

江苏某市水稻籽粒重金属富集特征及健康风险评价^{*}

郝社锋¹ 任静华^{1,2#} 范 健¹ 许伟伟¹ 廖启林¹ 华 明¹ 卢宜迅³

(1. 自然资源部国土(耕地)生态监测与修复工程技术创新中心, 江苏省地质调查研究院, 江苏 南京 210018;

2. 中国科学院土壤环境与污染修复重点实验室, 中国科学院南京土壤研究所, 江苏 南京 210008;

3. 宜兴市自然资源与规划局, 江苏 宜兴 214203)

摘要 为评估食用重金属污染土壤所产水稻对人体健康产生的风险, 选取江苏省某市 16 个乡镇 393 组水稻籽粒-根际土为研究对象, 考察 As、Cd、Cr、Hg、Pb 的质量浓度和富集特征; 利用单因子污染指数法分析水稻籽粒的重金属污染特征, 并用健康风险指数(HQ)评估重金属对人体健康的潜在风险。结果表明: Cd 的富集系数远高于其他重金属, 说明 Cd 具有更强的迁移性, 易从土壤转移至水稻籽粒中。部分水稻籽粒中 Cd 质量浓度超过《食品安全国家标准 食品中污染物限量》(GB 2762—2017)中的标准限值。5 项重金属中, 仅 Cd 对暴露人群产生的 HQ 大于 1, 是影响人体健康的主要因子。其中, 食用无污染和轻微 Cd 污染土壤所产水稻的 HQ 小于 1, 没有健康风险; >2~18 岁男性人群食用轻度 Cd 污染土壤所产水稻的 HQ 大于 1, 会产生一定的风险; 食用中度及重度 Cd 污染土壤所产水稻对所有人群的 HQ 均超过 1, HQ 最高可达 6.32, 对当地人群具有较大健康风险, 且水稻籽粒重金属摄入对儿童造成的健康风险高于成人。

关键词 重金属 水稻籽粒 风险指数 健康风险评价

DOI:10.15985/j.cnki.1001-3865.2021.02.015

Heavy metals accumulation characteristics and health risk assessment of rice grain produced in Jiangsu area HAO Shefeng¹, REN Jinghua^{1,2}, FAN Jian¹, XU Weiwei¹, LIAO Qilin¹, HUA Ming¹, LU Yixun³. (1. Technology Innovation Center for Ecological Monitoring & Restoration Project on Land (Arable), Ministry of Natural Resources, Geological Survey of Jiangsu Province, Nanjing Jiangsu 210018; 2. Key Laboratory of Soil Environment and Pollution Remediation, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing Jiangsu 210008; 3. Natural Resources and Planning Bureau of Yixing, Yixing Jiangsu 214203)

Abstract: 393 rice grain samples and corresponding rhizosphere soil samples were collected from 16 towns of Jiangsu area to assess the health risk of eating rice grain produced in heavy metal polluted soil. The contents and enrichment characteristic of As, Cd, Cr, Hg and Pb in rice grain and soil samples were analyzed. The single factor pollution index was used to analyze the pollution character of rice grain and hazard quotient (HQ) was calculated to assess potential human health risk. Results showed that bioaccumulation factor of Cd was higher than those of other elements, suggesting the strong mobility in soil and transfer from soil to rice. Concentrations of Cd in some rice samples exceeded "National food safety standard: limits of pollutants in food" (GB 2762-2017). Among the studied heavy metals, the HQ of Cd was predominant risk factor for human and higher than 1.0. The HQ of Cd for rice from uncontaminated-slightly contaminated soil was below 1 for all resident. The HQ of Cd for rice produced from mild contaminated soil was above 1 for male of >2-18 years old and causing ceratin health risk. The HQ of Cd for rice grain produced from moderately-heavily contaminated soil was above 1 for all resident and causing higher health risk. The highest HQ could reach to 6.32 indicating heavy health risk to the local residents via consumption of rice grains. The health risk for children was higher than adults.

