

临沂植烟土壤重金属空间分布特征与生态健康风险评价

刘海伟¹, 宗浩², 王海云¹, 刘文涛², 杨举田^{2*}, 石屹¹, 张平德², 刘莉²

(1. 中国农业科学院烟草研究所, 农业部烟草生物学与加工重点实验室, 青岛 266101; 2. 山东临沂烟草有限公司, 山东 临沂 276000)

摘要: 土壤重金属空间分布与风险评价对土壤重金属污染防治具有重要的指导意义。以传统适宜烤烟种植区山东省临沂市为研究对象, 通过布点采样和地理信息系统制图, 分析了土壤重金属的空间分布以及地区、土类间的差异, 采用地积累指数、污染指数分析了土壤重金属富集污染水平, 并对土壤重金属潜在生态风险和人体健康风险进行了评价。结果表明, 临沂植烟耕层土壤重金属 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 平均含量分别为 3.85、0.09、47.56、14.45、0.07、18.04、17.82 和 29.21 mg/kg; 空间分布上, 北部、中部和西南地区土壤重金属含量相对较高; 8 种重金属中仅 Cd 和 Hg 在部分土壤中表现出富集和污染; 土壤重金属潜在生态风险大小顺序为 Hg>Cd>As>Ni>Pb>Cu>Cr>Zn, 其中部分土壤 Cd 和 Hg 对当地环境具有显著潜在生态风险; 而土壤中所有重金属均没有显著的人体健康风险。因此, 临沂植烟土壤存在一定程度的 Cd 和 Hg 污染风险, 应采取措施进行控制。

关键词: 烟草; 烟区; 农田土壤; 潜在生态风险评价; 人体健康风险评价

中图分类号: S572.01

文章编号: 1007-5119 (2018) 04-0041-09

DOI: 10.13496/j.issn.1007-5119.2018.04.006

Spatial Distribution, Potential Ecological and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Surface Soils from Tobacco Cultivating Areas of Linyi, Shandong Province, China

LIU Haiwei¹, ZONG Hao², WANG Haiyun¹, LIU Wentao², YANG Jutian^{2*}, SHI Yi¹, ZHANG Pingde², LIU Li²

(1. Tobacco Research Institute of Chinese Academy of Agricultural Sciences, Key Laboratory of Tobacco Biology and Processing, Ministry of Agriculture, Qingdao 266101, China; 2. Shandong Linyi Tobacco Co., Ltd., Linyi, Shandong 276000, China)

Abstract: The spatial distribution and risk assessment of heavy metals are the foundation of soil remediation. The heavy metals (As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, and Zn) in the surface soils of tobacco (*Nicotiana tabacum* L.) fields in Linyi City of Shandong Province, a traditional tobacco growing area, were collected and determined, and the difference between counties and soil types was analyzed, with spatial distribution maps generated by the geographic information system. The enrichment of heavy metals in soil was assessed by index of geo-accumulation and pollution index, and the risk assessment included potentially ecological risk and health risk assessment. The results showed that, (1) the mean heavy metal concentrations in Linyi tobacco growing soils were 3.85, 0.09, 47.56, 14.45, 0.07, 18.04, 17.82 and 29.21 mg/kg, respectively; (2) the concentrations of heavy metals in soil samples from north, middle and southwest of Linyi were relatively higher than those from other areas; (3) some soil samples were enriched with Cd and/or Hg, which were the only two metals posing a potentially high ecological risk to the local environment, and the order of ecological risk for the heavy metals was Hg>Cd>As>Ni>Pb>Cu>Cr>Zn; (4) The health risk assessment showed no considerable non-carcinogenic or carcinogenic risks for children and adults from these elements.

Keywords: tobacco; tobacco growing area; agricultural soil; potential ecological risk assessment; health risk assessment

基金项目: 公益性行业(农业)科研专项“烟草增香减害关键技术与示范”(201203091); 中国烟草总公司山东省公司科技计划项目“山东浓香低害烟叶研究与开发”(201101)、“临沂烟叶脉间失绿成因分析及综合解决措施研究”(201620); 中国农业科学院科技创新工程“烟草栽培与调制创新团队”(ASTIP-TRIC03)

作者简介: 刘海伟(1981-), 男, 博士, 副研究员, 主要研究方向为农业环境污染治理。E-mail: heaveyliu@163.com。*通信作者, E-mail: lyycyj@163.com

收稿日期: 2018-01-24

修回日期: 2018-06-15

重金属因其高毒性、持久性、生物富集性已成为阻碍农业可持续发展最突出的问题之一。数十年来,随着工业化和城镇化的快速发展,土壤污染程度加重,积聚于土壤中的重金属通过食物链对生态环境和人类健康均造成潜在威胁^[1]。

近年来,国内外均开展了大量的土壤重金属污染水平和风险评价工作^[2]。现有评价方法中,基于土壤背景值的方法有地积累指数法、富集因子法、污染因子法、污染负荷指数法等,基于土壤质量标准的方法有污染指数法等,而潜在生态风险评价则更考虑到了不同重金属毒性的差异^[3]。近来土壤重金属人体健康风险评价的研究也卓然兴起,特别是矿区、工业区、农业区的土壤^[2-4]。人体健康风险评价,包括致癌风险和非致癌风险,是通过针对不同暴露途径的评估进行的。人体对土壤重金属的3种暴露途径有浮尘吸入、经口摄入或皮肤直接接触土壤,有专家认为在评价时经口摄入和接触是主要的暴露途径^[3],然而实际操作中,吸入也经常作为一种直接的暴露途径纳入到风险评价过程中^[4]。近期有学者提出土壤和农产品综合质量指数法^[2],综合考虑土壤背景值、土壤限量标准与农作物限量标准等参比系列,但对于尚没有重金属限量标准颁布的农产品(如烟草)及其产地暂无法使用此方法进行评价。

