



我国土壤重金属污染的多暴露途径健康风险评估

陈科彤^{1,2}, 陈思宇^{1,2,✉}, 薛劲凯³, 何嘉琦^{1,2}, 姜云超¹, 王澜⁴, 刘楚薇², 陈渔², 张润斌^{1,2}, 罗源⁵

1. 兰州大学资源环境学院, 兰州 730000; 2. 兰州大学半干旱气候变化教育部重点实验室, 兰州 730000; 3. 中国科学技术大学环境科学与光电技术学院, 合肥 230026; 4. 中国科学院大气物理研究所中层大气和全球环境探测重点实验室, 北京 100029; 5. 湖南省气象台, 长沙, 410118

摘要 土壤重金属 (SHMs) 污染因其高毒性、隐蔽性、持久性和生物累积性而受到广泛关注, 因此, 精准量化 SHMs 的人体输入途径及其危害风险对于保障人民生命健康至关重要。通过多样本实测和文献检索相结合, 选取 856 篇参考文献和收集的 563 个实测样本, 从全国尺度重构了多类别土壤混合的 SHMs (Cu、Pb、Zn、Cd、Cr、As、Ni 和 Hg) 含量融合数据集, 基于本土化和精细化构建的土壤—膳食食物链富集模式, 改进了健康风险评估模型, 通过食物摄入、皮肤接触和吸入 3 种通道, 肉类、蛋类、谷类、蔬菜、水果、鱼类 6 种精细食物链, 精准量化了 SHMs 的非致癌和致癌健康风险, 并对主要人体输入途径进行识别。结果表明: 中国南方 SHMs 的平均含量通常高于北方, 土壤中 Zn 的平均含量 ($84.35 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 比 Hg ($0.12 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 高 702 倍, Cd 是中国土壤中最常见的污染物, 约 90% 采样点的 Cd 含量超过了最新的风险筛查值; 食物摄入是 SHMs 输入人体最多的途径, 其次是皮肤接触, 其中食物摄入对人体暴露的非致癌风险指数 (HI) 和致癌风险指数 (CRI) 的贡献分别达到了 88% 和 86%; 值得注意的是, 除 As 在湖南有一定非致癌风险外, Cu、Pb、Zn、Cd、Cr、Ni 和 Hg 的 HI 均不超过 1, Cd、Cr、As 和 Ni 的 CRI 介于 10^{-4} 至 10^{-6} 之间, 对人体的致癌危害在可以接受范围内; 研究的六条精细食物链中, 肉类和谷类分别是造成 SHMs 污染人体膳食暴露最多的动物型和植物性食物链。总体而言, SHMs 污染对人体造成的健康风险影响在可接受范围内。本研究将对制定精准的 SHMs 健康风险管理策略和保护环境有一定的价值。

关键词 土壤; 重金属; 精细途径; 人体输入; 健康危害; 风险评估

重金属 (HM) 污染已在全球范围内影响农业、工业、人类健康和生态系统平衡^[1], 造成巨大的经济影响^[2]。土壤是陆地生态系统的基础, 具有承受、调解和过滤污染效应的功能^[3]。土壤尤其是土壤表层积累了大量的污染物, 而 HM 的土壤富集^[4]主要源于工业活动、交通、建筑和居民生活排放以及大量的大气沉积^[5]。过量的 HM 进入土壤会影响土壤质量^[6], 从而降低土壤生产力^[7]。同时, 人类活动产生的 HM 粉尘作为气溶胶进入大气, 对天气、气候和人类健康产生深远影响^[8-9]。当土壤或大气中的 HM 含量较高时, 人类可能会出现腹泻、呕吐、免疫力下降、神经紊乱和器官疾病, 这些 HM 甚至会增加人类死亡的风险^[10-11]。因此, SHMs 已成为影响人类健康和环境的重要污染物^[12]。

SHMs 暴露引起的发病率还与生活场景密切相关^[13]。SHMs 可以通过各种途径进入人体, 如直接吸入、饮食摄入和皮肤接触, 并沉积在人体的循环系统中^[14-15], 从而影响正常的器官功能。例如, HM 会影响细胞器、细胞膜、细胞核以及参与代谢、解毒和损伤修复的某些酶^[16], As 能引起细胞呼吸、细胞酶和有丝分裂功能障碍^[17], Cd 会影响肾功能^[18]并导致心血管疾病。由于土壤中的大多数 HM 可以在作物中积聚, 摄入受 HM 污染的食物和蔬菜会导致严重的人类健康问题^[10-11]。土壤向各圈层的输送加剧了 SHMs 在生态系统中的食物链富集^[19], 因此, 对 SHMs 人体输入途径和健康危害机制的研究需求日益增加。

在过去的 20 年里, 我国非常重视 SHMs 污染解析和控制技术研究^[20]。研究显示, 工业活动增加了京津

收稿日期: 2023-11-27; 录用日期: 2024-01-13

基金项目: 国家自然科学基金委员会和中国气象局联合基金资助项目 (U2242209); 国家自然科学基金资助项目 (42175106)

第一作者: 陈科彤 (1987—), 男, 博士研究生, 研究方向为污染治理与健康效应、生态经济, pnreac@163.com ✉通信作者: 陈思宇 (1983—), 女, 博士, 教授, 研究方向为大气环境与气候变化相互作用、污染治理等, chensiyu@lzu.edu.cn

冀地区 HM 的含量^[21-22]。CHENG 等^[21]报道,中国所有 HM 中, Hg、Cd 和 Se 污染严重。近 33.54% 的农用地和 44.65% 的城市土壤受到 Cd 污染^[23]。LI 等^[24]通过选择中国南方和辽宁的一些城市作为优先控制省份,对中国矿山土壤中的 HM 污染进行了全面评估。HU 等^[25]评估了 8 种土壤 HM 引起的污染水平、生态风险和健康风险,报告称湖南和广西的儿童暴露于相对较高的非致癌风险中。城市公园和学校中受污染的土壤和灰尘 HM 对儿童构成的风险至关重要^[26]。空气污染是 HM 吸入性致癌风险的重要原因^[27]。Cd 是导致人类健康风险的最重要污染物^[28]。香港道路沉积物中的高 Zn 含量可能是由轮胎磨损引起的^[29]。同时,国外也有很多研究, KHAN 等^[30]报道 HM 和其他污染物对公众特别是儿童,具有很高的致癌和非致癌风险^[31]。伊朗德黑兰因工业活动排放物而受到 Pb 和 Zn 的高度污染,土耳其伊斯坦布尔一条高速公路的路面沉积物中 Pb、Cu、Zn 的含量高于土壤正常水平^[32]。

综合以上分析,当前 SHMs 研究还存在一些不足,例如,大多研究集中于区域和局部地区,全国性的分析研究较少^[33];单一土壤类型研究较多,多类别土壤的混合研究较少;重污染土壤研究较多,轻污染土壤研究较少;城市或农田土壤研究较多,农村道路和沙漠类别涉及较少;研究数据单独来自文献检索或实地观察的居多,两者融合使用的较少;人体输入途径考虑直接土壤摄入较多,精细食物链途径研究较少。而不同土地类型是影响 SHMs 污染以及造成人类健康风险的重要因素^[12,28,34],单独的文献统计往往多偏向于高污染研究^[20],单独的现场采样数据量偏小,官方土壤污染调查公报也仅更新到 2014 年,缺乏最新数据。此外,研究表明人类和动物的 SHMs 暴露主要来源是食物链污染而非直接土壤摄入^[35-36]。为此,本研究从全国尺度考量,重污染土壤和轻污染土壤,城市道路、农田、农村道路和沙漠综合考虑,文献检索和多样本实测相结合,构建较符合中国饮食情况的土壤—膳食食物链富集模式,用肉类、蛋类、谷类、蔬菜、水果、鱼类等 6 种精细食物链代替直接食用土壤方式作为经口输入途径的主要来源。对 SHMs 的污染状况、人体输入途径和健康危害风险进行了多介质、多途径的精细分析和系统评估。研究地域范围广、土壤类型多样、暴露途径多、针对性强、更接近实际场景,可以更综合的计算 SHMs 对全国地区人体的危害,提高了暴露评价的能力。以期评估和预防 SHMs 污染造成的人体健康危害风险提供精准可靠的理论支撑。