Keywords: heavy metal; rice grain; hazard quotient; health risk assessment

长江三角洲地区是我国水稻播种面积和产量较大的地区之一, 同时也是苏南经济快速发展区域。位于该地区的城市从小城镇发展成为工业化城市的

过程中, 其城市化、工业化进程以及土地利用变化方式等都具有一定典型性。近些年, 由于工业、交通等人类活动以及肥料农药的过度使用引起农耕土壤重

第一作者: 郝社锋, 男, 1977 年生, 硕士, 高级工程师, 主要从事土壤重金属污染评价研究。* 通讯作者。

* 江苏省自然科学基金资助项目(No.BK20171075); 中国科学院土壤环境与污染修复重点实验室开放基金资助项目(No.SEPR2017-11); 国土资源部公益性行业科研专项经费项目(No.201511082-04)。

金属累积,造成不同程度的污染。LIAO 等^[1]发现,中国东部某沿海城市农耕土壤中的 Cd 由 2004 年的 0.15~0.40 mg/kg 增加到 2012 年的 0.53~5.92 mg/kg,污染日益严重。

水稻对土壤中的 Cd、Cr、Pb、As 和 Hg 等重金属具有吸收特性,水稻的重金属污染问题已备受关注^[2-4]。近几年的研究结果显示,生长在受 Cd 污染土壤的水稻中 Cd 含量较高^[5-6],江苏张家港、常熟乃至苏州等地水稻籽粒都存在不同程度的 Cd 超标情况^[7]。刘情等^[8]采集了苏南某典型区 3 个乡镇 38 个样点的农耕土壤及水稻籽粒样品,水稻籽粒中 Cd 和 Pb 的超标率分别达 61.8% 和 14.7%。膳食是人体摄入重金属的最主要途径,这给以食用大米为主的南方地区居民带来较大的健康隐患^[9-12]。以往针对 Cd 食用风险的评价研究主要以市售大米为主,无法追溯来源,缺乏对源头安全的管控^[13],亦有一些研究仅选取多个污染样点作为研究对象,只能代表小范围的污染情况,不具有普遍性,同时也不能清楚阐明污染水平与健康风险程度之间的关系^[14]。

本研究采集江苏省某市 16 个乡镇 393 组水稻籽粒-根际土样品,研究水稻籽粒及根际土中重金属分布特征。通过计算研究区人群对重金属的摄入量与健康风险指数,评价食用不同重金属污染土壤所产水稻的健康风险,为污染防治提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于江苏省苏南地区,属北亚热带季风气候,气候温暖(年均气温为 15.7℃),雨量充沛(年均降雨量 1 158 mm),水网密布,土壤类型丰富多样,主要有黄棕壤、水稻土、棕红壤等。研究区是我国重要的产粮基地,主要粮食作物为水稻和小麦。改革开放以来,研究区逐渐从小城镇发展为以轻工业为主的新兴城市,伴随经济的发展,一系列突出的环境污染问题随之而来,具有一定的研究意义。

1.2 样品采集

依据全区覆盖、局部加密的原则,在不同程度污染地块设置采样点,并于 2017 年 10 月水稻收割期间进行采样。每个采样点选取长势一致、籽粒饱满的植株,采用“五点采样法”采集约 1.0 kg 水稻籽粒装入尼龙网兜,同步利用抖根法采集根际土装于布袋中,共获得水稻籽粒-根际土样品 393 组。水稻籽粒经晾晒、风干后脱壳,碾磨成粉末后装入纸质样袋中送实验室分析。根际土经自然风干后过 20 目尼龙筛,剔除其中的动植物残体、石子等杂质,装入纸

袋中送实验室分析。

1.3 样品分析

采用电位法测定土壤 pH,测定时土壤水土比为 1.0 mL : 2.5 g^[15]。土壤样品采用密封式玛瑙球磨机破碎,过 200 目筛,经王水消解、HNO₃ 提取后,以硝酸镁和磷酸二氢铵为基体改进剂,用 SOLAAR-M6 型石墨炉原子吸收分光光度计(美国 Thermo)测定 Cd、Pb 的含量,用 PW2440 型 X 射线荧光光谱(XRD)法(荷兰 Philips)测定 Cr 的含量,采用 AFS-820 型原子荧光光度计测定 As、Hg 的含量。水稻籽粒用 HNO₃/H₂O₂ (体积比 1 : 1)消解,采用 Thermal-Elemental X7 型电感耦合等离子体质谱仪(美国 Thermo)测定消解液中 Cd、Pb、Cr 含量,As、Hg 同样采用 AFS-820 型原子荧光光度计测定。为了保证分析结果的可靠性,在样品消解过程中加入空白样和国家标准物质 GSS-18(土壤)、GSB-22(大米)进行质量控制,所有标准物质的相对偏差均为 -10%~10%,说明测定结果有效可靠。