烟草(*Nicotiana tabacum* L.)是国内外广泛种植的经济作物,近年其质量安全及产地环境生态风险状况也逐渐引起关注。因此,本研究调查采集了山东省临沂市植烟耕层土壤样品,检测了其中砷(As)、镉(Cd)、铬(Cr)、铜(Cu)、汞(Hg)、镍(Ni)、铅(Pb)和锌(Zn)的含量,分析了重金属在土壤中的富集和污染水平,对比了各区域的空间分布差异,并评估了潜在生态风险和人体健康风险水平,对当地烟田土壤重金属控制具有重要的指导意义。

1 材料与方法

1.1 研究区域

临沂市(117°24'~119°11' E, 34°22'~36°13' N),位于山东省东南部,气候属暖温带季风大陆性气候,全年平均气温 13.6℃,年平均降水量 797 mm,年平均日照为 2288 h^[5],在全国烟草种植区划上属于鲁中南低山丘陵烤烟适宜区^[6]。

1.2 样品采集与检测

依据临沂市各县烟草种植面积和烟叶产量的空间分布情况,在市境内9个县共确定了100个典型采样点,其中苍山、费县、莒南、临沭、蒙阴、平邑、郯城、沂南和沂水样点数分别为6、15、10、6、18、7、4、14和20个(图1)。同一田块耕作层(0~20 cm)随机多点采样,组成混合农化土样,经分拣杂物、自然风干、研磨后过100目筛备用。土壤样品加入HNO₃、H₂O₂和HF,微波法消解,用电感耦合等离子质谱(ICP-MS)测定重金属^[7-8]。

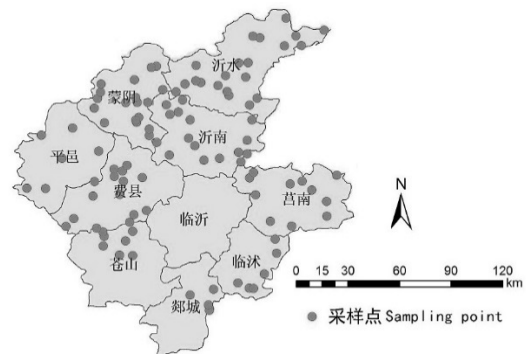


图1 研究区与采样点位置示意图

Fig. 1 Location of the study area and the sampling sites

1.3 评价方法

1.3.1 地积累指数 地积累指数(I_{geo})由MÜLLER^[9]发明:

$$I_{geo} = \log_2 \frac{C_i}{1.5B_i} \quad (1)$$

其中, C_i 是*i*元素土壤含量(mg/kg), B_i 是*i*元素土壤背景值(mg/kg),源于中国环境监测中心主持的国家第一次土壤调查^[10]。按 I_{geo} 值,分7个不同土壤污染程度:<0,无污染;0~1 轻微污染;1~2 轻度污染;2~3 中度污染;3~4 重度污染;4~5 极重污染; 5,极度污染。

1.3.2 污染指数 单因子污染指数 (P_i):

$$P_i = C_i / S_i \quad (2)$$

式中, S_i 为重金属 i 的评价标准 (mg/kg)。本研究采用烟草产地环境技术条件标准 NY/T 852—2004^[11]和土壤环境质量标准 GB 15618—1995 标准^[12]。内梅罗综合污染指数 ($NIPI$) 计算及评价标准参照土壤环境监测技术规范 HJ/T 166—2004^[13] 的方法。

1.3.3 潜在生态风险指数 潜在生态风险公式如下^[14]:

$$EI_i = T_i \frac{C_i}{B_i} \quad (3)$$

其中, EI_i 是元素 i 的单一潜在风险因子; T_i 是毒性反应因子, As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 分别为 10、30、2、5、40、5、5 和 1。 RI 是多元素下整体潜在生态风险指数, 即所有元素 EI_i 的和, 根据 EI 和 RI 值的大小, 生态风险级: $EI < 40$ 或 $RI < 150$, 无风险; $EI 40 \sim 80$ 或 $RI 150 \sim 300$ 轻度风险; $EI 80 \sim 160$ 或 $RI 300 \sim 600$ 中度风险; $EI 160 \sim 320$ 或 $RI 600$ 重度风险; $EI > 320$ 极重度风险。

1.3.4 健康风险评价 人体健康风险评价方法参考美国环保署相关方法^[15-17], 暴露途径考虑 3 种, 因此日平均暴露量 (ADD) 由日均经口摄入量 (ADD_{ing})、日均皮肤接触量 (ADD_{derm}) 和日均呼吸摄入量 (ADD_{inh}) 组成, 各计算公式如下, 其中主要参数见表 1。

$$ADD_{ing} = \frac{C_i \times IngR \times EF \times ED}{BW \times AT \times 10^6} \quad (4)$$

$$ADD_{derm} = \frac{C_i \times SA \times AF \times ABS \times EF \times ED}{BW \times AT \times 10^6} \quad (5)$$

$$ADD_{inh} = \frac{C_i \times APM \times InhR \times EF \times ED}{BW \times AT \times 10^6} \quad (6)$$

非致癌风险用危害商 (HQ) 表示, 公式如下:

$$HQ = \frac{ADD}{RfD} \quad (7)$$

其中参数及数值见表 2。

危害指数 (HI) 用来表征多种化学物质的非致癌潜在风险, 是所有考虑评价化学物质 HQ 的和。若 HI 小于 1, 则基本不会对人体产生显著的健康风险, 反之则存在风险。

致癌风险机率 (CR) 则计算如下:

$$CR = ADD \times SF \quad (8)$$

表 1 健康风险评价中日平均暴露量计算相关参数

Table 1 Input parameters to characterize the ADD values in health risk assessment