1 材料和方法

1.1 建立全国土壤重金属含量融合数据集

1) 获取多样本实测数据

①研究区域和采样方法。土壤样本采集自四种不同的类别,包括 372 个城市道路样本、46 个乡村道路样本、86 个农田土壤样本和 59 个塔克拉玛干沙漠和腾格里沙漠样本。样本总数为 563 个。道路样本选择一个大约 30 cm 宽和 80 cm 长的采样区域,通过混合每个地点的 5~10 个子样本获得土壤样本,采样点间隔超过 300 m。农田土壤选择休耕期在种植区之间的过道采样,采样点间隔超过 200 m。农田和道路应采集 0 至 15 cm 或 0 至 20 cm 的表层土壤样本,沙漠中的样本采集自风成沙 0~5 cm 的表层。样本均在天气良好、无风、无降水 and 无洒水的情况下采集。

②样品制备和检测。实验在兰州大学西部环境教育部重点实验室进行。首先使用研磨机和压样机对样品进行预处理,然后使用型号为 Magix (PW2403) 的 X 射线荧光光谱仪对样品成分进行分析。实验步骤如下: a. 将 20 g 原始样本放入磨筒中,放入振动磨中研磨 30 s,倒入 200 目标准检验筛中过滤,过滤后的样本用新的密封袋保存并做好标记; b. 使用高精度电子秤称取研磨后的样本 4.0 g 放入压样机的钢环中压制样本,在钢环外围加入适量硼酸试剂,抽出钢环和压锤后启动压样机; c. 当压力及受压时间达到预定后,取下样片并进行标记,把工具用无水乙醇擦拭干净; d. 用 X-射线荧光光谱仪测量。

2) 收集文献数据

除从实地采样中收集数据外,还对我国土壤中 HM 含量的现有研究文献进行了全面检索。优先选择含有全国范围各省 SHMs 平均含量数据的文献,以表土 10~20 cm 深度的土壤样品为研究对象,排除不含农田土壤样本的,排除单一类型 SHMs 或研究样本过少的文献,剔除异常高值和低值,选定 856 篇参考文献的研究数据作为本研究的数据来源。最终,对 31 个省级行政区(不含港澳台)的 Cu、Pb、Zn、Cd、Cr、As、Ni、Hg 共 8 种 SHMs 进行了数据融合,如图 1 所示。

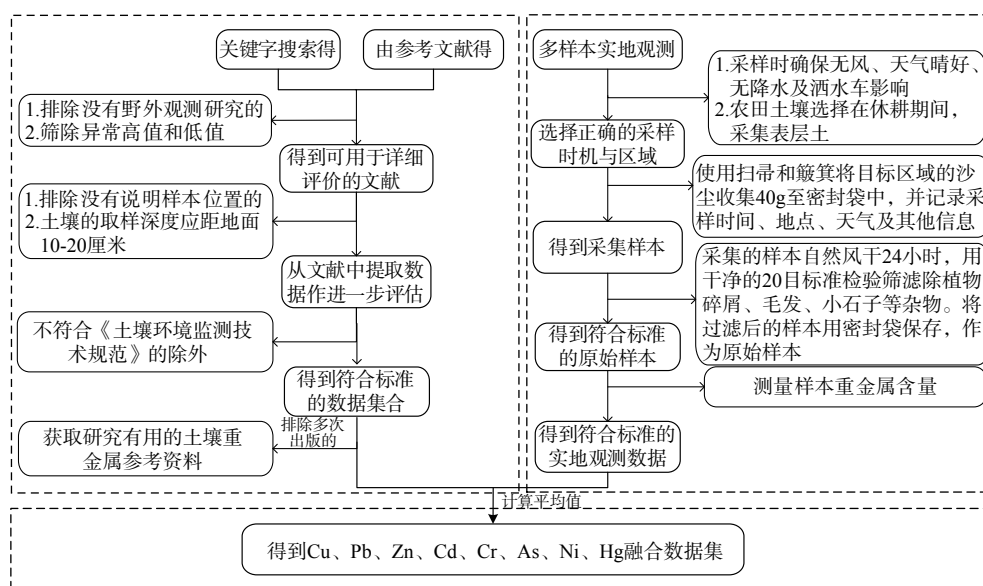


图 1 SHMs 融合数据集构建模型

Fig. 1 Construction method of SHMs fusion datasets

1.2 污染评价方法

内梅罗指数 (NEMI) 是一种利用单因子污染指数 (SFPI) 开发的综合污染指数方法，可以更全面地评估 SHMs 的污染水平。NEMI 不仅考虑了各种影响参数的平均污染状况，还强调了污染最严重的因子，见式 (1) 和 (2)。

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

$$NEMI_i = \sqrt{\frac{(P_i)^2 + (P_{imax})^2}{2}} \quad (2)$$

式中： P_i 为 SFPI 的平均值； P_{imax} 为最大 SFPI； C_i 为污染物的实测值， $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ； S_i 为第 i 种金属的土壤环境质量指标，其值由《土壤环境质量标准》(GB15618-1955) 确定^[37]。

SFPI 和 NEMI 的分级标准如表 1 所示。

表 1 SFPI 和 NEMI 分级标准
Table 1 SFPI and NEMI grading standards

污染水平	内梅罗指数	污染水平	单因子污染指数
安全 (清洁)	≤ 0.7	—	—
警戒线 (尚清洁)	$0.7 < I \leq 1$	非污染	$I \leq 1$
轻污染 (污染物超过起初污染值)	$1 < I \leq 2$	轻污染	$1 < I \leq 2$
中污染 (土壤和作物污染明显)	$2 < I \leq 3$	中污染	$2 < I \leq 3$
重污染 (土壤和作物污染严重)	$I > 3$	重污染	$I > 3$

1.3 人体健康危害评估模型

人体健康风险评估包括危害识别、剂量-反应评价、暴露评估和风险表征^[37]。外来物质可通过一种或多种途径和暴露媒介进入人体，如空气、土壤、水、灰尘、食物和化妆品。虽然美国环保署提出的模型被广泛应用于计算暴露^[38]，但为了使量化结果更加精准，更加适用本土人类实际生活场景，本研究对计算模型做了改进，构建土壤—膳食食物链富集模式，用谷类、蔬菜、水果、肉类、蛋类和鱼类等 6 条常见的精细食物链替

代直接食用土壤方式。计算和参数主要参考了《中国人群暴露参数手册》、《污染场地风险评估技术导则》(HJ25.3-2019)^[38-39]。最终,通过吸入、皮肤接触和食物摄入 3 个主要途径的平均每日暴露量,精细计算和分析了土壤重金属人体暴露的非致癌和致癌风险,以确定与 SHMs 相关的健康危害,如图 2 所示。

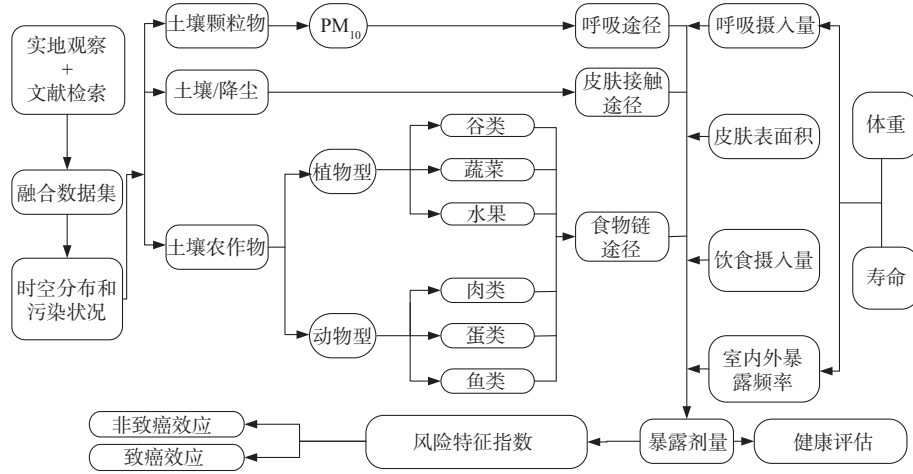


图 2 土壤重金属健康危害风险评估模型

Fig. 2 The health risk assessment model of SHMs

1.4 暴露剂量和健康风险表征

1) 暴露剂量计算

非致癌性 SHMs 的平均每日暴露剂量 (ADD) 和致癌性 SHMs 的终生平均每日暴露剂量 (LADD) 是指某个 HM 通过空气、皮肤、食物等暴露途径进入体内的总量。对于单一 SHMs 的非致癌效应,主要考虑人体在儿童期暴露的危害,而对于单一 SHMs 的致癌效应则考虑人体在儿童和成人暴露的终生危害。计算模型如式 (3) 至 (13) 所示。

