.57% 和 98.97%.

3 讨论

3.1 土壤和稻米中重金属相关性特征

重金属从土壤到植物可食用部分的迁移和累积是土壤中重金属进入食物链的主要途径^[41]. 稻米中重金属的富集系数分别为 Cr (0.006 ± 0.003)、Ni (0.025 ± 0.015)、Cu (0.136 ± 0.066)、Zn (0.196

± 0.063)、As (0.016 ± 0.006)、Cd (0.370 ± 0.311)、Pb (0.001 ± 0.001) 和 Hg (0.019 ± 0.006). 可见,研究区稻米从土壤中富集重金属的能力大小顺序为: Cd > Zn > Cu > Ni > Hg > As > Cr > Pb. 这一结果与前人研究较为一致^[8],水稻易从土壤中富集 Cd,这使得稻米中镉污染受到极大关注. 稻米对 Zn 和 Cu 的富集系数也相对较高,可能是因为 Zn 和 Cu 为水稻生长发育的必需营养元素. 稻米对 Cr 和 Pb 的富集系数较低,可能是因为水稻植株在吸收土壤中 Cr 和 Pb 之后,主要积累在根部,而较少迁移到籽粒中^[8,10].

对土壤和稻米中重金属总量及生物可给性含量进行 Pearson 相关性分析. 土壤中 Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Pb 和 Hg 含量与稻米中对应元素含量的 Pearson 相关系数分别为 0.213、-0.053、0.185、0.287、0.179、0.310、-0.184 和 -0.001,只有 Cd 元素在土壤和稻米中含量呈现显著相关 ($P < 0.05$),而其他元素则相关性不显著. 这说明稻米中重金属含量并不是只取决于土壤中重金属含量. 稻米中重金属还可能受到土壤理化性质和土壤中重金属赋存形态等各方面的影响^[42]. 土壤中 Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Pb 和 Hg 的生物可给性含量与总

量的 Pearson 相关系数分别为 0.396、0.542、0.880、0.861、0.342、0.949、0.682 和 0.471, 分别呈显著性相关($P < 0.05$); 稻米中 Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Pb 和 Hg 的生物可给性含量与总量的 Pearson 相关系数分别为 0.812、0.961、0.903、0.795、0.830、0.942、0.924 和 0.590, 分别呈显著性相关($P < 0.05$). 这一结果说明, 土壤和稻米中重金属总量是影响其生物可给性含量的重要因素, 部分重金属的相关系数小于 0.8, 说明可能还受到其他因素的影响, 如土壤理化性质和 pH 值等^[39].

3.2 基于重金属生物可给性的健康风险评价

根据重金属生物可给性分析结果可知, 土壤和稻米中重金属经各种途径进入人体后并不能完全被吸收而产生健康风险, 而是不同介质(土壤和稻米)中各重金属有着不同的生物可给性. 因此, 基于重金属生物可给性含量进行健康风险评价可以更准确评估闽西南农田土壤-水稻系统中重金属的健康风险.

不同重金属对人体的非致癌风险贡献顺序为 $As > Cd > Cu > Zn > Pb > Cr > Ni > Hg$, 而不同重金属对人体的致癌风险贡献顺序为 $Cd > Ni > As > Cr > Pb$. 重金属对人体的非致癌风险主要由 As 贡献, 致癌风险主要由 Cd 贡献. 从前述结果与分析可知, Cd 在部分土壤和稻米中存在超标现象, 而 As 在土壤和稻米中均低于标准限值, 可见, 即使未超标的元素也可能具有健康风险. 同时, 对单个重金属的非致癌风险, 除了 As 外, 其他重金属的非致癌风险指数(HQ)均小于 1, 说明无非致癌风险, 但综合的非致癌风险指数(HQ)却大于 1, 因为重金属在土壤-水稻系统中是复合存在的, 因此, 多种重金属综合作用下的非致癌风险不容忽视. 在进行重金属健康风险评价时, 应全面考虑各重金属的风险贡献.

通过对比不同暴露途径对人体的健康风险可知, 经口摄入稻米途径的非致癌风险指数和致癌风险指数均比土壤直接暴露途径的高出几个数量级. 因此, 通过食物经口摄入可能是该地区土壤-水稻系统中重金属产生健康风险的主要途径. 一方面, 根据土壤和稻米中重金属含量及人体暴露参数^[30,34,35], 人体通过经口摄入稻米途径摄入的重金属含量高于土壤暴露途径; 另一方面, 根据前述讨论可知, 稻米中各重金属的生物可给性均大于土壤中对重金属的生物可给性, 人体更易从稻米中吸收重金属. 这一发现与王世玉等^[17]和 Doabi 等^[43]报道的“土壤-农作物”系统中重金属的健康风险结果类似. 因此, 在重金属健康风险管理中应重点关注饮食暴露途径的风险.