参数 Parameter	含义 Description	值 Value		文献来源 Reference
		成人 Adults	儿童 Children	
$IngR$ ($mg \cdot d^{-1}$)	食入率 Ingestion rate per unit time	100	200	[17]
EF ($d \cdot year^{-1}$)	暴露频率 Exposure frequency	350	350	[7]
ED /years	暴露年限 Exposure duration	24	6	[16]
BW /kg	平均体重 Body weight	56.8	15.9	[7]
AT /d	非致癌平均暴露时间 Average time-non cancer risk	$ED \times 365$	$ED \times 365$	[15]
$InhR$ ($m^3 \cdot d^{-1}$)	土壤吸入率 Inhalation rate of soil	20	20	[16]
SA /cm ²	暴露皮肤面积 Exposure skin area	5700	2800	[18]
AF ($mg \cdot cm^{-2} \cdot d^{-1}$)	皮肤附着因子 Skin adherence factor	0.2	0.2	[18]
ABS /unitless	接触吸附因子 Dermal absorption factor	0.001	0.001	[18]
APM ($mg \cdot m^{-3}$)	大气颗粒物含量 Ambient particulate matter	0.0651	0.0651	[19]

表 2 不同暴露途径重金属参考浓度 (RfD) 和致癌斜率 (SF)

Table 2 Reference dose (RfD) and carcinogenic slope factor (SF) of heavy metals in different exposure pathways

重金属 Heavy metal	RfD_{ing} ($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$)	RfD_{derm} ($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$)	RfD_{inh} ($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$)	SF_{ing} ($kg \cdot d^{-1} \cdot mg^{-1}$)	SF_{derm} ($kg \cdot d^{-1} \cdot mg^{-1}$)	SF_{inh} ($kg \cdot d^{-1} \cdot mg^{-1}$)
As	3.00E-04	1.23E-04	4.29E-06	1.50E+00 ^a	1.50E+00 ^a	1.51E+01 ^a
Cd	1.00E-03	2.50E-05	2.86E-06			6.30E+00
Cr	3.00E-03	3.00E-03				4.20E+01 ^a
Cu	4.00E-02	1.20E-02				
Hg	3.00E-04	2.14E-05				
Ni	2.00E-02	5.40E-03				
Pb	1.40E-03	5.24E-04				4.20E-02 ^a
Zn	3.00E-01	6.00E-02				

注: a, 数据来自《污染场地风险评估技术导则 (HJ 25.3-2014)》^[7]。

Note: a, the values were obtained from the Technical Guidelines for Risk Assessment of Contaminated Sites (HJ 25.3-2014)^[7].

其中参数及数值也见表2。 CR 低于 1×10^{-6} 被视为无致癌风险, 而大于 1×10^{-4} 则被认为有显著致癌风险, 介于两者之间通常被认为是可接受风险范围。

1.4 数据分析

应用 IBM SPSS 19.0 进行数据分析, 方差分析采用 Duncan 法 ($p < 0.05$); 空间分布图使用 Arc GIS 10.0 绘制, 插值采用克里金法 (Kriging); 其他图表则使用 Microsoft Excel 2010 或 Origin Pro 8.0 绘制。

2 结果

2.1 土壤重金属含量

临沂植烟土壤重金属含量统计分析结果及山东省土壤重金属背景值列于表3。临沂植烟土壤 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 平均含量分别为 3.85、0.09、47.56、14.45、0.07、18.04、17.82 和 29.21 mg/kg。变异系数 Hg 和 As 较高, 说明地区间分布不均衡。 $K-S$ 检验表示 8 种重金属均正态分布, 峰度和偏度值也证明这一点。重金属作为土壤矿物成分, 成土母质和成土过程对其含量有着基本的影响, 土壤元素背景值能较好反映这种自然因素的影响^[20]。从表3可见, 土壤 As、Cr、Cu、Ni、Pb 和 Zn 平均值均小于山东土壤元素背景值, Cd 平均值接近, 而 Hg 平均值则相当于背景值的近两倍, 说明除自然因素外, 人为因素对土壤中 Hg 和 Cd 的变

异影响较大。

2.2 土壤重金属空间分布

2.2.1 重金属空间分布和区域差异分析 图2和图3是临沂土壤重金属空间分布图和区域含量方差比较, 分别从空间可视化角度和数据角度解析地区间差异, 结果表明, 临沂北部(蒙阴)中部(费县)和西南(苍山)一种或多种重金属含量较高, 东南(郯城、临沭)重金属含量普遍相对较低。

2.2.2 土壤类型差异分析 根据土壤采样点全球定位系统(GPS)信息, 通过世界土壤数据库(Harmonized World Soil Database, HWSD)^[21]查找对应土壤类型信息。发现按土壤诊断系统分类, 临沂植烟土壤主要有石灰性冲积土(FLc)、饱和始成土(Cme)、弱发育淋溶土(LVh)、石灰性淋溶土(LVk)、饱和粗骨土(RGe)、潜育淋溶土(LVg)和石灰性粗骨土(RGc)7个类别。样品数量少于5个的土类不计入。不同土类间元素比较见表4。土壤 Cr、Hg、Pb 和 Zn 不同土壤类别之间无显著差异, As 含量 CMe 显著高于 RGc, Cd 含量 CMe 和 LVh 显著高于 RGc, Cu 含量 FLc 显著高于 LVk、LVg 和 RGc, CMe 也显著高于 RGc, Ni 含量 FLc 和 CMe 显著高于 RGc。因此, 临沂植烟土壤从诊断土类看, 石灰性冲积土(FLc)和饱和始成土(CMe)重金属含量较高, 而石灰性粗骨土(RGc)含量较低。