吸入途径 (inh) :

$$ADD_{inh} = \frac{C_{soil} \times PM_{10} \times InhR_c \times ED_c \times PIAF \times (fspo \times EFO_c + fspl \times EFL_c)}{BW_c \times AT_{nc}} \times 10^{-6} \quad (3)$$

$$LADD_{inh} = \left(\frac{InhR_c \times ED_c \times (fspo \times EFO_c + fspl \times EFL_c)}{BW_c} + \frac{InhR_a \times ED_a \times (fspo \times EFO_a + fspl \times EFL_a)}{BW_a} \right) \times \frac{C_{soil} \times PM_{10} \times PIAF}{AT_{ca}} \times 10^{-6} \quad (4)$$

皮肤接触途径 (der) :

$$ADD_{der} = \frac{C_{soil} \times SA_c \times AF_c \times ABS \times E_v \times EF_c \times ED_c}{BW_c \times AT_{nc}} \times 10^{-6} \quad (5)$$

$$LADD_{der} = \left(\frac{SA_c \times AF_c \times EF_c \times ED_c}{BW_c} + \frac{SA_a \times AF_a \times EF_a \times ED_a}{BW_a} \right) \times \frac{C_{soil} \times ABS \times E_v}{AT_{ca}} \times 10^{-6} \quad (6)$$

$$SA_c = 239 \times H_c^{0.417} \times BW_c^{0.517} \times SER_c \quad (7)$$

$$SA_a = 239 \times H_a^{0.417} \times BW_a^{0.517} \times SER_a \quad (8)$$

食物摄入途径 (ing) :

$$ADD_{ing} = \frac{C_{intake} \times IngR_c \times EF_c \times ED_c \times Bac}{BW_c \times AT_{nc}} \times 10^{-3} \quad (9)$$

$$LADD_{ing} = \left(\frac{IngR_c \times EF_c \times ED_c}{BW_c} + \frac{IngR_a \times EF_a \times ED_a}{BW_a} \right) \times \frac{C_{intake} \times Bac}{AT_{ca}} \times 10^{-3} \quad (10)$$

式中: C_{soil} 为 HM 的含量, $mg \cdot kg^{-1}$; SA 为接触皮肤表面积, cm^2 ; AF 为土壤或沙尘在皮肤上的黏附因子,

$\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$; ABS 是皮肤吸收因子, 无量纲; E_v 为每日皮肤接触事件频率, $\text{次}\cdot\text{d}^{-1}$; EF 为每年暴露频率, $\text{d}\cdot\text{a}^{-1}$; ED 为暴露年数, a; BW 为暴露人体平均体重, kg; AT 为暴露在环境介质的平均时长, d; IngR 为对应食物的平均摄入频率 (取《中国居民膳食指南》对应食物类别的上限值, $\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$; InhR 为每日空气呼吸量, $\text{m}^3\cdot\text{d}^{-1}$; PM_{10} 为空气中土壤颗粒物的浓度, $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$; PIAF 为吸入土壤颗粒物在体内的滞留比例, 无量纲; AT_{nc} 和 AT_{ca} 分别代表非致癌作用的平均时间和致癌作用的平均时间, d; C_{intake} 是摄入食物中 SHMs 的含量, $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; Bac 为食物中 HM 进入人体的生物可利用度^[40-42], %。公式中其他参数的定义和值如表 2 所示。

表 2 暴露参数的含义和取值

Table 2 the meaning and value of the exposure calculation parameters

参数	含义	单位	取值	
			成人 (a)	儿童 (c)
PM_{10}	空气中可吸入颗粒物浓度	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$	1.5×10^{-4}	
C_{soil}	土壤重金属含量平均值	$\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$	本研究	
ED	暴露期	a	24	6
EF	暴露频率	$\text{d}\cdot\text{a}^{-1}$	350	
EFI	室内暴露频率	$\text{d}\cdot\text{a}^{-1}$	262.5	
EFO	室外暴露频率	$\text{d}\cdot\text{a}^{-1}$	87.5	
BW	平均体重	kg	56.8	15.9
H	平均身高	cm	156.3	99.4
InhR	每日空气呼吸量	$\text{m}^3\cdot\text{d}^{-1}$	14.5	7.5
IngR	每日饮食摄入量	$\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$	膳食手册	
E_v	每日皮肤接触事件频率	$\text{次}\cdot\text{d}$	1	
fspi	室内空气来自土壤的颗粒物比例	无量纲	0.8	
fspo	室外空气中来自土壤的颗粒物比例	无量纲	0.5	
SAF	暴露于土壤的参考剂量分配比例	无量纲	0.2	
SER	暴露皮肤所占体表面积比	无量纲	0.32	0.36
AF	皮肤表面土壤粘附系数	$\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$	0.07	0.2
PIAF	吸入土壤颗粒物在体内滞留比例	无量纲	0.75	
ABS	皮肤吸收因子	无量纲	0.001	
AT	平均暴露时间	d	26 280 (AT_{ca})	
			2 190 (AT_{nc})	

本研究中 C_{intake} 按照植物型、动物型分别进行计算, 其中: 植物型食物中的 SHMs 含量计算如式 (11) 所示。

$$C_{\text{intake-plant}} = C_{\text{soil}} \times \text{TF} \quad (11)$$

式中: $C_{\text{intake-plant}}$ 代表植物型食物中 SHMs 的含量, $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; TF (soil-to-plant Transfer Factors) 是土壤—膳食食物链中 HM 从土壤到植物的转移因子, 因此, TF 是 $C_{\text{intake-plant}}$ 与 C_{soil} 的比值, 选择主要食物和对应地区 SHMs 的实测值进行推算^[43-47]。

动物型食物中的 SHMs 含量 $C_{\text{intake-animal}}$ 计算公式^[48] 如式 (12) 所示。

$$C_{\text{intake-animal}} = \left(C_{\text{feed}} \times \frac{I_{\text{feed}}}{I_{\text{feed}} + I_{\text{soil}}} + C_{\text{soil}} \times \frac{I_{\text{soil}}}{I_{\text{feed}} + I_{\text{soil}}} \right) \times \text{BAF}_{\text{feed-animal}} \quad (12)$$

式中： $C_{\text{intake-animal}}$ 是动物性食物中 HM 含量， $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ； C_{feed} 是饲料中 HM 的含量， $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ； $\text{BAF}_{\text{feed-animal}}$ (bioaccumulation factor) 是土壤—膳食食物链中 HM 从植物到动物的富集系数； I 为摄入量，kg。

由于 HM 的富集因子在不同种群的不确定性及其中国地区饮食结构的差异性，式 (12) 简化为式 (13)。

$$C_{\text{intake-animal}} = (C_{\text{veg}} + C_{\text{gra}}) \times \text{BAF}_{\text{feed-animal}} \quad (13)$$

式中：富集因子 $\text{BAF}_{\text{feed-animal}}$ 为相当于动物器官中 HM 的含量除以饲料中 HM 的含量。本研究假设谷物与蔬菜构成了所选动物型食物链的饮食结构，并且两者被家畜消耗比为 1:1，根据第五次中国总膳食手册中谷类 HM 含量 C_{gra} ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 和蔬菜 HM 含量 C_{veg} ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 之和与肉类 HM 含量 C_{meat} ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 的数值，拟合得出 $\text{BAF}_{\text{feed-animal}}$ 。

2) 健康风险表征

考虑到污染物每个暴露途径的致癌和非致癌效应，非致癌危害商 (HQ)、非致癌危害指数 (HI) 和致癌风险 (CR)、致癌风险指数 (CRI) 的计算方程如式 (14)~(19) 所示。

$$\text{HQ}_i = \frac{\text{ADD}_i}{\text{RfD}_i \times \text{SAF}} \quad (14)$$

$$\text{HI} = \sum \text{HQ}_i \quad (15)$$

$$\text{CR}_i = \text{LADD}_i \times \text{SF}_i \quad (16)$$

$$\text{CRI} = \sum \text{CR}_i \quad (17)$$

$$\text{PHQ}_i = \frac{\text{HQ}_i}{\text{HI}} \times 100\% \quad (18)$$

$$\text{PCR}_i = \frac{\text{CR}_i}{\text{CRI}} \times 100\% \quad (19)$$

式中： RfD_i 是暴露参考剂量， $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ，表示在单位时间单位体重摄取的不会引起人体不良反应的污染物最大量；斜率系数 (SF) 表示人体暴露于一定剂量某种污染物产生致癌效应的最大概率；HI 为总非致癌风险，当 HQ 或 HI < 1 时，没有非致癌风险，当 HQ 或 HI > 1 时，有一定的非致癌风险；CRI 为总致癌风险，当 CRI 或 CR 的数量级大于 10^{-4} 时，认为存在人体不能抵御的致癌风险，介于 10^{-6} 和 10^{-4} 之间时，具有一定致癌风险，宜引起关注，小于 10^{-6} 时不具备致癌风险。 PHQ_i 、 PCR_i 分别表示非致癌风险和致癌风险贡献率，%。