1.4 重金属风险评价方法

1.4.1 水稻籽粒和土壤中重金属污染评价

为了进一步明确水稻籽粒和土壤中重金属污染状况,采用单因子污染指数法对重金属污染水平进行评价,计算公式见式(1)^[16]:

$$P = C/S \quad (1)$$

式中: P 为重金属的单因子污染指数; C 为重金属的实测质量浓度, mg/kg; S 为重金属的评价标准限值, mg/kg。

水稻籽粒中重金属评价标准参考《食品安全国家标准 食品中污染物限量》(GB 2762—2017),其中 Cd、As 和 Pb 限值均为 0.2 mg/kg, Hg、Cr 的限值分别为 0.02、1.0 mg/kg。土壤评价参考《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》(GB 15618—2018),土壤中各项重金属评价标准限值见表 1。重金属污染评价标准为: $P \leq 1$ 为无污染, $1 < P \leq 2$ 为轻微污染, $2 < P \leq 3$ 为轻度污染, $3 < P \leq 5$ 为中度污染, $P > 5$ 为重度污染。如某采样点位存在多项重金属污染,则取多个重金属单因子污染指数中的最大值($P_{\max}$)评估污染状况。

表 1 土壤中各重金属评价标准限值
Table 1 The standard limit of heavy metal in soil

重金属	pH≤5.5	6.5≥pH>5.5	7.5≥pH>6.5	pH>7.5
Cd	0.3	0.3	0.3	0.6
Hg	0.5	0.5	0.6	1.0
As	30	30	25	20
Pb	70	90	120	170
Cr	150	150	200	250

1.4.2 水稻籽粒重金属暴露量

水稻籽粒中的重金属对人体的危害程度与重金属的摄入量有关,计算研究区居民通过食用水稻而进入人体的重金属量,并与相应重金属的健康指导值进行比较,权衡健康风险。Cd、Hg、Pb 和 As 的膳食暴露量计算见式(2),Cr 的摄入量计算见式(3):

$$DIR = C \times D \times T / B \quad (2)$$

$$IR = C_{Cr} \times D \quad (3)$$

式中:DIR 为由于食用水稻籽粒产生的重金属暴露量,μg/kg;D 为水稻籽粒消费量,g/d;T 为暴露计量时间,d;B 为目标人群的平均体重,kg;IR 为重金属 Cr 的日摄入量,μg/d; C_{Cr} 为水稻籽粒中 Cr 的质量浓度,mg/kg。

为对标各重金属元素的健康指导值,Cd 核算月暴露量,记为 DIR_{Cd-30} ;Hg 核算周暴露量,记为 DIR_{Hg-7} ;Pb 和 As 核算日暴露量,分别记为 DIR_{Pb-1} 和 DIR_{As-1} ;Cr 核算日摄入量,记为 IR_{Cr-1} 。

由于不同性别、不同年龄段目标人群的平均体重及水稻籽粒消费量不同,对重金属的膳食暴露风险也不尽相同,为此,分组计算不同年龄段目标人群膳食暴露量。目标人群水稻籽粒消费量和平均体重数据分别引自《中国居民营养与健康状况调查报告之二——2002 膳食与营养素摄入状况》和《中国居民营养与健康状况调查报告之三——2002 居民体质与营养状况》,把目标人群分为 20 个性别年龄组,具体见表 2。

表 2 目标人群体重及其水稻籽粒消费量
Table 2 Body weights and rice consumption of different subpopulations

年龄段 /岁	体重/kg		水稻籽粒消费量 (g·d ⁻¹)	
	男性	女性	男性	女性
>2~4	14.06	13.48	116.8	115.3
>4~7	18.20	17.61	154.9	137.5
>7~11	25.98	25.12	199.0	182.8
>11~14	36.22	36.39	229.5	205.5
>14~18	50.58	47.81	266.1	207.5
>18~30	62.52	52.85	266.9	224.9
>30~45	64.42	55.73	272.6	240.2
>45~60	62.71	56.59	271.5	235.2
>60~70	60.48	53.51	236.2	209.4
>70	57.33	49.80	222.7	192.7

1.4.3 水稻籽粒摄入的健康风险评价

利用风险指数评价研究区当地居民通过食入水稻籽粒产生的健康风险,Cd、Hg、Pb 和 As 的健康风险指数计算见式(4),Cr 的健康风险指数计算见式(5):

$$HQ = DIR / PTWI \quad (4)$$

$$HQ = IR / UL \quad (5)$$

式中:HQ 为各重金属的健康风险指数;PTWI 为重金属的可耐受暴露量,μg/kg;UL 为 Cr 的可耐受最高摄入量,μg/d。

参考食品添加剂与污染物联合专家委员会(JECFA)指导值,Cd 的月可耐受暴露量为 25 μg/kg,世界卫生组织(WHO)和联合国粮食及农业组织(FAO)联合制定 Hg 的周可耐受暴露量为 5.0 μg/kg,Pb、As 的日可耐受暴露量分别为 4、3 μg/kg,Cr 的可耐受最高摄入量为 500 μg/d。若 $HQ \leq 1$,表明尚未对所评价的人群造成健康威胁;若 $HQ > 1$,表明存在一定的健康威胁,且 HQ 越大,健康风险越大。