表3 土壤重金属含量描述性统计分析

Table 3 Descriptive statistical analysis of heavy metal contents in soils

指标 Index	平均值 Mean/ (mg·kg ⁻¹)	最小值 Minimum/ (mg·kg ⁻¹)	最大值 Maximum/ (mg·kg ⁻¹)	中位数 Median/ (mg·kg ⁻¹)	背景值 ^a Background/ (mg·kg ⁻¹)	变异系数 CV/%	峰度 Kurtosis	偏度 Skewness	K-S 检验 ^b K-S test
pH	6.27	4.48	8.48	5.90	7.700	19.82	-1.34	0.36	1.29
As	3.85	0.20	30.52	2.69	9.300	103.85	20.18	3.61	1.81**
Cd	0.09	0.01	0.38	0.08	0.084	72.07	6.16	2.07	1.81**
Cr	47.56	4.38	227.53	44.89	66.000	68.03	10.16	2.45	1.54*
Cu	14.45	3.00	39.26	14.56	20.000	51.61	0.91	0.88	0.91
Hg	0.07	ND	2.14	0.02	0.037	312.68	62.87	7.43	3.75**
Ni	18.04	2.72	73.96	18.10	22.800	60.84	7.09	1.91	1.18*
Pb	17.82	4.99	120.89	14.60	24.200	88.32	23.19	4.35	2.39**
Zn	29.21	5.34	140.46	24.87	70.700	72.36	12.53	3.06	1.68**
V	59.97	13.62	125.22	59.39	81.900	43.53	-0.39	0.36	0.73

注: a, 数据源于国家第一次土壤污染调查^[10]; b, *表示 $p < 0.05$, **表示 $p < 0.01$ 。

Note: a, data origins from the first national soil pollution investigation of China in 1980s; b, * for $p < 0.05$ and ** for $p < 0.01$.

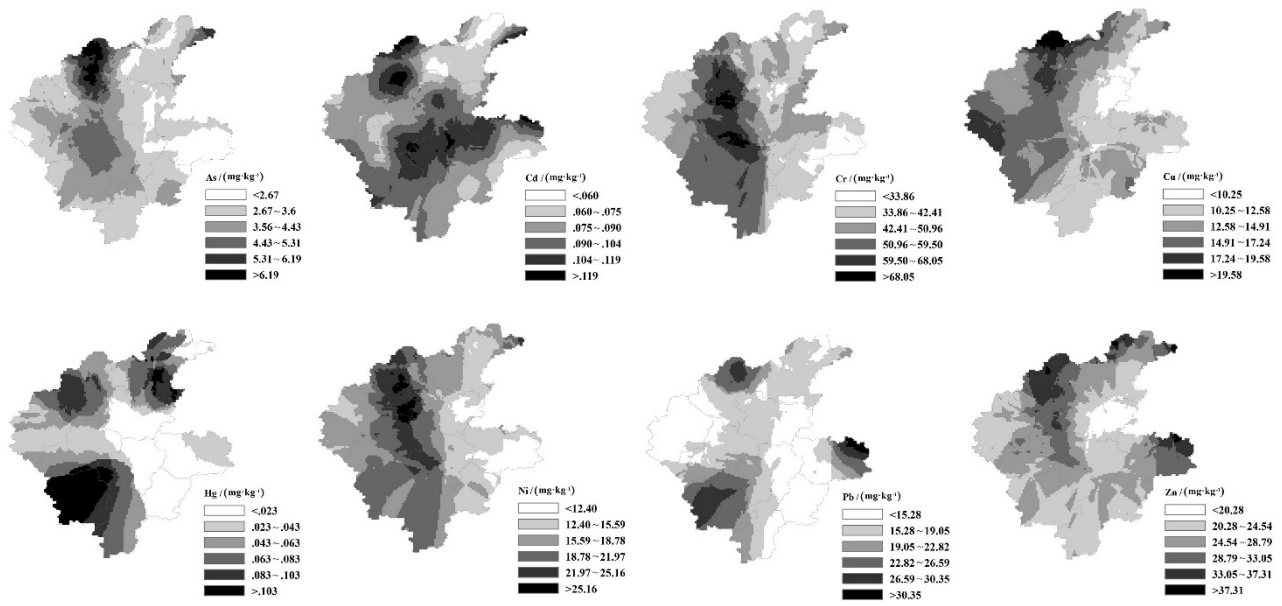
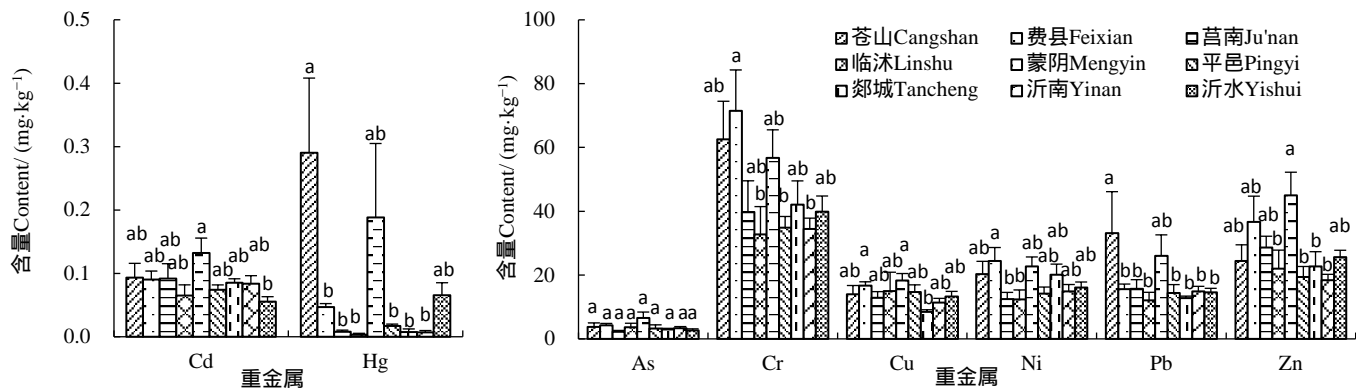


图 2 临沂植烟土壤重金属空间分布图

Fig. 2 Spatial distribution maps of As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, and Zn in soils from the tobacco-growing region of Linyi, China



注：相同字母表示同一元素在不同地点无显著性差异 ($p < 0.05$)。

Note: The same letter indicates that the same element has no significant difference at $p < 0.05$ in different locations.