2 结果和讨论

2.1 全国土壤重金属空间分布情况

自然情况下，土壤中元素的含量通常遵循正态分布^[49]。为了使土壤重金属融合数据更加接近实际分布，本研究的融合数据集选择 856 篇国内外文献，以“土壤”+“中国”+“重金属含量”为关键词，从 Web of Science 的 ISI、Science Direct、Google Scholar、ResearchGate、PubMed、中国国家知识基础设施、中国万方和中国维普等文献数据库中进行检索获取，排除土壤类型单一、没有野外观测数据以及没有说明样本位置的，研究数据 4751 条，并对各省份的研究结果进行算术平均。同时，增加 563 个实测样本作为补充，样品的取样点位、预处理和化学分析过程均严格按照《土壤环境监测技术规范》的要求进行。通过 Origin 2021 对中国 31 个省区 SHMs 平均含量进行 Shapiro-Wilk 正态分布检验，结果显示，在 0.01 显著性水平下，除 Pb 元素外，其他 SHMs 的含量均来自正太分布群体，说明本研究构建的土壤重金属融合数据集互补性良好，总体符合自然分布。部分取样点的 Pb 元素可能受到外界干扰较强，异常高值可能代表人类排放引起的土壤富集。考虑到 Cd 和 Hg 的含量与其他重金属不是一个量级，分别在不同坐标绘制了 Cu、Pb、Zn、Cr、As、Ni 和 Cd、Hg 的全国各省区平均含量箱线图，如图 3 所示，Zn 对应的箱体很长，空间分布相对分散，含量主要集中在 $72.76 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ~ $116.31 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 范围内，而 As 的箱体最短，分布相对集中。

总体来说，全国 SHMs 平均含量差异较大，比如 Zn ($84.35 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 是 Hg ($0.12 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 的 702 倍，

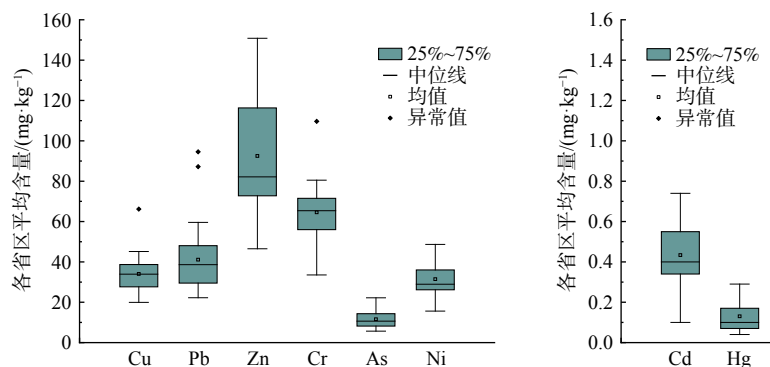


图 3 SHMs 全国各省区平均含量箱线图

Fig. 3 Box plot of average concentration of SHMs in all provinces of China

全国极大值排在前三位的分别为: Zn ($150.82 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)、Cr ($109.66 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)、Pb ($94.54 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)，高值主要出现在云贵高原和东南地区。南方 8 种 SHMs 的含量普遍高于北方，高值点与密集采矿点或工业集中区关联度较高^[20,50]。考虑到土壤中 HM 的背景值取决于母岩的土壤组成^[51]，同时 SHMs 还受到矿产资源、工业和人类活动的影响，可能的原因是中国南方地区有丰富的金属矿床和冶炼厂，含有高浓度 HM 的矿渣被冲入土壤，从而造成的污染。这一结果与其他研究基本一致，例如，ZHENG 等^[52]研究了赣南地区的 HM 污染，发现所有土壤样本中 HM 的含量都高于背景值；LI 等^[53]报告称，湘东地区 86% 的稻田受到 Cd 污染；Hg 和 Cd 对黄河下游南部冲积平原有着相当大的潜在生态风险^[25,54]。

2.2 土壤重金属环境污染状况

不同地区 8 种 SHMs 元素的 SFPI 柱状图如 4(a) 所示，x 轴表示 8 个 SHMs 的单因子污染指数，y 轴代表不同的省份，每种颜色的柱条长度表示各省的 SHMs 的单因素污染指数大小。可以看出，部分地区 SHMs 含量超过了土壤环境质量标准，约有 96.8%、87.1% 和 87.1% 的采样点分别未出现 Cr、As 和 Ni 超标。而大约 90% 的采样点存在 Cd 超标，比国家土壤污染调查公报显示的更为严重，这可能与城市化和工业化过程中 HM 的增加有关^[55]。进一步通过 NEMI 研究了 8 种 SHMs 的污染情况，如图 4(b) 所示，分为无污染、轻污染、中度污染和重污染四个层次。可以看出，8 种 SHMs 的 NEMI 关系为 $\text{Cd} > \text{Hg} > \text{Pb} > \text{Zn} > \text{Cu} > \text{Ni} > \text{As} > \text{Cr}$ 。Cd 污染严重，NEMI 超过 3，Pb 和 Hg 为中度污染，因此，Cd 是造成 HM 超标的主要原因^[28]。总体而言，中国南方的污染远高于北方，许多采样点的土壤中 SHMs 含量都高于自然背景值^[56]，中国北方和

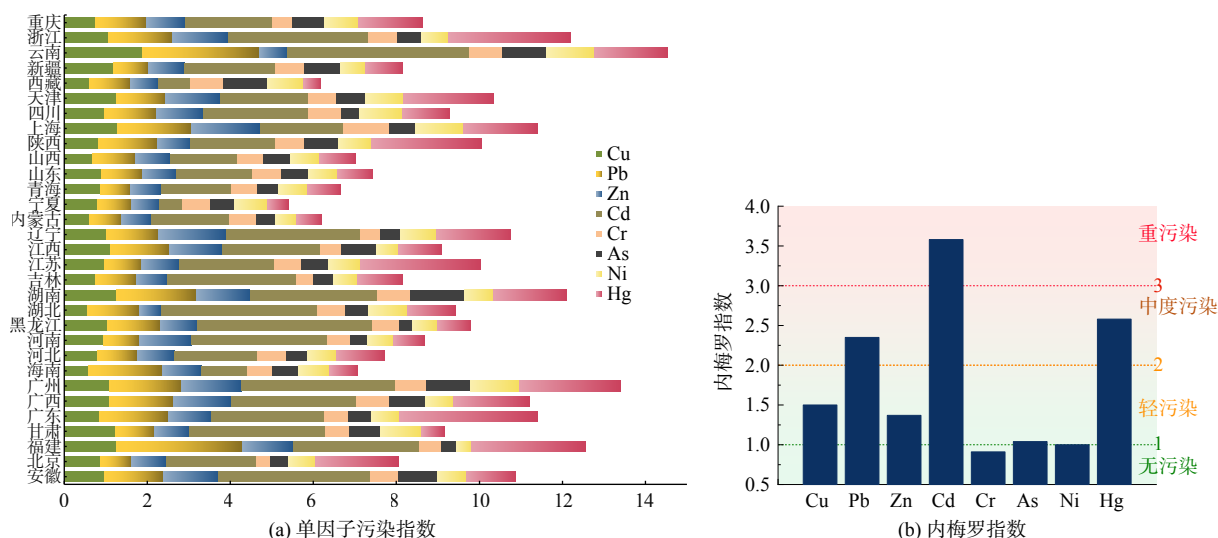


图 4 不同地区 8 种 SHMs 的 2 种指数柱状图

Fig. 4 The single-factor pollution index for each provinces and Nemero index of eight kinds of SHMs

西北地区土壤存在轻度污染, 中国中部和东南部土壤存在中度污染, 这些分布特征与中国人口密度分布线(胡焕庸线)非常相关。研究表明, 人为污染源是导致 HM 在土壤中积累的主要因素, 主要包括农业施肥^[57]、有色金属开采和冶炼^[58]、交通排放^[59] 和大气沉积^[60]。因此, 可能由于胡线东侧人口密度高, 人类活动(如交通和汽车轮胎磨损)造成的人为污染较其他区域多。