1.5 数据处理与分析

采用 PASW Statistics 18.0 软件进行数据统计分析,运用 Sigma Plot 11.0 软件进行绘图。

2 结果与讨论

2.1 水稻籽粒及根际土中重金属分布特征

水稻籽粒中 5 项重金属(Cd、Pb、Hg、Cr、As)、根际土中重金属及 pH 统计结果分别见表 3、表 4。可以看出,水稻籽粒中 Cd、Pb、Hg、Cr、As 质量浓度平均值分别为 0.258、0.101、0.004、0.499、0.130 mg/kg,水稻根际土中则分别为 1.170、65.800、0.180、72.200、10.500 mg/kg。本研究中水稻籽粒及根际土中重金属含量普遍偏高,这缘于本研究旨在考察不同污染程度农田所产水稻的健康风险,因此采样点主要布设在以往研究中发现的重金属高污染区。除 Cd 外,其他重金属均低于 GB 2762—2017 和 GB 15618—2018 的标准限值。

表 3 水稻籽粒中重金属质量浓度统计

Table 3 Statistic of heavy metals mass concentration in rice grains

统计量	Cd	Pb	Hg	Cr	As
最小值/(mg·kg ⁻¹)	0.010	0.061	0.002	0.150	0.047
最大值/(mg·kg ⁻¹)	2.060	0.660	0.025	2.660	0.270
平均值/(mg·kg ⁻¹)	0.258	0.101	0.004	0.499	0.130
标准差/(mg·kg ⁻¹)	0.347	0.068	0.002	0.388	0.037
变异系数/%	134.2	66.6	45.1	77.7	28.2

表 4 水稻根际土的重金属质量浓度和 pH 统计¹⁾

Table 4 Statistic of the pH and heavy metals mass concentrations in the rhizosphere soil of rice

统计量	Cd	Pb	Hg	Cr	As	pH
最小值	0.110	26.700	0.070	44.100	3.680	4.66
最大值	15.300	629.000	0.900	114.000	72.400	8.02
平均值	1.170	65.800	0.180	72.200	10.500	5.72
标准差	1.870	64.000	0.090	11.000	7.500	0.56
变异系数/%	159.6	97.4	48.4	15.2	71.1	9.8

注:¹⁾5 项重金属的最大值、最小值、平均值、标准差的单位均为 mg/kg。

水稻籽粒中各重金属的变异系数在 28.2%~134.2%,排序为 Cd>Cr>Pb>Hg>As,变异系数反映了样本的平均变异程度,变异系数越大则样本分布差异越大;当变异系数<10%时为弱变异,10%~90%为中等变异,>90%时为高度变异^[17]。由表 3 可以看出,研究区水稻籽粒中 Cr、Pb、Hg 和 As 属于中等变异,而 Cd 属于高度变异。

2.2 水稻籽粒中重金属富集系数变化特征

富集系数可反映水稻从土壤中吸收重金属的能力,是衡量重金属从土壤环境迁移至农作物体内的常用指标。研究区水稻籽粒重金属的富集系数见表 5。Cd、Pb、Hg、Cr、As 的富集系数平均值分别为 0.299、0.002、0.028、0.007、0.014,富集能力由强至弱依次为 Cd>Hg>As>Cr>Pb。陈凤等^[18]发现,农作物倾向于吸收并富集 Cd、Zn、Ni 3 项重金属,且很大部分转移到水稻籽粒中。Cd 是一种相对活跃的重金属元素,本身很容易在土壤-农作物系统中迁移,研究区土壤中 Cd 含量较高且土壤呈偏酸性,导致 Cd 富集系数最高,因此水稻籽粒中 Cd 超标风险增加。由于土壤中 Pb、Hg、As 和 Cr 迁移性相对较弱^[19-21],水稻根系对这些重金属的吸收能力较弱并具有较强的禁锢作用^[22-23],因此 Pb、Hg、As、Cr 在水稻籽粒中富集量较低。水稻籽粒中 Hg 富集系数明显高于 As、Cr、Pb,可能与大气中 Hg 被水稻吸收进入体内富集有关,以往研究也证实大气中 Hg 是导致长三角地区作物汞含量高的一个重要原因^[24-25]。