对比分析重金属对不同人群的健康风险. 重金

属对儿童的非致癌风险高于成人, 这与人研究的结果相似, 可能因儿童特殊的生理和行为特征(如吮吸手指、呼吸频率较高等)使其更易受到重金属的健康危害^[17,18]. 与非致癌不同的是, 重金属对成人的致癌风险高于儿童(约为 2.6 倍). 这可能与成人的暴露时间较长、稻米摄入量较大等因素有关.

4 结论

(1) 闽西南农田土壤中 Cd、Zn、Pb 和 Cu 含量在部分区域(分别占比 32.4%、15.5%、14.1% 和 12.7%) 高于农用地土壤污染风险筛选值(GB 15618-2018), 可能存在污染风险. 稻米中 Cd、Ni 和 Cu 分别有 8.9%、4.4% 和 2.2% 超出标准限值, 其余元素含量均在标准限值之内, 个别重金属已存在累积. 研究区稻米从土壤中富集重金属的能力为 $Cd > Zn > Cu > Ni > As > Cr > Pb$.

(2) 农田土壤和稻米中重金属的生物可给性顺序分别为: $Cd (65.01\%) > Pb (37.44\%) > Cu (28.31\%) > Zn (17.46\%) > Hg (14.71\%) > As (11.67\%) > Ni (7.12\%) > Cr (0.53\%)$ 和 $Pb (77.85\%) > Cd (72.86\%) > Zn (69.51\%) > Cu (59.96\%) > Ni (55.68\%) > As (53.88\%) > Hg (43.62\%) > Cr (11.29\%)$, 不同重金属的生物可给性差异较大. 稻米中各重金属的生物可给性均大于土壤中对重金属的生物可给性, 稻米中重金属更容易被人体吸收.

(3) 该地区可能存在由重金属引起的非致癌风险, 且儿童的风险高于成人. 非致癌风险主要由 As 引起, 其贡献分别为 52.90% (成人) 和 52.47% (儿童). 同时, 该地区可能存在由重金属引起的致癌风险, 且成人的风险高于儿童. 致癌风险主要由 Cd 引起, 其贡献分别为 52.81% (成人) 和 52.59% (儿童). 通过食物经口摄入可能是该地区土壤-水稻系统中重金属产生健康风险的主要途径.

参考文献:

- [1] Pourret O, Bollinger J C. “Heavy metal”-What to do now; to use or not to use? [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **610-611**: 419-420.
- [2] Tóth G, Hermann T, Da Silva M R, *et al.* Heavy metals in agricultural soils of the European Union with implications for food safety [J]. *Environment International*, 2016, **88**: 299-309.
- [3] 帅鸿, 欧阳迪庆, 陈玉成. 基于文献计量的我国农地重金属研究热点分析[J]. *农业环境科学学报*, 2018, **37**(4): 688-695.
Shuai H, Ouyang D Q, Chen Y C. Hotspot issues of heavy metals in China's farmland based on bibliometrics [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2018, **37**(4): 688-695.
- [4] Zhao F J, Ma Y B, Zhu Y G, *et al.* Soil contamination in China: current status and mitigation strategies [J].