2.3 人体输入精细途径分析和健康危害评估

基于改进的健康危害风险评估模型和全国 SHMs 的融合数据, 评估了 8 种非致癌 SHMs 和 5 种致癌 SHMs 的暴露剂量, 精确分析了 SHMs 的人体输入途径, 如图 5(a) 和图 6(a) 所示。对于单一暴露途径, 8 种 SHMs 的总 ADD 和 LADD 的基本趋势均为食物摄入>皮肤接触>吸入。对于单一 SHM, 在多种暴露途径下 Zn、Cu、Pb、Cr、As、Cd、Ni 和 Hg 的总 ADD 和 LADD 依次递减, 其中 Zn 的总非致癌暴露剂量最高($3.78 \times 10^{-3} \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$), Cr 的总致癌暴露剂量最高($1.42 \times 10^{-5} \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$), Hg 的总非致癌和致癌暴露剂量均最低, 分别为 $5.24 \times 10^{-6} \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 和 $1.41 \times 10^{-6} \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 。同时评估了单一暴露途径下 8 种 SHMs 的总 HQ 和 5 种致癌 SHMs 的总 CR, 如图 5(b) 和图 6(b) 所示, 发现 HQ 和 CR 的基本趋势均为食物摄入>皮肤接触>吸入, 其中, 食物摄入对人体暴露的非致癌风险指数(HI)和致癌风险指数(CRI)的贡献分别达到了 88% 和 86%。评估单一 SHMs 在多种暴露途径下的总健康危害风险, HI 排名前三的分别为 As(4.97×10^{-1}), Cr(2.02×10^{-1}) 和 Cd(1.16×10^{-1}), CRI 排名前三的分别为 Cd(3.77×10^{-5})、Cr(1.24×10^{-5}) 和 As(1.20×10^{-5})。

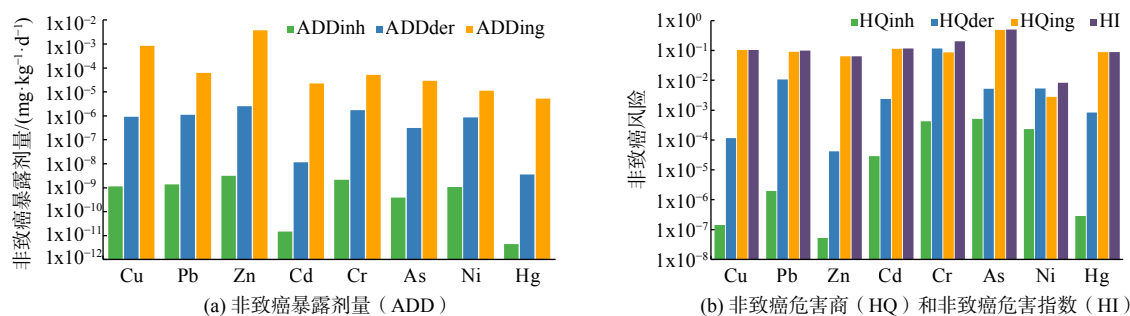


图 5 不同输入途径下 SHMs 的 ADD、HQ 和 HI 柱状图

Fig. 5 Bar graphs of ADD, HQ and HI input the human body through different pathways

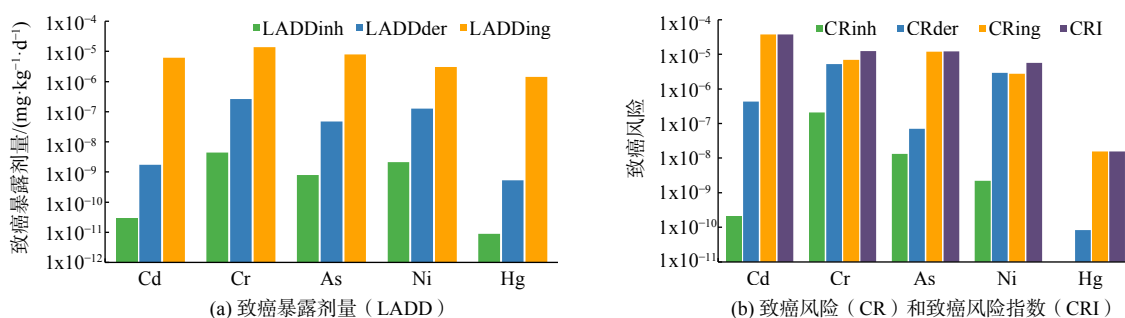


图 6 不同输入途径下 SHMs 的 LADD、CR 和 CRI 柱状图

Fig. 6 Bar graphs of LADD, CR and CRI input the human body through different pathways

此外, 还计算了每种 SHMs 在各行政区域内的健康危害风险, 除湖南地区 As 具有一定的非致癌风险外, 其余 Cu、Pb、Zn、Cd、Cr、Ni 和 Hg 的 HI 均未超过 1, Cd、Cr、As 和 Ni 的 CRI 均在 10^{-6} 至 10^{-4} 范围内, 具有一定致癌风险, 宜引起关注, Hg 的 CRI 小于 10^{-6} 。因此, 按照现行的 HM 暴露风险等级划分标准, 本研究中的 SHMs 暴露造成的健康风险相对较小。Cd、Cr、As 和 Ni 是我国常见的 SHMs 污染物, 可能是造成环境健康危害的主要原因^[61], 其中 Cd 的 CRI 超过其他 SHMs 的 3 倍, 对人体健康的危害风险远高于其他 SHMs, 应作为重点防治的对象, 优先进行控制。

对于单一途径的总暴露风险,研究了不同 SHMs 对同一暴露途径下的非致癌危害商和致癌风险的贡献大小,如图 7(a) 所示。结果表明,8 种 SHMs 的风险贡献具有差异性,Cr 对 HQ_{der} 和 CR_{inh} 的贡献最大:分别为达到 82.7%、93.0%。