表 5 水稻籽粒重金属的富集系数统计

Table 5 Statistic of bioaccumulation factors of heavy metals in rice grains

统计量	Cd	Pb	Hg	Cr	As
最小值	0.020	0.001	0.004	0.002	0.002
最大值	1.430	0.005	0.156	0.041	0.041
平均值	0.299	0.002	0.028	0.007	0.014
标准差	0.224	0.001	0.013	0.006	0.006

表 7 目标人群的 DIR_{Cd-30} 、 DIR_{Pb-1} 、 DIR_{Hg-7} 、 DIR_{As-1} 、 IR_{Cr-1} 平均值

Table 7 Average value of DIR_{Cd-30} , DIR_{Pb-1} , DIR_{Hg-7} , DIR_{As-1} and IR_{Cr-1} for different subpopulations

年龄段/岁	$DIR_{Cd-30}/(\mu g \cdot kg^{-1})$		$DIR_{Pb-1}/(\mu g \cdot kg^{-1})$		$DIR_{Hg-7}/(\mu g \cdot kg^{-1})$		$DIR_{As-1}/(\mu g \cdot kg^{-1})$		$IR_{Cr-1}/(\mu g \cdot d^{-1})$	
	男性	女性	男性	女性	男性	女性	男性	女性	男性	女性
>2~4	64.29	66.20	0.84	0.86	0.23	0.24	1.08	1.11	58.28	72.06
>4~7	65.88	60.43	0.86	0.79	0.24	0.22	1.11	1.02	77.30	85.94
>7~11	59.29	56.32	0.77	0.74	0.21	0.20	1.00	0.95	99.30	114.25
>11~14	49.04	43.71	0.64	0.57	0.18	0.16	0.82	0.73	114.52	128.44
>14~18	40.72	33.59	0.53	0.44	0.15	0.12	0.68	0.56	132.78	129.69
>18~30	33.04	32.94	0.43	0.43	0.12	0.12	0.56	0.55	133.18	140.56
>30~45	32.75	33.36	0.43	0.44	0.12	0.12	0.55	0.56	136.03	150.13
>45~60	33.51	32.17	0.44	0.42	0.12	0.12	0.56	0.54	135.48	147.00
>60~70	30.23	30.29	0.39	0.40	0.11	0.11	0.51	0.51	117.86	130.88
>70	30.07	29.95	0.39	0.39	0.11	0.11	0.51	0.50	111.13	120.44

2.3 水稻籽粒重金属污染程度评价

研究区土壤产出的水稻籽粒中不同重金属的单因子污染指数见表 6。总体上,5 项重金属的单因子污染指数平均值排序为 Cd>As>Pb>Cr>Hg,Cd 的单因子污染指数最大,为 0.05~10.30,平均值为 1.29,这与其变异程度较大相吻合。水稻籽粒中的 Hg、As 介于无污染至轻微污染,Cr 为无污染至轻度污染,Pb 为无污染至中度污染。综上所述,研究区土壤中 Cd 的污染程度最强,其次为 Pb 与 Cr,Hg 和 As 的污染程度相对较轻。徐琳娜等^[26]对江苏 35 个稻谷产区生产稻谷中的 Pb、Cd 分布进行研究,发现苏南产稻谷中 Pb、Cd 平均质量浓度分别为 0.093、0.069 mg/kg,均明显高于苏北产稻谷(Pb、Cd 平均质量浓度分别为 0.044、0.036 mg/kg)。本研究区水稻籽粒中 Pb、Cd 平均质量浓度分别为 0.101、0.258 mg/kg,高于苏南地区。研究区属于江苏人口密集的地区之一,也是水稻的重要产区之一,对该区内所产水稻的食用安全性进行评价具有重要的意义,可督促有关部门对可能存在污染风险的土壤进行源头控制和修复。

表 6 水稻籽粒中重金属单因子污染指数

Table 6 The single factor pollution index of heavy metals in rice grains

统计量	Cd	Pb	Hg	Cr	As
最小值	0.05	0.31	0.08	0.15	0.24
最大值	10.30	3.30	1.25	2.66	1.35
平均值	1.29	0.51	0.23	0.50	0.65
标准差	1.73	0.34	0.10	0.39	0.18