- Environmental Science & Technology, 2015, **49**(2): 750-759.
- [5] Lu Y L, Song S, Wang R S, *et al.* Impacts of soil and water pollution on food safety and health risks in China [J]. Environment International, 2015, **77**: 5-15.
- [6] 姬超, 侯大伟, 李发志, 等. 耕地土壤重金属健康风险空间分布特征[J]. 环境科学, 2020, **41**(3): 1440-1448.
- Ji C, Hou D W, Li F Z, *et al.* Assessment and spatial characteristics analysis of human health risk of heavy metals in cultivated soil [J]. Environmental Science, 2020, **41**(3): 1440-1448.
- [7] Bandara J M R S, Wijewardena H V P, Bandara Y M A Y, *et al.* Pollution of River Mahaweli and farmlands under irrigation by cadmium from agricultural inputs leading to a chronic renal failure epidemic among farmers in NCP, Sri Lanka[J]. Environmental Geochemistry and Health, 2011, **33**(5): 439-453.
- [8] 蒋逸骏, 胡雪峰, 舒颖, 等. 湖北某镇农田土壤-水稻系统重金属累积和稻米食用安全研究[J]. 土壤学报, 2017, **54**(2): 410-420.
- Jiang Y J, Hu X F, Shu Y, *et al.* Accumulation of heavy metals in the soil-rice system and assessment of dietary safety of the rice produced in the paddy fields-a case study of a town in the northern part of Hunan Province, China[J]. Acta Pedologica Sinica, 2017, **54**(2): 410-420.
- [9] 郑宏艳, 姚秀荣, 侯彦林, 等. 中国土壤模式-作物系统重金属生物富集模型建立[J]. 农业环境科学学报, 2015, **34**(2): 257-265.
- Zheng H Y, Yao X R, Hou Y L, *et al.* Establishment of heavy metal bioaccumulation model of soil pattern-crop system in China [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2015, **34**(2): 257-265.
- [10] Mao C P, Song Y X, Chen L X, *et al.* Human health risks of heavy metals in paddy rice based on transfer characteristics of heavy metals from soil to rice[J]. CATENA, 2019, **175**: 339-348.
- [11] US EPA. Risk assessment guidance for superfund volume I: Human health evaluation manual supplemental guidance [R]. Washington, DC: US EPA, 1989.
- [12] US EPA. Risk assessment guidance for superfund: volume III-Part A, process for conducting probabilistic risk assessment[R]. Washington, DC: US EPA, 2001.
- [13] 李春芳, 曹见飞, 吕建树, 等. 不同土地利用类型土壤重金属生态风险与人体健康风险[J]. 环境科学, 2018, **39**(12): 5628-5638.
- Li C F, Cao J F, Lü J S, *et al.* Ecological risk assessment of soil heavy metals for different types of land use and evaluation of human health [J]. Environmental Science, 2018, **39**(12): 5628-5638.
- [14] Wang F F, Guan Q Y, Tian J, *et al.* Contamination characteristics, source apportionment, and health risk assessment of heavy metals in agricultural soil in the Hexi Corridor [J]. CATENA, 2020, **191**: 104573.
- [15] 田美玲, 钟雪梅, 张云霞, 等. 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[J]. 环境科学, 2018, **39**(6): 2919-2926.
- Tian M L, Zhong X M, Zhang Y X, *et al.* Concentrations and health risk assessments of heavy metal contents in soil and rice of mine contaminated areas[J]. Environmental Science, 2018, **39**(6): 2919-2926.
- [16] Chen X X, Liu Y M, Zhao Q Y, *et al.* Health risk assessment associated with heavy metal accumulation in wheat after long-term phosphorus fertilizer application [J]. Environmental Pollution, 2020, **262**: 114348.