图 3 临沂各植烟县市土壤重金属含量比较

Fig. 3 Contents of heavy metals in soils from different tobacco-growing counties of Linyi

表 4 临沂不同土壤类型重金属含量差异

Table 4 Contents of heavy metals in different types of soils from the tobacco-growing region of Linyi mg/kg

指标 Index	FLc	CMe	LVh	LVk	RGe	LVg	RGc
n	8	18	18	16	21	7	6
As	4.11±2.32ab	4.79±2.18a	4.06±3.40ab	2.83±4.12ab	3.36±2.93ab	2.40±1.43ab	1.81±0.93b
Cd	0.08±0.04ab	0.12±0.06a	0.11±0.08a	0.07±0.06ab	0.06±0.04ab	0.07±0.03ab	0.05±0.02b
Cr	61.01±32.02a	61.65±32.50a	48.92±47.24a	39.64±24.66a	40.11±28.24a	46.27±19.40a	33.32±27.02a
Cu	18.33±6.88a	16.99±6.88ab	15.69±5.56abc	11.52±6.57bc	14.10±9.26abc	10.83±6.69bc	9.06±4.26c
Hg	0.20±0.29a	0.05±0.07a	0.06±0.09a	0.05±0.04a	0.12±0.46a	0.03±0.02a	0.05±0.10a
Ni	23.39±9.66a	22.38±10.50a	19.48±14.62ab	15.22±9.44ab	15.39±10.64ab	17.47±8.07ab	9.12±4.94b
Pb	19.20±8.82a	17.38±7.27a	19.35±19.68a	19.98±27.52a	15.14±7.94a	15.62±6.89a	10.64±2.73a
Zn	34.71±10.25a	28.71±13.86a	33.16±25.98a	26.82±19.31a	27.74±28.14a	23.85±8.78a	21.42±11.34a

注：每行数据中相同字母表示无显著性差异 ($p < 0.05$)。

Note: The data in the same row marked with the same letter do not differ significantly at $p < 0.05$.

2.3 土壤重金属富集与污染评价

2.3.1 地积累指数 临沂植烟土壤重金属地积累指数数据见图4。依据地积累指数值,超过93%样品的As、Cr、Cu、Ni、Pb和Zn处于未污染状态,而Cd和Hg未污染样品比例则分别为81%和73%,其余样品重金属大多处于轻微和轻度污染,仅7个样品的Hg达到或超过中度污染,从数据分布看属于点源污染。

2.3.2 污染指数 从污染指数(图4)看,As、Cu和Zn均在超过99%的样品中达到清洁水平,其余尚清洁水平,而Pb在全部样品中达清洁水平。Cd、Cr、Hg和Ni在超过94%的样品达到清洁,分别有1、2、2、3个样品达到轻度污染水平,特别是Hg,有一个样品达到重度污染。依据内梅罗综合污染指数,临沂植烟土壤清洁、尚清洁和轻度污染的样品比例分别为93%、3%和3%,另有一个样品因受Hg单项污染影响而达到重度污染水平。

2.4 土壤重金属风险评价

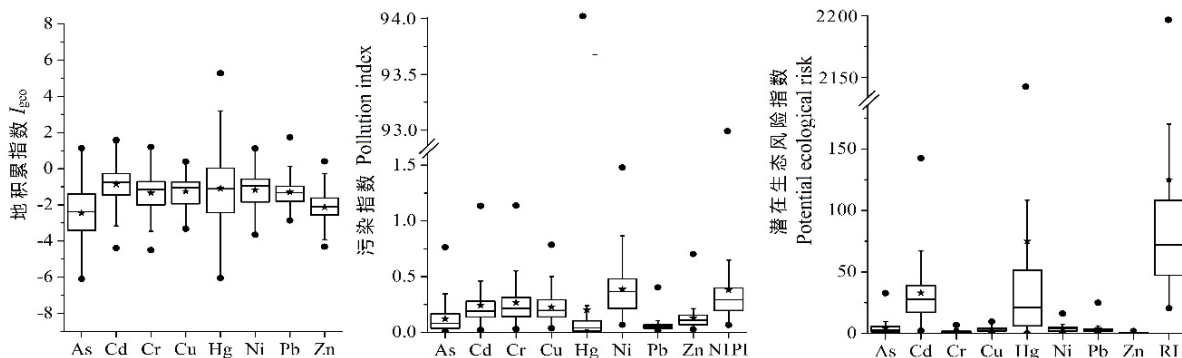
2.4.1 潜在生态风险评价 由图4可知,所有样品As、Cr、Cu、Ni、Pb和Zn的生态风险因子均小于40,说明临沂植烟土壤这6种元素不存在生态风险。Cd生态风险无、轻、中水平的样品比例分别为76%、19%和5%,Hg相应3个水平样品比例分别为71%、