2.4 水稻籽粒重金属健康风险评估

2.4.1 食用水稻的重金属摄入量

由表 7 可见,人群对水稻重金属的暴露量趋势整体呈现低龄高于高龄,>2~4 岁儿童女性高于男性的特点。除 Cd 外,其他重金属的暴露量均低于可耐受暴露量或最高摄入量,因此 Cd 是主要的健康影

响因子。从性别上看,研究区男性的 DIR_{Cd-30} 为 $30.07 \sim 65.88 \mu\text{g/kg}$, 女性的 DIR_{Cd-30} 为 $29.95 \sim 66.20 \mu\text{g/kg}$, 均超过了 $25 \mu\text{g/kg}$; 从年龄层次上看, $>2 \sim 14$ 岁低年龄段暴露人群的 DIR_{Cd-30} 相对较高。2007 年全国总膳食研究结果表明, 成年男子 DIR_{Cd-30} 为 $22.6 \mu\text{g/kg}$ 。宋雯等^[27]调查了江苏省稻米 Cd 含量及其膳食暴露评估, 显示成年男子因食用江苏稻米而产生的 DIR_{Cd-30} 为 $4.50 \mu\text{g/kg}$ 。相较而言, 本研究中污染区域的成人 Cd 暴露量高于全国和全省的平均水平。

为进一步评价不同 Cd 污染区域土壤所产水稻籽粒对人群的健康风险, 计算了食用无污染至重度 Cd 污染土壤所产水稻籽粒的 DIR_{Cd-30} , 结果见表 8。可以看出, 无污染土壤的 DIR_{Cd-30} 为 $8.45 \sim 18.68 \mu\text{g/kg}$, 低于 $25 \mu\text{g/kg}$, 食用该区域水稻是安全的; 轻微 Cd 污染土壤的 DIR_{Cd-30} 为 $11.08 \sim 24.48 \mu\text{g/kg}$, 虽然低于可耐受暴露量, 但是 $>2 \sim 11$ 岁人群的 DIR_{Cd-30} 已经超过了 $20 \mu\text{g/kg}$, 而且 $>2 \sim 4$ 岁女童的 DIR_{Cd-30} 已经高达 $24.48 \mu\text{g/kg}$, 接近可耐受暴露量; 轻度 Cd 污染土壤的 DIR_{Cd-30} 为 $19.53 \sim 43.18 \mu\text{g/kg}$, $>2 \sim 18$ 岁男性人群的 DIR_{Cd-30} 已经超过 $25 \mu\text{g/kg}$; 中度和重度 Cd 污染土壤的 DIR_{Cd-30}

分别为 $38.71 \sim 85.57$ 、 $71.51 \sim 158.07 \mu\text{g/kg}$, 均高于可耐受暴露量, 最高值为可耐受暴露量的 6 倍以上, 风险较高。

2.4.2 重金属污染对人体健康风险评价

基于水稻籽粒中 Pb、Hg、As、Cr、Cd 平均质量浓度, 计算各单一重金属对目标人群的 HQ, 结果见表 9。由表 9 可以看出, 研究区所产的水稻籽粒中 5 项重金属的 HQ 排序为 $Cd > As > Cr > Pb > Hg$, As、Cr、Pb 和 Hg 的 HQ 均小于 1, 说明未对人体健康产生影响, 而 Cd 的 HQ 为 $1.20 \sim 2.65$, 存在一定的风险。

进一步分析不同污染程度土壤产出水稻籽粒的 Cd 风险指数, 结果见图 1。结果表明, 食用无污染和轻微 Cd 污染土壤所产水稻的 HQ 小于 1, 对人体的健康影响不大; $>2 \sim 18$ 岁男性人群食用轻度 Cd 污染土壤所产水稻的 $HQ > 1$, 会产生一定的风险; 食用中度及重度 Cd 污染土壤所产水稻对所有人群的 HQ 均超过了 1, 其中重度污染土壤的 HQ 最高可达 6.32, 对人群具有较大的健康风险。从性别上看, 男性人群的 HQ 高于女性, 男性及女性的 HQ 最高值分别出现在 $>4 \sim 7$ 、 $>2 \sim 4$ 岁年龄段, HQ 最低值均出现在 >70 岁年龄段, 潜在风险最小。

表 8 不同 Cd 污染土壤所产水稻籽粒对目标人群的 DIR_{Cd-30}

Table 8 DIR_{Cd-30} of different subpopulations via milled rice planted in soils with different Cd pollution degree