- [17] 王世玉, 吴文勇, 刘菲, 等. 典型污灌区土壤与作物中重金属健康风险评估[J]. 中国环境科学, 2018, **38**(4): 1550-1560.
- Wang S Y, Wu W Y, Liu F, *et al.* Assessment of human health risks of heavy metals in the typical sewage irrigation areas[J]. China Environmental Science, 2018, **38**(4): 1550-1560.
- [18] Zhang R, Chen T, Zhang Y, *et al.* Health risk assessment of heavy metals in agricultural soils and identification of main influencing factors in a typical industrial park in northwest China [J]. Chemosphere, 2020, **252**: 126591.
- [19] 徐笠, 陆安祥, 王纪华, 等. 食物中重金属的生物可给性和生物有效性的研究方法和应用进展[J]. 生态毒理学报, 2017, **12**(1): 89-97.
- Xu L, Lu A X, Wang J H, *et al.* Research methods and applications of bioaccessibility and bioavailability of heavy metals in food[J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2017, **12**(1): 89-97.
- [20] 李仪, 章明奎. 三种模拟消化液对土壤重金属的提取性比较[J]. 中国环境科学, 2012, **32**(10): 1807-1813.
- Li Y, Zhang M K. Comparison of soil heavy metals extraction using three in-vitro digestion tests [J]. China Environmental Science, 2012, **32**(10): 1807-1813.
- [21] Rodrigues S M, Cruz N, Carvalho L, *et al.* Evaluation of a single extraction test to estimate the human oral bioaccessibility of potentially toxic elements in soils: towards more robust risk assessment[J]. Science of the Total Environment, 2018, **635**: 188-202.
- [22] 尚二萍, 张红旗, 杨小唤, 等. 我国南方四省集中连片水稻田土壤重金属污染评估研究[J]. 环境科学学报, 2017, **37**(4): 1469-1478.
- Shang E P, Zhang H Q, Yang X H, *et al.* Assessment of soil heavy metal of paddy field in four provinces in southern China [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2017, **37**(4): 1469-1478.
- [23] 林承奇, 胡恭任, 于瑞莲, 等. 九龙江近岸表层沉积物重金属污染评价及来源解析[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(4): 1218-1225.
- Lin C Q, Hu G R, Yu R L, *et al.* Pollution assessment and source analysis of heavy metals in offshore surface sediments from Jiulong River[J]. China Environmental Science, 2016, **36**(4): 1218-1225.
- [24] 李精精. 福建九龙江流域产业结构的水环境污染效应[J]. 亚热带水土保持, 2017, **29**(1): 7-11.
- Li J J. Pollution effects to water-environment of the industry structure in the Jiulong River Watershed of Fujian Province[J]. Subtropical Soil and Water Conservation, 2017, **29**(1): 7-11.
- [25] Lin C Q, Yu R L, Hu G R, *et al.* Contamination and isotopic composition of Pb and Sr in offshore surface sediments from Jiulong River, Southeast China [J]. Environmental Pollution, 2016, **218**: 644-650.
- [26] 张莉, 祁士华, 瞿程凯, 等. 福建九龙江流域重金属分布来源及健康风险评价[J]. 中国环境科学, 2014, **34**(8): 2133-2139.
- Zhang L, Qi S H, Qu C K, *et al.* Distribution, source and health risk assessment of heavy metals in the water of Jiulong River, Fujian[J]. China Environmental Science, 2014, **34**(8): 2133-2139.
- [27] Liu B L, Ai S W, Zhang W Y, *et al.* Assessment of the bioavailability, bioaccessibility and transfer of heavy metals in the soil-grain-human systems near a mining and smelting area in NW China[J]. Science of the Total Environment, 2017, **609**: 822-