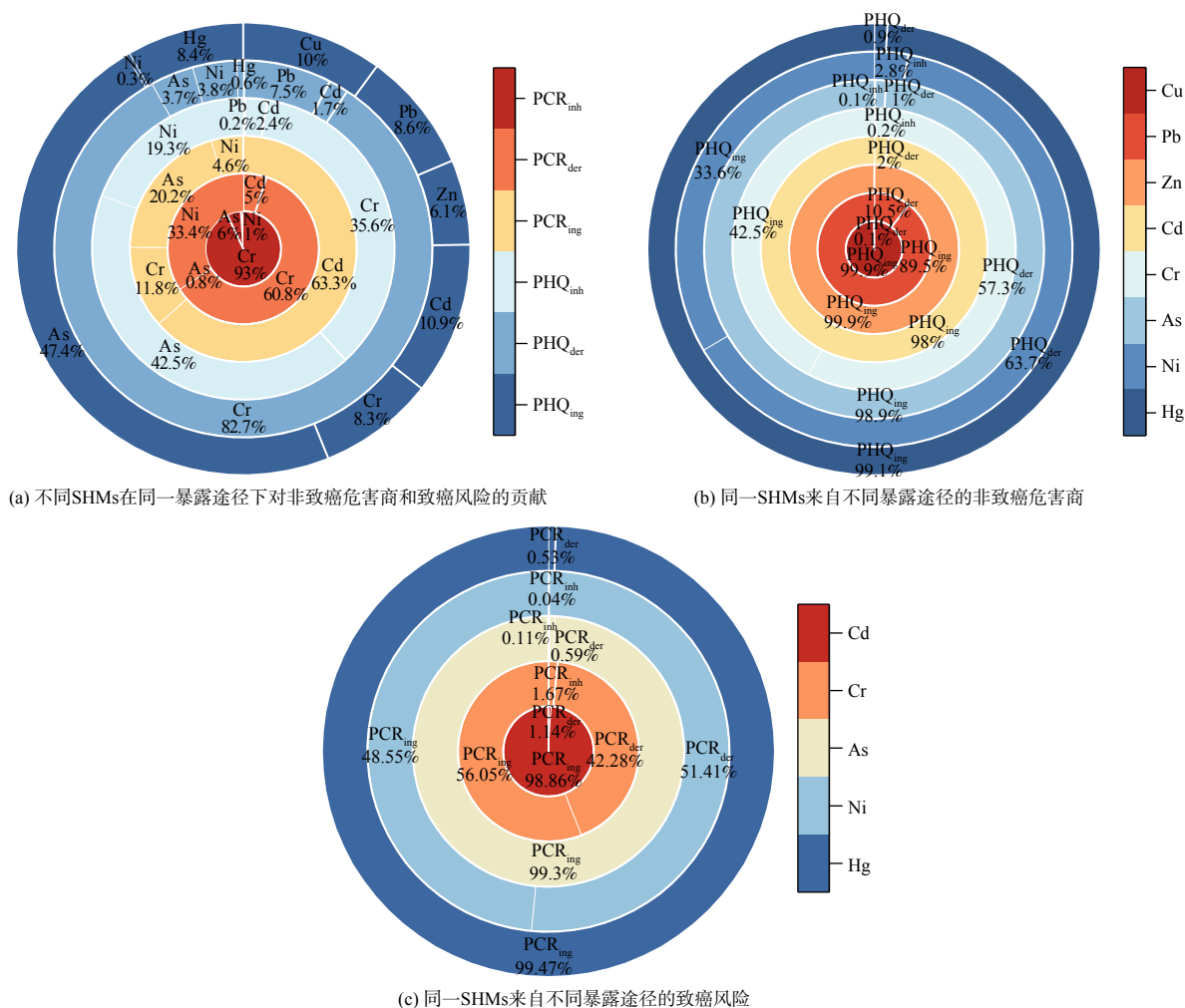


图 7 土壤重金属、暴露途径及人体健康风险之间的贡献关系 (占比小于 1/1 000 的忽略不计)

Fig. 7 The contribution relationship between SHMs, exposure pathways, and human health risks (Elements with ratios less than 1/1 000 were ignored)

对于单一 SHMs 的总暴露风险,研究了不同暴露途径对同一 SHMs 非致癌危害商和致癌风险的贡献大小,如图 7(b) 和 7(c) 所示。结果表明,单一 SHMs 对人体的暴露风险来自吸入途径的最小,来自食物摄入途径的最大,每个途径具有差异性,其中,Cu、Zn、Cd、As 和 Hg 的非致癌风险,以及 Cd、As 和 Hg 的致癌风险,超过 90% 均来自食物摄入途径,特别是 Zn 元素 99.9% 的非致癌危害商来自食物摄入途径,Hg 元素 99.5% 的致癌风险来自食物摄入途径。

进一步分析 SHMs 通过土壤—膳食摄入途径输入人体的健康暴露剂量大小,如图 8 所示。结果显示,各食物链土壤重金属产生的致癌暴露总量、非致癌暴露总量大小关系一致,均表现为肉类>蛋类>谷类>蔬菜>水果>鱼类,每条食物链之间存在显著差异。肉类是 SHMs 通过动物性食物危害人体健康的主要途径,在 Zn 的非致癌食物暴露中肉类食物链输入的最多,贡献达到 49.8%,这可能是 SHMs 的富集在食物链上端的肉类中更为明显^[29];谷物是 SHMs 通过植物性食物危害人体健康的主要途径^[62],在 Cd 的致癌和非致癌膳食暴露中谷类食物链输入的均最多,贡献均达到了 27.6%。因此,食物摄入仍然是 SHMs 污染人体输入的主要途径,而在食物摄入中,肉类和谷类分别是 SHMs 通过动物型食物和植物性食物造成人体膳食暴露的主要食

物链，所以食用受污染的食物带来的人体健康危害已经不容忽视，许多研究也强调了 SHMs 通过食物链的污染和毒性对动物和人体健康的影响，例如，CHEN 等^[63]报道了大米中的 Cd、Pb 和 As 污染。

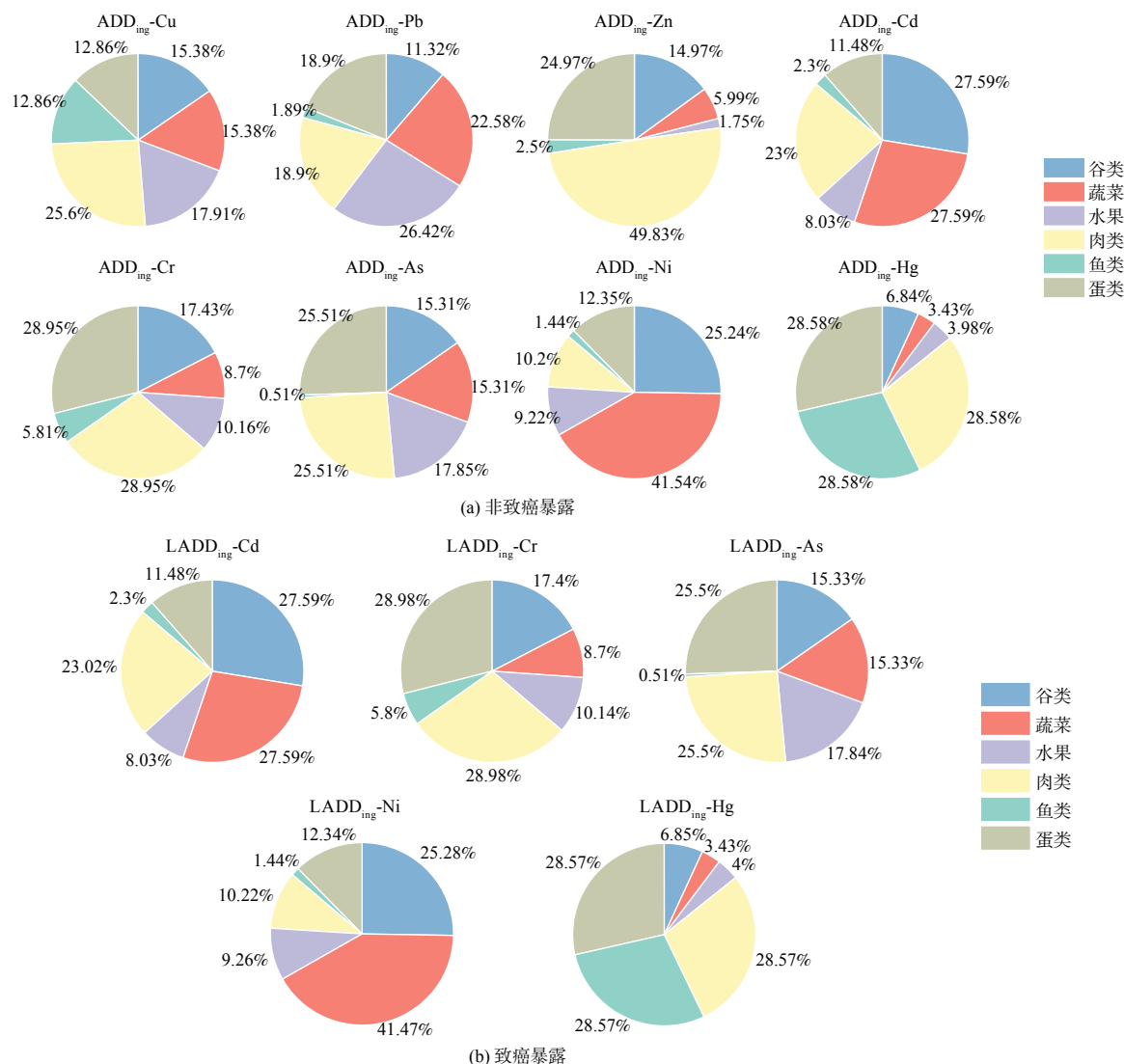


图 8 饮食途径下各种 SHMs 通过不同食物链输入人体的健康暴露剂量占比分析

Fig. 8 Proportion of healthy exposure of various SHMs imported into human body through different food chains

虽然本研究构建了全国尺度的 SHMs 的融合数据集，但这些数值来自于不连续的点测量，研究结果容易存在不确定性，样本数量仍有限，尤其是在像中国这样广阔的地区^[64]。除了 SHMs 的含量，SHMs 输入人体的途径也是影响风险评估的关键因素，本研究通过用食物链替代直接食用土壤，评估了 SHMs 健康危害风险，与传统研究相比，食用食物更符合实际生活的场景，但在实践中，SHMs 输入人体的途径往往不仅限于食物、吸入和皮肤接触，同时食物链也不止 6 个，无法一一列举，导致 SHMs 造成的人体健康危害偏小。此外，由于缺少参数，我们没有计算吸入途径中 Hg 的 CR，而且 Hg 倾向于在生物体内积累形成毒性更大的甲基汞，但本研究没有涵盖这一点，因此 Hg 的人体危害可能被低估了。这些不足需要在未来的研究中加以解决。