12%和8%,还有5%和4%样品的Hg分别达到重度和极重度生态风险。通过单元生态风险因子计算整体潜在生态风险指数RI(图4),说明临沂植烟土壤有84%样品重金属整体无显著生态风险,10%样品处于轻度风险,4%样品处于中度风险,而有2%样品处于重度生态风险。代杰瑞等^[22]发现,山东东部表层土壤重金属潜在生态风险 $Hg > Cd > As > Pb > Cu > Cr > Zn$,综合潜在风险特征也是主要受Hg和Cd元素制约。

2.4.2 健康风险评价 从表5看出,临沂土壤8种重金属的HQ值和HI值均低于安全水平,说明土壤重金属基本没有非致癌风险。经口摄入风险商 HQ_{ing} 最高,成人和儿童各占HI的比例为79.7%和86.2%,说明经口摄入是土壤重金属人体健康风险的最主要暴露途径,这与此前其他区域研究相一致^[23]。

8种土壤重金属对成人和儿童的危害指数顺序如下:As > Cr > Pb > Ni > Cu > Cd > Hg > Zn。儿童比成人风险大可能是因为儿童的行为更容易摄入重金属,比如吸吮手指等^[24]。

同HI值一样,土壤重金属对儿童的致癌风险也高于成人(表5)。4种致癌重金属的CR值顺序如下:Cr > As > Pb > Cd,其中Cd和Pb对成人和儿童的CR值均低于 10^{-6} ,说明两种重金属不存在



注:图中上下实心圆分别表示最大和最小值,中间五角星代表平均值,距形上中下横线分别表示数据的3个四分位,即75%位数、中位数和25%位数($n=100$)。

Note: Circles at the top and bottom of box plots correspond to the maximum and minimum values, respectively. The pentagram in the box plot is the average value. Horizontal lines at the top, middle, and bottom of the box plot correspond to 75% percentile, median, and 25% percentile, respectively ($n=100$).

图4 临沂植烟土壤地积累指数、污染指数和生态风险指数箱式图

Fig. 4 Indexes of geo-accumulation, pollution index and potential ecological risk of heavy metals in soils of the tobacco-growing region of Linyi

表5 临沂植烟土壤重金属健康风险评价

Table 5 Health risks of heavy metals in soils of a tobacco-growing area in Linyi

重金属 Heavy metal	HQ_{ing}		HQ_{derm}		HQ_{inh}		HI		CR	
	儿童 Children	成人 Adults	儿童 Children	成人 Adults	儿童 Children	成人 Adults	儿童 Children	成人 Adults	儿童 Children	成人 Adults
As	1.55E-01	2.16E-02	1.06E-03	6.02E-04	7.04E-02	1.97E-02	2.26E-01	4.19E-02	7.43E-05	1.11E-05
Cd	1.06E-03	1.48E-04	1.19E-04	6.75E-05	2.41E-03	6.74E-04	3.59E-03	8.90E-04	4.34E-08	1.21E-08
Cr	1.91E-01	2.68E-02	5.35E-04	3.05E-04			1.92E-01	2.71E-02	1.57E-04	4.39E-05
Cu	4.36E-03	6.10E-04	4.07E-05	2.32E-05			4.40E-03	6.33E-04		
Hg	3.01E-03	4.22E-04	1.18E-04	6.74E-05			3.13E-03	4.89E-04		
Ni	1.09E-02	1.52E-03	1.13E-04	6.43E-05			1.10E-02	1.59E-03		
Pb	1.54E-01	2.15E-02	1.15E-03	6.55E-04			1.55E-01	2.21E-02	5.88E-08	1.65E-08
Zn	1.17E-03	1.64E-04	1.64E-05	9.37E-06			1.19E-03	1.74E-04		

显著的人体健康风险，而 As 和 Cr 对成人和儿童的 CR 值介于 1×10^{-4} 和 1×10^{-6} 之间，处于可接受的致癌风险范围内。所以，临沂植烟土壤重金属不存在显著的人体健康风险。而且本文中用于分析的是土壤重金属的全量，土壤中生物有效性含量低于全量，因此人体健康风险评价的结果可能略有高估。

3 讨论

3.1 临沂植烟土壤重金属的污染和风险评价

对土壤重金属污染或风险水平进行评价的各种参数，最初设计目的不尽相同，分析问题的侧重点不同，选择的参比含量也有所差异，因此各个评价参数在某个层面可能具有其独到的优势，在另外的层面可能存在一定的不足。就本文采用的方法而言，地积累指数重在反映重金属分布的自然变化特征及人为影响，但其侧重单一金属。目前应用广泛的污染指数法，能明确地反映出各种污染物单一或共同对土壤环境的影响，但未考虑土壤中各种污染物毒性的差别，只能反映污染的程度而难以反映污染的质变特征^[25]。潜在生态危害指数法综合考虑了生物有效性及相对贡献与地理空间差异等特点，但其加权带有一定的主观性。健康风险评价主要估算污染物与负面健康效应之间的关系，使公众更易于理解土壤污染状况对生物的影响，但对土壤本身污染程度的反映不及其他评价方法，而且根据不同区域的不同情况确定评价参数值尤为重要。各个参数基于的参比系统是其评价侧重点的基础，典型的参比是土壤背景值或土壤环境质量标准。基于土壤背

景值而得到的评价结果在表现环境和生态意义上略显不足^[26]，而单一采用土壤环境质量标准则过分强调其统一性，不能适应我国土壤多样化的特点。所以，在评价过程中针对性地选择不同的参数，可以从多个角度对土壤重金属水平进行评判。本文通过地积累指数可发现 Cd 和 Hg 相较其他元素在临沂植烟土壤中略有富集，通过污染因子分析发现土壤样品重金属基本处于尚清洁水平，而在图 4 中更突显了 Cd 和 Hg 的潜在生态风险及对整体风险的影响，不过临沂植烟土壤重金属并不存在显著的人体健康风险。