- 829.
- [28] 陈廷廷, 侯艳伟, 蔡超, 等. 应用四种体外消化方法比较研究场地土壤中重金属的生物可给性及其人体健康风险[J]. 环境化学, 2018, **37**(11): 2342-2350.
- Chen T T, Hou Y W, Cai C, *et al.* Bioaccessibility and human health risk assesment of heavy metals in soils by using four *in vitro* digestion methods[J]. Environmental Chemistry, 2018, **37**(11): 2342-2350.
- [29] 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.
- [30] US EPA. Exposure factors handbook[R]. Washington, DC: US EPA, 2011.
- [31] US EPA. Risk assessment guidance for superfund Volume I: human health evaluation manual [R]. Washington, DC: US EPA, 2004.
- [32] US EPA. Supplemental guidance for developing soil screening levels for superfund sites [R]. Washington, DC: US EPA, 2002.
- [33] Chabukdhara M, Nema A K. Heavy metals assessment in urban soil around industrial clusters in Ghaziabad, India: probabilistic health risk approach [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2013, **87**: 57-64.
- [34] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(成人卷)[M]. 北京: 中国环境出版社, 2013. 746-796.
- Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population (Adults) [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2013. 746-796.
- [35] 段小丽. 中国人群暴露参数手册(儿童卷)概要[M]. 北京: 中国环境出版社, 2016. 55-82.
- Duan X L. Highlights of the Chinese exposure factors handbook [M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2016. 55-82.
- [36] Chen H Y, Teng Y G, Lu S J, *et al.* Source apportionment and health risk assessment of trace metals in surface soils of Beijing metropolitan, China [J]. Chemosphere, 2016, **144**: 1002-1011.
- [37] Fryer M, Collins C D, Ferrier H, *et al.* Human exposure modelling for chemical risk assessment: a review of current approaches and research and policy implications [J]. Environmental Science & Policy, 2006, **9**(3): 261-274.
- [38] 陈振金, 陈春秀, 刘用清, 等. 福建省土壤环境背景值研究[J]. 环境科学, 1992, **13**(4): 70-75.
- Chen Z J, Chen C X, Liu Y Q, *et al.* Study on soil environmental background values in Fujian Province [J]. Environmental Science, 1992, **13**(4): 70-75.
- [39] 李继宁, 侯红, 魏源, 等. 株洲市农田土壤重金属生物可给性及其人体健康风险评估[J]. 环境科学研究, 2013, **26**(10): 1139-1146.
- Li J N, Hou H, Wei Y, *et al.* Bioaccessibility and health risk assessment of heavy metals in agricultural soil from Zhuzhou, China[J]. Research of Environmental Sciences, 2013, **26**(10): 1139-1146.
- [40] 林承奇, 黄华斌, 胡恭任, 等. 九龙江流域水稻土重金属赋存形态及污染评价[J]. 环境科学, 2019, **40**(1): 453-460.
- Lin C Q, Huang H B, Hu G R, *et al.* Assessment of the speciation and pollution of heavy metals in paddy soils from the Jiulong River Basin[J]. Environmental Science, 2019, **40**(1): 453-460.
- [41] Sharma S, Nagpal A K, Kaur I. Heavy metal contamination in soil, food crops and associated health risks for residents of Ropar wetland, Punjab, India and its environs[J]. Food Chemistry, 2018, **255**: 15-22.
- [42] 韩娟英, 张宁, 舒小丽, 等. 水稻对重金属的吸收特性及其影响因素[J]. 中国稻米, 2018, **24**(3): 44-48, 54.
- Han J Y, Zhang N, Shu X L, *et al.* Absorption of heavy metals in rice and the influence factors[J]. China Rice, 2018, **24**(3): 44-48, 54.
- [43] Doabi S A, Karami M, Afyuni M, *et al.* Pollution and health risk assessment of heavy metals in agricultural soil, atmospheric dust and major food crops in Kermanshah province, Iran[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2018, **163**: 153-164.