年龄段/岁	无污染		轻微污染		轻度污染		中度污染		重度污染	
	男性	女性	男性	女性	男性	女性	男性	女性	男性	女性
$>2 \sim 4$	18.14	18.68	23.78	24.48	41.93	43.18	83.11	85.57	153.53	158.07
$>4 \sim 7$	18.59	17.05	24.36	22.35	42.96	39.41	85.15	78.11	157.29	144.30
$>7 \sim 11$	16.73	15.89	21.92	20.83	38.66	36.73	76.63	72.80	141.56	134.49
$>11 \sim 14$	13.84	12.33	18.14	16.16	31.98	28.51	63.39	56.50	117.10	104.36
$>14 \sim 18$	11.49	9.48	15.06	12.42	26.56	21.91	52.63	43.42	97.23	80.21
$>18 \sim 30$	9.32	9.29	12.22	12.18	21.55	21.48	42.71	42.57	78.90	78.64
$>30 \sim 45$	9.24	9.41	12.11	12.34	21.36	21.76	42.33	43.12	78.20	79.65
$>45 \sim 60$	9.45	9.08	12.39	11.90	21.85	20.98	43.31	41.58	80.01	76.81
$>60 \sim 70$	8.53	8.55	11.18	11.20	19.71	19.75	39.07	39.15	72.18	72.32
>70	8.48	8.45	11.12	11.08	19.61	19.53	38.86	38.71	71.79	71.51

表 9 单一重金属对目标人群的 HQ

Table 9 Single heavy metal HQ of different subpopulations

年龄段/岁	Cd		Pb		Hg		As		Cr	
	男性	女性	男性	女性	男性	女性	男性	女性	男性	女性
$>2 \sim 4$	2.57	2.65	0.21	0.22	0.05	0.05	0.36	0.37	0.12	0.14
$>4 \sim 7$	2.64	2.42	0.22	0.20	0.05	0.04	0.37	0.34	0.16	0.17
$>7 \sim 11$	2.37	2.25	0.19	0.18	0.04	0.04	0.33	0.32	0.20	0.23
$>11 \sim 14$	1.96	1.75	0.16	0.14	0.04	0.03	0.28	0.25	0.23	0.26
$>14 \sim 18$	1.63	1.34	0.13	0.11	0.03	0.02	0.23	0.19	0.27	0.26
$>18 \sim 30$	1.32	1.32	0.11	0.11	0.02	0.02	0.19	0.18	0.27	0.28
$>30 \sim 45$	1.31	1.33	0.11	0.11	0.02	0.02	0.18	0.19	0.27	0.30
$>45 \sim 60$	1.34	1.29	0.11	0.11	0.02	0.02	0.19	0.18	0.27	0.29
$>60 \sim 70$	1.21	1.21	0.10	0.10	0.02	0.02	0.17	0.17	0.24	0.26
>70	1.20	1.20	0.10	0.10	0.02	0.02	0.17	0.17	0.22	0.24

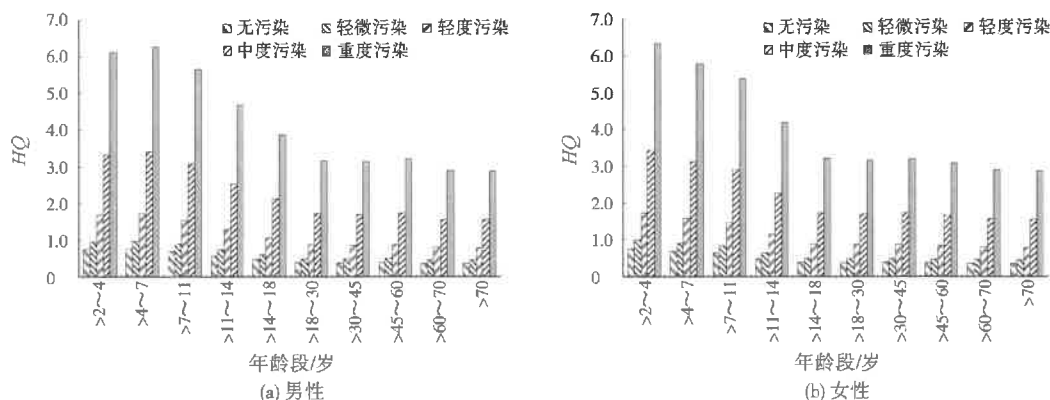


图1 目标人群的HQ

Fig.1 HQ of different subpopulations

从年龄层次上看,低龄人群健康风险大于高龄人群,可能由于幼儿及少年的体重较轻,单位体重的水稻籽粒消费量较高,随着人群年龄的增加,体重不断增长,单位体重的重金属膳食暴露量相应降低,当达到老年以后,虽然体重有一定的降低,但由于水稻籽粒消费量不断减少因而暴露量继续降低。