3.2 临沂植烟土壤重金属的空间分布规律

土壤类型和土壤利用方式是影响土壤重金属含量的主要因素，究其原因，前者是土壤重金属的自然来源——成土母岩母质和成土过程的反映，后者则是土壤重金属差异产生的人为因素。不同利用方式下对土壤环境的影响存在显著差异^[27]。本文中，临沂作为山东传统烟区，数十年来，烟区肥料、农药等农用物资由当地相关主管部门进行统一采购，施用方式和用量也根据生产规范进行，所以临沂植烟土壤人为影响在区域内造成的变异要远小于其他农业利用类型，因此使得自然因素的影响更显得突出。自然因素中，地形主要是通过引起物质、能量的再分配而间接地作用于土壤的形成过程^[28]。临沂地势西北高东南低，沿沂河、沭河往北的沂沭断裂带在地势上将临沂分成西北、东南两部分，因此在图 2 重金属空间分布中也能明显看出一条纵贯南北的分界线的存在，分界线以东的莒南、临沭和位

于南部冲积平原的郯城土壤重金属含量显著较低,特别是 Cr、Hg、Ni、Pb,在空间分布上可能受地质自然因素的影响相对较强。沂山、蒙山、尼山 3 个山脉在临沂境内西部由北而南排列,中间有河道分割,也对土壤重金属北部、中部和西南 3 个重点富集区域的形成起到了决定性作用。

3.3 临沂植烟土壤重金属的来源和控制重点

区别于工业和城市土壤重金属来源的复杂性和矿区土壤的单一性^[3,29-30],农田土壤重金属主要来源为母质、大气沉降、肥料和灌溉水等。本项目组前期^[8]通过主成分分析与聚类分析发现山东植烟土壤 Cr 和 Ni 含量变异主要受成土母质控制,As、Cd、Cu、Pb 和 Zn 的变异主要受人为工农业活动控制,而 Hg 的变异主要受大气沉降控制;土壤重金属外源贡献的计算还发现,山东植烟土壤重金属主要外源是大气沉降,其次是肥料,而控制的重点是 Cd 和 Hg,与本研究通过生态和健康风险分析得到的结论是一致的。

另外,本项目组对临沂烟叶重金属检测分析表明,烟叶对 Cd 的平均富集系数为 8.8,而对其他重金属的平均富集系数均小于 1,说明烟草是 Cd 的单一富集植物且在叶部富集,这与项目组室内培养试验的结论也是一致的^[31-32]。正因如此,Cd 是临沂烟草重金属研究和控制的重中之重。

4 结 论

对山东省临沂市植烟土壤重金属 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 的污染与风险评价结果表明,临沂植烟土壤 93% 样品重金属整体处于清洁水平,仅 Cd 和 Hg 存在轻度富集或污染;84% 土壤样品重金属整体无显著生态风险,10% 样品处于轻度风险;土壤中 8 种重金属生态风险大小顺序为 Hg>Cd>As>Ni>Pb>Cu>Cr>Zn,且对成人和儿童均无显著的健康风险;Cd 和 Hg 是植烟土壤今后重点控制的重金属元素,特别是临沂北部、西南和中部部分地区。

参考文献

[1] LUO L, MA Y, ZHANG S, et al. An inventory of trace element inputs to agricultural soils in China[J]. Journal of

Environmental Management, 2009, 90(8): 2524-2530.

[2] 王玉军,吴同亮,周东美,等. 农田土壤重金属污染评价研究进展[J]. 农业环境科学学报, 2017, 36(12): 2365-2378.

WANG Y J, WU T L, ZHOU D M, et al. Advances in soil heavy metal pollution evaluation based on bibliometrics analysis[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2017, 36(12): 2365-2378.

[3] LI Z, MA Z, 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.

[4] HU W, HUANG B, HE Y, et al. Assessment of potential health risk of heavy metals in soils from a rapidly developing region of China[J]. Human & Ecological Risk Assessment An International Journal, 2016, 22(1): 211-225.

[5] 张磊,赵海军,潘婕,等. 临沂市旅游气候资源分析与评价[C]//中国气象学会. 第 32 届中国气象学会年会, 2015: 252-256.

ZHANG L, ZHAO H J, PAN J, et al. Analysis and Evaluation of Tourism Climatic Resources in Linyi[C]// China Meteorological Society. The proceedings of 32nd annual meeting of China Meteorological Society, 2015: 252-256.

[6] 王彦亭,谢剑平,李志宏. 中国烟草种植区划[M]. 北京: 科学出版社, 2010: 61.

WANG Y T, XIE J P, LI Z H. Regionalization of tobacco planting in China[M]. Beijing: Science Press, 2010: 61.

[7] 环境保护部科技标准司. 污染场地风险评估技术导则: HJ 25.3—2014[S]. 北京: 中国环境出版社, 2004: 16-17.

Department of Science, Technology and Standards, Ministry of Environmental Protection, PRC. Technical guidelines for risk assessment of contaminated sites: HJ 25.3-2014[S]. Beijing: China Environment Press, 2004: 16-17.

[8] LIU H, ZHANG Y, ZHOU X, et al. Source identification and spatial distribution of heavy metals in tobacco growing soils in Shandong province of China with multivariate and geostatistical analysis[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2017, 24: 5964-5975.

[9] MÜLLER G. Schwermetalle in den Sedimenten des Rheins-Veränderungen seit 1971[J]. Umschau in Wissenschaft und Technik, 1979, 79 (24): 778-783 (in German).

[10] 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990: 329-380.

China National Environmental Monitoring Centre (CNEMC). The background values of elements in soils of China[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1990: 329-380.

[11] 农业部. 烟草产地环境技术条件: NY/T 852—2004 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2004: 2.