CONTENTS

Concurrent Collection of Ammonia Gas and Aerosol Ammonium in Urban Beijing During National Celebration Days Utilizing an Acid-Coated Honeycomb Denuder in Combination with a Filter System	GU Meng-na, PAN Yue-peng, SONG Lin-lin, <i>et al.</i> (1)
Heavy Pollution Episode in Tianjin Based on UAV Meteorological Sounding and Numerical Model	YANG Xu, CAI Zi-ying, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (9)
Characteristics and Sources of PM _{2.5} Pollution in Typical Cities of the Central Plains Urban Agglomeration in Autumn and Winter ...	MIAO Qing-qing, JIANG Nan, ZHANG Rui-qin, <i>et al.</i> (19)
Characteristics and Sources of Water-soluble Ion Pollution in PM _{2.5} in Winter in Shenyang	WANG Guo-zhen, REN Wan-hui, YU Xing-na, <i>et al.</i> (30)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} Collected in Baoding	LEI Wen-kai, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i> (38)
Source Apportionment of Ambient Carbonyl Compounds Based on a PMF and Source Tracer Ratio Method: A Case Based on Observations in Nanjing	HU Kun, WANG Ming, WANG Hong-li, <i>et al.</i> (45)
Characterization and Source Apportionment of Atmospheric VOCs in Tianjin in 2019	GAO Jing-yun, XIAO Zhi-mei, XU Hong, <i>et al.</i> (55)
Characteristics and Source Apportionment of Ambient VOCs in Spring in Liuzhou	LIU Qi, LU Xing-lin, ZENG Peng, <i>et al.</i> (65)
Characteristics of Ozone and Source Apportionment of the Precursor VOCs in Tianjin Suburbs in Summer	LUO Rui-xue, LIU Bao-shuang, LIANG Dan-ni, <i>et al.</i> (75)
Transport Influence and Potential Sources of Ozone Pollution for Nanjing During Spring and Summer in 2017	XIE Fang-jian, LU Xiao-bo, YANG Feng, <i>et al.</i> (88)
Ozone Pollution Trend in the Pearl River Delta Region During 2006-2019	ZHAO Wei, GAO Bo, LU Qing, <i>et al.</i> (97)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmospheric Deposition in Areas Adjacent to a Large Petrochemical Enterprise	LI Da-yan, QI Xiao-bao, WU Jian, <i>et al.</i> (106)
Quantitative Comparison of Methods to Assess the Airborne Particulate Matter Retention Capacity of Leaves	YUE Chen, LI Guang-de, XI Ben-ye, <i>et al.</i> (114)
Emission Estimation and Fate Simulation of Dichlorvos in the Dongjiang River Watershed	ZHANG Bing, ZHANG Qian-qian, YING Guang-guo (127)
Distribution and Ecological Risk Assessment of Antibiotics in the Songhua River Basin of the Harbin Section and Ashe River	YANG Shang-le, WANG Xu-ming, WANG Wei-hua, <i>et al.</i> (136)
Characteristics and Ecological Risk Assessment of POPs Pollution in Sediments of Xiaoxingkai Lake in the Northeast China	LI Hui, LI Jie, SONG Peng, <i>et al.</i> (147)
Distribution and Ecological Risk Assessment of PPCPs in Drinking Water Sources of Henan Province	ZHOU Ying, WU Dong-hai, LU Guang-hua, <i>et al.</i> (159)
Occurrence Characteristics and Health Risk Assessment of Endocrine Disrupting Chemicals in Groundwater in Wuxi-Changzhou	WANG Shu-ting, RAO Zhu, GUO Feng, <i>et al.</i> (166)
Seasonal Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Surface Water of Qingjiang River	LIU Zhao, ZHOU Hong, CAO Wen-jia, <i>et al.</i> (175)
Metal Pollutions and Human Health Risks in Groundwater from Wet, Normal, and Dry Periods in the Huixian Karst Wetland, China	LI Jun, ZHAO Yi, ZOU Sheng-zhang, <i>et al.</i> (184)
Seasonal Variation of DOM Spectral Characteristics of Rivers with Different Urbanization Levels in the Three Gorges Reservoir Area	CHEN Zhao-yu, LI Si-yue (195)
Distribution of Micro-plastics in the Soil Covered by Different Vegetation in Yellow River Delta Wetland	YUE Jun-jie, ZHAO Shuang, CHENG Hao-dong, <i>et al.</i> (204)
Metagenomic Analysis Provides Insights into Bacterial Communities, Antibiotic Resistomes, and Public Health Risks in the Dongping Lake Reservoir	ZHANG Hong-na, CUI Na, SHEN Hong-miao (211)
Mechanism of Algal Community Dynamics Driven by the Seasonal Water Bacterial Community in a Stratified Drinking Water Reservoir	YAN Miao-miao, ZHANG Hai-han, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (221)
Community Structure, Function, and Influencing Factors of Planktonic Fungi in the Danjiangkou Reservoir	ZHENG Bao-hai, WANG Xiao-yu, LI Ying-jun, <i>et al.</i> (234)
Changes in Algal Particles and Their Water Quality Effects in the Outflow River of Taihu Lake	GUO Yu-long, XU Hai, CHEN Xu-qing, <i>et al.</i> (242)
Characteristics of Soil Nitrogen and Phosphorus Losses Under Different Land-use Schemes in the Shipanqiu Watershed	DENG Hua, GAO Ming, LONG Yi, <i>et al.</i> (251)
Influence of Antecedent Dry Days on Nitrogen Removal in Bioretention Systems	CHEN Yao, LI Xin-rui, ZHENG Shuang, <i>et al.</i> (263)