3 结论

1) 基于全国尺度构建的多类别混合土壤的 HM 含量融合数据，从整体层面反应了我国的 SHMs 空间分

布和污染情况。中国南方的 SHMs 含量普遍高于中国北方,造成的污染也更严重,北方地区的土壤污染以轻度污染为主,中部地区的土壤污染以中度污染为主。不同 SHMs 的全国分布差异很大,其中 Zn 的全国平均含量 ($84.35 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 是 Hg 的 ($0.12 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 702 倍。Cd 的内梅罗指数超过了 3, 污染严重。

2) 基于本土化和精细化构建的土壤—膳食食物链富集模式,改进了 SHMs 健康风险评估模型,结果能够精准量化 SHMs 造成的人体健康危害,能够识别土壤重金属主要人体输入途径。SHMs 通过食物摄入途径对人体产生的致癌和非致癌暴露最大,是 SHMs 人体输入的主要途径,而吸入途径最少。肉类和谷物是食物摄入途径中造成 SHMs 健康危害的主要来源,通过食物摄入途径造成的 SHMs 健康危害仍然是一个值得关注的问题。

3) 土壤中 Cd、Cr、As 和 Ni 的 CRI 均在致癌风险阈值范围 (10^{-6} 至 10^{-4}) 内,具有一定致癌风险,宜引起关注,因此, Cd、Cr、As 和 Ni 是造成我国环境健康危害的主要原因。虽然一些 SHMs 含量超过了中国的土壤背景值,但 SHMs 污染造成的总体健康危害仍在可接受的范围内。

参考文献

- [1] ONYINYECHI B A, NDIAMAKA A E, NKEIRUKA Z I, et al. Heavy metal mixture exposure and effects in developing nations: an update[J]. *Toxics*, 2018, 6(4): 65-65.
- [2] HE Z, SHENTU J, YANG X, et al. Heavy metal contamination of soils: Sources, indicators, and assessment[J]. *Journal of Environmental Indicators*, 2015, 9: 17-18.
- [3] ALLOWAY B J. Sources of heavy metals and metalloids in soils[J]. *Environmental Pollution*, 2013, 22: 11-50. [4] LUO W, LU Y, GIESY J, et al. Effects of land use on concentrations of metals in surface soils and ecological risk around Guanting Reservoir, China[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2007, 29: 459-471.
- [4] LUO W, LU Y, GIESY J, et al. Effects of land use on concentrations of metals in surface soils and ecological risk around Guanting Reservoir, China[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2007, 29: 459-471.
- [5] FU X B, FENG X W, SOMMAR J, et al. A review of studies on atmospheric mercury in China[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 421-422: 73-81.
- [6] MASINDI V, MUEDI K L. Environmental contamination by heavy metals[M]. 2018.
- [7] WUANA R A, OKIEMEN F E. Heavy metals in contaminated soils: a review of sources, chemistry, risks and best available strategies for remediation[J]. *Isrn Ecology*, 2011, 2011: 1-20.
- [8] TANG M J, HUANG X, LU K D, et al. Heterogeneous reactions of mineral dust aerosol: implications for tropospheric oxidation capacity[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, 17(19): 11727-11777.
- [9] WANG D C, YOU W, ZANG Z L, et al. A three-dimensional variational data assimilation system for aerosol optical properties based on WRF-Chem v4.0: design, development, and application of assimilating Himawari-8 aerosol observations[J]. *Geoscientific Model Development*, 2022, 15(4): 1821-1840.
- [10] JARUP L. Hazards of heavy metal contamination[J]. *British Medical Bulletin*, 2003(1): 167-182.
- [11] MAHURPAWAR M. Effects of heavy metals on human health[J]. *International Journal of Research-Granthaalayah*, 2015, 3(9SE): 1-7.
- [12] LUO X S, DING J, XU B, et al. Incorporating bioaccessibility into human health risk assessments of heavy metals in urban park soils[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 424: 88-96.
- [13] HU J L, HUANG L, CHEN M, et al. Premature mortality attributable to particulate matter in China: source contributions and responses to reductions.[J]. *Environmental Science and Technology*, 2017, 51(17): 9950-9959.
- [14] GUO G H, WU F C, XIE F Z, et al. Spatial distribution and pollution assessment of heavy metals in urban soils from southwest China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2012, 24(3): 410-418.
- [15] RAHMAN M S, KHAN M D H, JOLLY Y N, et al. Assessing risk to human health for heavy metal contamination through street dust in the Southeast Asian Megacity: Dhaka, Bangladesh[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 660: 1610-1622.
- [16] WANG S W, SHI X L. Molecular mechanisms of metal toxicity and carcinogenesis[J]. *Molecular and Cellular Biochemistry*, 2001, 222(1-2): 3-9.
- [17] GORDON J J, QUASTEL J H. Effects of organic arsenicals on enzyme systems[J]. *Biochemical Journal*, 1948, 42(3): 337-350.
- [18] FRIBERG L. Health hazards in the manufacture of alkaline accumulators with special reference to chronic cadmium poisoning[J]. *Acta Medica Scandinavica. Supplementum*, 1950, 240(240): 1-124.
- [19] ALLOWAY B J. Soil processes and the behaviour of metals, Heavy metals in soils. [M]. Blackie Academic and Professional, 1995: 7-28.
- [20] DUAN Q N, LEE J C, LIU Y S, et al. Distribution of heavy metal pollution in surface soil samples in china: A graphical review[J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2016, 97(3): 303-309.
- [21] CHENG H X, LI M, ZHAO C D, et al. Overview of trace metals in the urban soil of 31 metropolises in China[J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, 139: 31-52.
- [22] ZHOU X Y, WANG X R. Impact of industrial activities on heavy metal contamination in soils in three major urban agglomerations of China[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, 230: 1-10.
- [23] YUAN X H, XUE N D, HAN Z G. A meta-analysis of heavy metals pollution in farmland and urban soils in china over the past 20 years[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2021, 101: 217-226.
- [24] LI Z Y, MA Z M, KUIJP T J V D, 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.