降低食用水稻的Cd暴露风险,除了从生产上控制水稻籽粒Cd含量,还需要从消费层面上引导,加强对高消费人群和敏感人群的关注。MASAYUKI等^[28]追踪调研日本居民40年膳食Cd摄入量变化情况,认为水稻产区调整和消费引导可将土壤Cd污染区居民的Cd摄入量由最高的360 μg/kg下降到60 μg/kg。因此,基于研究区轻度及以上污染程度土壤所产水稻籽粒的风险考量,在控制污染源输入的基础上,还应加强污染耕地的修复治理及其他安全利用措施。

3 结论

(1) 研究区水稻籽粒中Cd、Pb、Hg、Cr、As平均质量浓度分别为0.258、0.101、0.004、0.499、0.130 mg/kg,部分样品中Cd含量超过了GB 2762—2017标准限值,Cd为高度变异元素,污染程度最强,其他4项重金属为中等变异程度。

(2) 5项重金属通过水稻籽粒摄入对人体造成的健康风险顺序为Cd>As>Cr>Pb>Hg,对于不同年龄段目标人群而言,As、Cr、Hg和Pb的暴露量低于可耐受暴露量或最高摄入量,HQ均小于1,对当地居民健康未产生影响。

(3) 食用无污染和轻微Cd污染土壤所产水稻的HQ小于1,不会对人体健康产生影响;食用轻度Cd污染区所产水稻,不会对>18岁成年人产生影响,但是会对>2~18岁男性人群产生一定的风险;长期食用中度及重度Cd污染土壤所产水稻会对当

地居民健康产生影响,应加强污染耕地的修复治理及风险管控。

参考文献:

- [1] LIAO Q L, LIU C, WU H Y, et al. Association of soil cadmium contamination with ceramic industry: a case study in a Chinese town[J]. Science of the Total Environment, 2015, 514: 26-32.
- [2] 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价[J]. 农业环境科学学报, 2010, 29(4): 659-665.
- [3] CAI L M, XU Z C, QI J Y, et al. Assessment of exposure to heavy metals and health risks among residents near Tonglushan mine in Hubei, China[J]. Chemosphere, 2015, 127: 127-135.
- [4] RAI S, GUPTA S, MITTAL P C. Dietary intakes and health risk of toxic and essential heavy metals through the food chain in agricultural, industrial, and coal mining areas of Northern India[J]. Human and Ecological Risk Assessment, 2014, 21(4): 913-933.
- [5] 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.
- [6] ZHU P, LIANG X X, WANG P, et al. Assessment of dietary cadmium exposure: a cross-sectional study in rural areas of south China[J]. Food Control, 2016, 62: 284-290.
- [7] 杭小帅, 周健民, 王火焰, 等. 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.
- [8] 刘倩, 陈红燕, 唐豆豆, 等. 苏南典型区土壤-水稻系统中重金属迁移特征及定量模型研究[J]. 环境科技, 2016, 29(4): 20-25.
- [9] KE S, CHENG X Y, ZHANG N, et al. Cadmium contamination of rice from various polluted areas of China and its potential risks to human health[J]. Environmental Monitoring & Assessment, 2015, 187(7): 408.
- [10] HU Y, CHENG H, TAO S. The challenges and solutions for cadmium-contaminated rice in China: a critical review[J]. Environment International, 2016, 92/93: 515-532.
- [11] 陆美斌, 陈志军, 李为喜, 等. 中国两大优势产区小麦重金属镉含量调查与膳食暴露评估[J]. 中国农业科学, 2015, 48(19): 3866-3876.
- [12] 秦越华, 强承魁, 曹丹, 等. 徐州市典型稻区土壤和稻米重金属含量及健康风险评价[J]. 生态环境学报, 2016, 25(9): 1546-1554.
- [13] 王晓波, 李建国, 刘冬英, 等. 广州市市售大米中镉污染水平及健康风险评价[J]. 中国食品卫生杂志, 2015, 27(1): 75-78.
- [14] 郑顺安, 唐杰伟, 郑宏艳, 等. 污灌区稻田汞污染特征及健康风险评价[J]. 中国环境科学, 2015, 35(9): 2729-2736.
- [15] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 科学出版社, 2000.
- [16] 麻冰涓, 王海邻, 李小明, 等. 豫北典型农田作物中重金属污染状况及健康风险评价[J]. 生态环境学报, 2014, 23(8): 1351-1358.

(下转第228页)