Ministry of Agriculture, PRC. Environmental requirement for growing area of tobacco: NY/T

- 852-2004[S]. Beijing: China Standard Press, 2004: 2.
- 1995[S]. 北京：中国标准出版社，1995：2.
- State Environmental Protection Administration of China. Environmental quality standard for soils: GB 15618—1995[S]. Beijing: China Environment Press, 1995: 2.
- [13] 国家环境保护总局. 土壤环境监测技术规范 HJ/T 166—2004 [S]. 北京：中国环境出版社，2004：16-17.
- State Environmental Protection Administration of China. The technical specification for soil environmental monitoring: HJ/T 166-2004[S]. Beijing: China Environment Press, 2004: 16-17.
- [14] HAKANSON L. An ecological risk index for aquatic pollution control: a sedimentological approach[J]. Water Research, 1980, 14(8): 975-1001.
- [15] US EPA. Risk assessment guidance for superfund. Volume I. Human health evaluation manual (Part A)[M]. Washington, DC: Office of Solid Waste and Emergency Response, 1989.
- [16] US EPA. Exposure factors handbook (Final report, 1997)[M]. Washington, DC: Office of Solid Waste and Emergency Response, 1997.
- [17] US EPA. Baseline human health risk assessment[M]. Washington, DC: Office of Solid Waste and Emergency Response, 2001.
- [18] US EPA. Supplemental guidance for developing soil screening levels for Superfund sites[M]. Washington, DC: Office of Solid Waste and Emergency Response, 2002.
- [19] ZHOU X, CAO Z, MA Y, et al. Concentrations, correlations and chemical species of PM_{2.5}/PM₁₀ based on published data in China: Potential implications for the revised particulate standard[J]. Chemosphere, 2016, 144: 518-526.
- [20] 陈怀满. 土壤—植物系统中的重金属污染[M]. 北京：科学出版社，1996.
- CHEN H M. Heavy metals pollution in soil-plant system[M]. Beijing: Science Press, 1996.
- [21] FAO/IIASA/ISRIC/ISSCAS/JRC. Harmonized World Soil Database (version 1.2)[DB]. FAO, Rome, Italy and IIASA, Laxenburg, Austria, 2012.
- [22] 代杰瑞, 胡雪平, 王增辉. 土壤重金属污染及潜在生态风险评价——以山东半岛蓝色经济区为例[J]. 安全与环境学报, 2013, 13(1): 134-137.
- DAI J R, HU X P, WANG Z H. Characteristics of heavy metals pollution in soil and potential ecological risk assessment—a case study of Blue Economic Zone of Shandong Peninsula[J]. Journal of Safety and Environment, 2013, 13(1): 134-137.
- [23] XIAO Q, ZONG Y, LU S. Assessment of heavy metal pollution and human health risk in urban soils of steel industrial city (Anshan), Liaoning, Northeast China[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2015, 120: 377-385.
- [24] ZHAO L, XU Y, HOU H, et al. Source identification and health risk assessment of metals in urban soils around the Tanggu chemical industrial district, Tianjin, China[J].
- [12] 国家环境保护总局. 土壤环境质量标准 GB 15618—Science of the Total Environment, 2014: 468-469, 654-662.
- [25] 范拴喜, 甘卓亭, 李美娟, 等. 土壤重金属污染评价方法进展[J]. 中国农学通报, 2010, 26(17): 310-315.
- FAN S X, GAN Z T, LI M J, et al. Progress of Assessment Methods of Heavy Metal Pollution in Soil[J]. Chinese Agricultural Science Bulletin, 2010, 26(17): 310-315.
- [26] 刘凤枝, 师荣光, 徐亚平, 等. 耕地土壤重金属污染评价技术研究——以土壤中铅和镉污染为例[J]. 农业环境科学学报, 2006, 25(2): 422-426.
- LIU F Z, SHI R G, XU Y P, et al. The study of assessment technology for farm land soil heavy metal pollutions[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2006, 25(2): 422-426.
- [27] HU Y, CHENG H. Application of stochastic models in identification and apportionment of heavy metal pollution sources in the surface soils of a large-scale region[J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(8): 3752-3760.
- [28] 张凤荣. 土壤地理学[M]. 北京：中国农业出版社，2002.
- ZHANG F R. Soil geography[M]. Beijing: China Agriculture Press, 2002.
- [29] 戴彬, 吕建树, 战金成, 等. 山东省典型工业城市土壤重金属来源、空间分布及潜在生态风险评价[J]. 环境科学, 2015, 36(2): 507-515.
- DAI B, LYU J S, ZHAN J C, et al. Assessment of sources, spatial distribution and ecological risk of heavy metals in soils in a typical industry-based city of Shandong Province, Eastern China[J]. Environmental Science, 2015, 36(2): 507-515.
- [30] 范明毅, 杨皓, 黄先飞, 等. 典型山区燃煤型电厂周边土壤重金属形态特征及污染评价[J]. 中国环境科学, 2016, 36(8): 2425-2436.
- FAN M Y, YANG H, HUANG X F, et al. Chemical forms and risk assessment of heavy metals in soils around a typical coal-fired power plant located in the mountainous area[J]. China Environmental Science, 2016, 36(8): 2425-2436.
- [31] LIU H, WANG H, MA Y, et al. Role of transpiration and metabolism in translocation and accumulation of cadmium in tobacco plants (*Nicotiana tabacum* L.)[J]. Chemosphere, 2016, 144: 1960-1965.
- [32] 刘海伟, 石屹, 梁洪波. 烟草和卷烟中重金属迁移分配的研究进展[J]. 中国农业科技导报, 2013, 15(2): 153-158.
- LIU H W, SHI Y, LIANG H B. Research progress on transfer and distribution of heavy metal in tobacco and cigarette[J]. Journal of Agricultural Science and Technology, 2013, 15(2): 153-158