- [25] HU B F, SHAO S S, NI H, et al. Current status, spatial features, health risks, and potential driving factors of soil heavy metal pollution in China at province level[J]. *Environmental Pollution*, 2020, 266(Pt 3): 114961.
- [26] HAN Q, WANG M S, CAO J L, et al. Health risk assessment and bioaccessibilities of heavy metals for children in soil and dust from urban parks and schools of Jiaozuo, China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2020, 191: 110157.
- [27] WANG M, GEHRING U, HOEK G, et al. Air pollution and lung function in dutch children: a comparison of exposure estimates and associations based on land use regression and dispersion exposure modeling approaches[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2015, 123(8): 847-851.
- [28] ZHAO H R, XIA B C, FAN C, et al. Human health risk from soil heavy metal contamination under different land uses near Dabaoshan Mine, Southern China[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 417-418: 45-54.
- [29] LI X D, LIU P S, POON C S. Heavy metal contamination of urban soils and street dusts in Hong Kong[J]. *Applied Geochemistry*, 2001, 16(11/12): 1361-1368.
- [30] KHAN S, CAO Q, ZHENG Y M, et al. Health risks of heavy metals in contaminated soils and food crops irrigated with wastewater in Beijing, China[J]. *Environmental Pollution*, 2008, 152(3): 686-692.
- [31] SEZGIN N, OZCAN H K, DEMIR G, et al. Determination of heavy metal concentrations in street dusts in Istanbul E-5 highway[J]. *Environment International*, 2004, 29(7): 979-985.
- [32] YAZDI M, SOLTANZADEH H, BIATI A. Geochemistry of natural and anthropogenic dusts of ray city, tehran, iran[J]. *International Journal of Environmental Monitoring and Protection*, 2015, 2(6): 108-112.
- [33] 尚二萍, 许尔琪, 张红旗, 等. 中国粮食主产区耕地土壤重金属时空变化与污染源分析[J]. *环境科学*, 2018, 39(10): 4670-4683.
- [34] POGGIO L, VRŠČAJ B, HEPPERLE E, et al. Introducing a method of human health risk evaluation for planning and soil quality management of heavy metal-polluted soils—an example from grugliasco(italy)[J]. *Landscape and Urban Planning*, 2008, 88(2-4): 64-72.
- [35] AHMAD J U, GONI M A. Heavy metal contamination in water, soil, and vegetables of the industrial areas in Dhaka, Bangladesh[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2010, 166(1-4): 347-357.
- [36] LU X Z, GU A Q, HUANG C L, et al. Assessments of heavy metal pollution of a farmland in an urban area based on the environmental geochemical baselines[J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2021, 21(7): 2659-2671.
- [37] 纪文贵, 王珂, 蒙建波, 等. 中国土壤重金属污染状况及其风险评价[J]. *农业研究与应用*, 2020, 33(05): 22-28.
- [38] 杨彦, 张梦迪, 陈浩佳, 等. 中国人群暴露参数研究进展[J]. *环境科学研究*, 2022, 35(09): 2205-2215.
- [39] 常静, 刘敏, 李先华, 等. 上海地表灰尘重金属污染的健康风险评估[J]. *中国环境科学*, 2009, 29(05): 548-554.
- [40] LEI B L, CHEN L, HAO Y, et al. Trace elements in animal-based food from Shanghai markets and associated human daily intake and uptake estimation considering bioaccessibility[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, 96: 160-167.
- [41] 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, 9: 822-829.
- [42] LIAO W, ZHAO W B, WU Y, et al. Multiple metal(loid)s bioaccessibility from cooked seafood and health risk assessment[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2020, 42(11): 4037-4050.
- [43] LIU W X, SHEN L F, LIU J W, et al. Uptake of toxic heavy metals by rice (*Oryza sativa* L.) cultivated in the agricultural soil near Zhengzhou city, People's Republic of China[J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2007, 79(2): 209-213.
- [44] 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.
- [45] UCHIDA S, TAGAMI K, HIRAI I. Soil-to-plant transfer factors of stable elements and naturally occurring radionuclides (1) upland field crops collected in japan[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2007, 44(4): 628-640.
- [46] RODRIGUES S, PEREIRA M, DUARTE A, et al. Soil-plant-animal transfer models to improve soil protection guidelines: A case study from Portugal[J]. *Environment International*, 2011, 39(1): 27-37.
- [47] ZHENG J, CHEN K H, YAN X, et al. Heavy metals in food, house dust, and water from an e-waste recycling area in South China and the potential risk to human health[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, 96: 205-212.
- [48] DE VRIES W, RÖMKENS P F A M, SCHÜTZE G. Critical soil concentrations of cadmium, lead and mercury in view of health effects on humans and animals[J]. *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*, 2007, 191: 91-30.
- [49] 吕悦风, 孙华. 浙江某县域耕地土壤重金属空间分异特征、污染评价及来源分析[J]. *农业环境科学学报*, 2019, 38(1): 95-102.
- [50] DENG H, YE Z H, WONG M. Accumulation of lead, zinc, copper and cadmium by 12 wetland plant species thriving in metal-contaminated sites in china[J]. *Environmental Pollution*, 2004, 132(1): 29-40.
- [51] OERTEL A C. Relation between trace-element concentrations in soil and parent material[J]. *Journal of Soil Science*, 2010, 12(1): 119-128.
- [52] ZHENG X J, CHEN M, WANG J F, et al. Ecological risk assessment of heavy metals in the vicinity of tungsten mining areas, southern jiangxi province[J]. *Soil and Sediment Contamination*, 2020, 29(5/8): 665-679.
- [53] LI X Z, ZHAO Z Q, YUAN Y, et al. Heavy metal accumulation and its spatial distribution in agricultural soils: evidence from hunan province, china[J]. *RSC Advances*, 2018, 8(19): 10665-10672.
- [54] ZHANG P Y, QIN C Z, HONG X, et al. Risk assessment and source analysis of soil heavy metal pollution from lower reaches of yellow river irrigation in china[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 633: 1136-1147.
- [55] FOTI L, DUBS F, GIGNOUX J, et al. Trace element concentrations along a gradient of urban pressure in forest and lawn soils of the paris region (france)[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 598: 938-948.
- [56] SHIFAW E. Review of heavy metals pollution in china in agricultural and urban soils[J]. *Journal of Health and Pollution*, 2018, 8(18): 180607.
- [57] ATAFAR Z, MESDAGHINIA A, NOURI J, et al. Effect of fertilizer application on soil heavy metal concentration[J]. *Environm Monit Assess*, 2008, 160: 83-89.
- [58] LI Y, WANG Y B, GOU X, et al. Risk assessment of heavy metals in soils and vegetables around non-ferrous metals mining and smelting sites, Baiyin,

- China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2006, 18(6): 1124-1134.
- [59] HU X, ZHANG Y, LUO J, et al. Bioaccessibility and health risk of arsenic, mercury and other metals in urban street dusts from a mega-city, Nanjing, China[J]. Environmental Pollution, 2011, 159(5): 1215-1221.
- [60] BLAKE L, GOULDING K W T. Effects of atmospheric deposition, soil pH and acidification on heavy metal contents in soils and vegetation of semi-natural ecosystems at Rothamsted Experimental Station, UK[J]. Plant and Soil, 2002, 240: 235-251.
- [61] HU H, JIN Q, KAVAN P. A study of heavy metal pollution in china: current status, pollution-control policies and countermeasures[J]. Sustainability, 2014, 6(9): 5820-5838.
- [62] ZHENG S, WANG Q, YUAN Y Z, et al. Human health risk assessment of heavy metals in soil and food crops in the Pearl River Delta urban agglomeration of china[J]. Food Chemistry, 2020, 316(1-3): 126213.
- [63] CHEN H M, ZHENG C R, TU C, et al. Heavy metal pollution in soils in china: status and countermeasures[J]. Ambio, 1999, 28(2): 130-134.
- [64] KENTEL E, ARAL M. 2D monte carlo versus 2D fuzzy monte carlo health risk assessment[J]. Stochastic Environmental Research and Risk Assessment, 2005, 19(1): 86-96.

(责任编辑: 金曙光)

Health risk assessment of multiple exposure pathways of soil heavy metals pollution in China

CHEN Ketong^{1,2}, CHEN Siyu^{1,2,*}, XUE Jingkai³, HE Jiaqi^{1,2}, JIANG Yunchao¹, WANG Lan⁴, LIU Chuwei², CHEN Yu², ZHANG Runbin^{1,2}, LUO Yuan⁵

1. College of Earth and Environmental Sciences, Lanzhou University, Lanzhou, 730000, China; 2. Key Laboratory of Semi-Arid Climate Change attached to Ministry of Education, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China; 3. School of Environmental Science and Optoelectronic Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China; 4. Key Laboratory of Middle Atmosphere and Global Environment Observation(LAGEO), Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 5. Hunan meteorological observatory, Hunan meteorological bureau, Changsha, 410118, China

*Corresponding author, E-mail: chensiyu@lzu.edu.cn

Abstract Soil heavy metals (SHMs) contamination has been widely concerned owing to its high toxicity, concealment, persistence, and bioaccumulation. Therefore, accurately quantifying the human input pathways and their harm risks of SHMs is crucial to safeguarding people's lives and health. This study reconstructed a multi-category hybrid soil HM (Cu, Pb, Zn, Cd, Cr, As, Ni, and Hg) concentration fusion dataset at the national scale through a combination of multiple sample measurements and literature retrieval, selected 856 references and 563 measurement samples collected in the past three years, and improved a health risk assessment model based on the localized and refined soil-dietary food chain enrichment model. Through three channels of food intake, skin contact, and inhalation, six fine food chains of meat, eggs, grains, vegetables, fruits, and fish, the non-carcinogenic and carcinogenic health risks of SHM were accurately quantified, and the main human input pathways were identified. The results showed that the average concentration of SHM in southern China was generally higher than that in northern China, Zn ($84.35 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) was 702 times higher than Hg ($0.12 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) in soil. Cd was the most common pollutant in China soil, about 90% of total Cd of sampling sites exceeded the latest risk screening values. Food ingestion is the most common pathway for SHMs to enter the human body, followed by skin contact. Among them, food intake contributes 88% and 86% to the Non-carcinogenic Hazard index (HI) and Carcinogenic Risk index (CRI) of human exposure, respectively. It is worth noting that the HI of Cu, Pb, Zn, Cd, Cr, Ni, and Hg did not exceed 1, except for some non-carcinogenic risks of As in Hunan, and Cd, Cr, As, and Ni had acceptable carcinogenic risk for CRI was within the range of threshold values (10^{-4} to 10^{-6}). Among the six fine food chains studied herein, meat and grains are the animal and plant food chains that result in the highest exposure of SHMs to the human body. Overall, the health risks caused by HM-contaminated soil on humans are within acceptable limits. This study will be of value in developing accurate SHMs health risk management strategies and protecting the environment.

Keywords soil; heavy metal; fine pathway; human input; health hazard; risk assessment