Effect of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochar on the Adsorption Characteristics and Adsorption Mechanisms of Ammonia Nitrogen in Rainfall Runoff	CHEN You-yuan, LI Pei-qiang, LI Xian-chi, <i>et al.</i> (274)
Effect of Filter Medium on the Enhancement of Complete Autotrophic Nitrogen Removal over Nitrite Process in a Tidal Flow Constructed Wetland	LIU Bing, ZHENG Yu-ming, QIN Hui-an, <i>et al.</i> (283)
Adsorption Effect and Mechanism of Aqueous Arsenic on FeMnNi-LDHs	LIAO Yu-mei, YU Jie, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i> (293)
Combined Use of Zirconium-Modified Bentonite Capping and Calcium Nitrate Addition to Control the Release of Phosphorus from Sediments	ZHANG Hong-hua, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (305)
Distribution Characteristics of Antibiotics and Antibiotic Resistance Genes in Wastewater Treatment Plants	XIE Ya-wei, YU Chi-sheng, LI Fei-fei, <i>et al.</i> (315)
Occurrence of Antibiotic Resistance Genes and Bacterial Community Structure of Different Sludge Samples During Microwave Pretreatment-Anaerobic Digestion	LI Hui-li, WU Cai-yun, TANG An-ping, <i>et al.</i> (323)
Selenium Threshold for the Delimitation of Natural Selenium-Enriched Land	WANG Hui-yan, ZENG Dao-ming, GUO Zhi-juan, <i>et al.</i> (333)
Improved Regression Kriging Prediction of the Spatial Distribution of the Soil Cadmium by Integrating Natural and Human Factors ...	GAO Zhong-yuan, XIAO Rong-bo, WANG Peng, <i>et al.</i> (343)
Simulation Cadmium (Cd) Accumulation in Typical Paddy Soils in South China	DAI Ya-ting, FU Kai-dao, YANG Yang, <i>et al.</i> (353)
Bioaccessibility and Health Risks of the Heavy Metals in Soil-Rice System of Southwest Fujian Province	LIN Cheng-qi, CAI Yu-hao, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (359)
Effects of Nano Material on Cadmium Accumulation Capacity and Grain Yield of Indica Hybrid Rice Under Wetting-drying Alternation Irrigation	YANG Ru, CHEN Xin-rui, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (368)
Regulation Control of a Tribasic Amendment on the Chemical Fractions of Cd and As in Paddy Soil and Their Accumulation in Rice	JIANG Yi, LIU Ya, GU Jiao-feng, <i>et al.</i> (378)
Combined Effect of Weathered Coal Based Amendments and Soil Water Management on Methylmercury Accumulation in Paddy Soil and Rice Grains	ZHENG Shun-an, WU Ze-ying, DU Zhao-ling, <i>et al.</i> (386)
Effects of Fertilization Strategies on the Cadmium Resistance of Paddy Soil Microorganisms	ZHENG Kai-kai, MA Zhi-yuan, SUN Bo, <i>et al.</i> (394)
Soil Enzyme Activity in <i>Picea schrenkiana</i> and Its Relationship with Environmental Factors in the Tianshan Mountains, Xinjiang	ZHANG Han, GONG Lu, LIU Xu, <i>et al.</i> (403)
Effects of Farmland Abandonment on Soil Enzymatic Activity and Enzymatic Stoichiometry in the Loess Hilly Region, China	ZHONG Ze-kun, YANG Gai-he, REN Cheng-jie, <i>et al.</i> (411)
Effect of Biochar on Soil Enzyme Activity & the Bacterial Community and Its Mechanism	FENG Hui-lin, XU Chen-sheng, HE Huan-hui, <i>et al.</i> (422)
Effects of Vegetation Restoration on the Structure and Function of the Rhizosphere Soil Bacterial Community of <i>Solanum rostratum</i>	ZHANG Rui-hai, SONG Zhen, FU We-dong, <i>et al.</i> (433)
Response of Microbial Biomass Carbon and Nitrogen and Rice Quality in a Yellow Soil Paddy Field to Biochar Combined with Nitrogen Fertilizer	SHI Deng-lin, WANG Xiao-li, LIU An-kai, <i>et al.</i> (443)
Effects of Adding Straw and Biochar with Equal Carbon Content on Soil Respiration and Microbial Biomass Carbon and Nitrogen	HE Tian-tian, WANG Jing, FU Yun-peng, <i>et al.</i> (450)
How Different Ratios of Straw Incorporation to Nitrogen Fertilization Influence Endogenous and Exogenous Carbon Release from Agricultural Soils	SUN Zhao-an, ZHANG Xuan, HU Zheng-jiang, <i>et al.</i> (459)
Effect of Biochar and Chemical Fertilizer Mixture on Ammonia Volatilization and Phosphorus Fixation	YANG Wen-na, DENG Zhen-xin, LI Jiao, <i>et al.</i> (467)
Effects of Film Materials on Ammonia Volatilization Emissions from a Paddy System After Reducing Nitrogen Fertilizer Application	YU Ying-liang, WANG Meng-fan, YANG Bei, <i>et al.</i> (477)
Effects of Microplastics on Embryo Hatching and Intestinal Accumulation in Larval Zebrafish <i>Danio rerio</i>	ZHAO Jia, RAO Ben-qiang, GUO Xiu-mei, <i>et al.</i> (485)
Urban Micro-Scale Thermal Environment Simulation Supported by UAV Thermal Infrared Data	YANG Shao-qi, FENG Li, TIAN Hui-hui, <i>et al.</i> (492)
Estimation of the Urban Heat Island Intensity Change and Its Relationships with Driving Factors Across China Based on the Human Settlement Scale	SUN Yan-wei, WANG Run, GUO Qing-hai, <i>et al.</i> (501)