



农业资源与环境学报

中文核心期刊
中国科技核心期刊

JOURNAL OF AGRICULTURAL RESOURCES AND ENVIRONMENT

欢迎投稿 <http://www.aed.org.cn>

赣州市南部地区土壤有害元素空间分布及健康风险评价

李少坤, 王少军, 张志, 陈晓倩, 王磊, 雷天赐

引用本文:

李少坤, 王少军, 张志, 陈晓倩, 王磊, 雷天赐. 赣州市南部地区土壤有害元素空间分布及健康风险评价[J]. 农业资源与环境学报, 2022, 39(4): 673–682.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13254/j.jare.2021.0084>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

典型喀斯特地区土壤重金属累积特征及环境风险评价

刘南婷, 刘鸿雁, 吴攀, 罗广飞, 李学先

农业资源与环境学报. 2021, 38(5): 797–809 <https://doi.org/10.13254/j.jare.2020.0434>

西藏一江两河流域中部地区土壤重金属生态风险评价

王伟鹏, 卢宏伟, 冯三三

农业资源与环境学报. 2020, 37(6): 970–980 <https://doi.org/10.13254/j.jare.2019.0421>

基于田块尺度土壤重金属空间分布及其生态风险评价

王伟全, 王雪, 高珊, 孙涛, 孙约兵

农业资源与环境学报. 2022, 39(3): 475–484 <https://doi.org/10.13254/j.jare.2021.0071>

云南会泽铅锌冶炼厂周边土壤重金属污染特征及健康风险评价

刘小燕, 陈棉彪, 李良忠, 胡国成, 黄建洪, 刘珊, 张丽娟, 于云江

农业资源与环境学报. 2016, 33(3): 221–229 <https://doi.org/10.13254/j.jare.2015.0306>

宁夏贺兰县土壤重金属分布特征及其生态风险评价

周勤利, 王学东, 李志涛, 王夏晖, 何俊, 季国华

农业资源与环境学报. 2019, 36(4): 513–521 <https://doi.org/10.13254/j.jare.2018.0191>



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

李少坤, 王少军, 张志, 等. 赣州市南部地区土壤有害元素空间分布及健康风险评估[J]. 农业资源与环境学报, 2022, 39(4): 673–682.

LI S K, WANG S J, ZHANG Z, et al. Spatial distribution and health risk assessment of toxic elements in the soils of southern Ganzhou City [J]. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, 2022, 39(4): 673–682.



开放科学 OSID

赣州市南部地区土壤有害元素空间分布及健康风险评估

李少坤¹, 王少军^{1*}, 张志², 陈晓倩³, 王磊⁴, 雷天赐⁴

(1. 中国地质大学(武汉)地理与信息工程学院, 空间规划与人地系统模拟研究中心, 武汉 430074; 2. 中国地质大学(武汉)地球物理与空间信息学院, 武汉 430074; 3. 长江大学地球科学学院, 武汉 430100; 4. 中国地质调查局武汉地质调查中心, 武汉 430205)

摘要: 土壤有害元素污染具有严重的环境危害和风险。本研究以生态脆弱区——江西省赣州市于都县和赣县南部为研究区域, 系统采集表层土壤样品 230 个并测定 Hg、As、Cu、Ni、Pb、Cr、Cd、Zn 8 种有害元素的含量, 基于最小/最大自相关因子分析(MAF)和序贯高斯模拟(SGS)构建多元地统计模拟模型, 分析土壤有害元素空间分布规律, 并运用改进的人体健康风险指数模型评估了儿童和成人致癌风险及非致癌风险程度。结果表明: 除 Ni、Zn 外, 土壤中其余 6 种元素含量均超过江西省土壤背景值, 但所有元素的平均值均低于《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》中土壤风险筛选值。8 种有害元素基本呈岛状分布格局, As、Cr 这 2 种元素的高值区基本上分布在铁山垄镇、王母渡镇。人体健康风险评估结果显示, 除了 As 的儿童非致癌风险指数(HI)大于规定的阈值 1 外, 儿童和成人非致癌风险指数均小于 1, 总致癌风险指数(TCR)均介于 10^{-6} ~ 10^{-4} 之间, 说明土壤有害元素污染导致的两类健康风险处于可接受范围。

关键词: 土壤有害元素; 地统计模拟; 健康风险评估; 赣州市; 生态脆弱区

中图分类号: X53; X820.4 文献标志码: A 文章编号: 2095-6819(2022)04-0673-10 doi: 10.13254/j.jare.2021.0084

Spatial distribution and health risk assessment of toxic elements in the soils of southern Ganzhou City

LI Shaokun¹, WANG Shaojun^{1*}, ZHANG Zhi², CHEN Xiaoqian³, WANG Lei⁴, LEI Tianci⁴

(1. School of Geography and Information Engineering, China University of Geosciences, Research Center for Spatial Planning and Human-Environment System Simulation, Wuhan 430074, China; 2. Institute of Geophysics & Geomatics, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China; 3. School of Geosciences, Yangtze University, Wuhan 430100, China; 4. Wuhan Center of China Geological Survey, Wuhan 430205, China)

Abstract: Pollution owing to toxic elements in soil poses serious environmental hazards and risks. In this study, 230 topsoil samples were collected from Yudu County and southern Ganxian County, which are ecologically fragile areas. The content of Hg, As, Cu, Ni, Pb, Cr, Cd, and Zn in soil was analyzed. Based on the minimum/maximum autocorrelation factor analysis and sequential Gaussian simulation, the multivariate geostatistical simulation technique was utilized to analyze the spatial distribution of toxic elements in soil. The human health risk index model was developed to assess the carcinogenic and noncarcinogenic risks for children and adults. The results showed that except for Ni and Zn, the content of the other six elements was higher than the background values of soil in Jiangxi Province; however, the average values of all elements were lower than the soil risk screening values defined in the *Soil Environmental Quality Standards for Soil Pollution Risk Control in Agricultural Land (Trial)*. The island pattern of distribution was observed in eight toxic elements, and the high value areas of As, and Cr, were mainly distributed in Tieshanlong, and Wangmudu towns. The results of human health risk assessment

收稿日期: 2021-02-04 录用日期: 2021-03-11

作者简介: 李少坤(1996—), 男, 宁夏石嘴山人, 硕士研究生, 从事土壤污染调查与评价研究。E-mail: 2979164449@qq.com

*通信作者: 王少军 E-mail: 740877917@qq.com

基金项目: 中国地质调查局项目(DD20190540)

Project supported: Project of China Geological Survey(DD20190540)

<http://www.aed.org.cn>

showed that except for the As noncarcinogenic hazard index (HI) for children being greater than the specified threshold of 1, the other element noncarcinogenic HI in both children and adults was less than 1. The total carcinogenic risk index was between 10^{-6} and 10^{-4} . This indicates that the two types of health risks caused by soil toxic element pollution are of acceptable levels.

Keywords: soil toxic metals; geostatistical simulation; health risk assessment; Ganzhou City; ecologically fragile area

土壤是人类赖以生存的重要自然资源,是陆地生态系统中极其重要的组成部分^[1],随着工业化和城市化进程的加快,工业“三废”超标排放、交通运输、化肥农药的使用以及各种人类活动已成为威胁土壤生态环境的关键因素^[2]。土壤有害元素具有毒性高、不可降解的特点,有害元素不仅会对土壤本身及周边的土壤产生危害,还会通过经口摄入、皮肤接触以及呼吸等方式进入人体,并威胁人体健康,引发各种健康问题^[3],如肾脏功能障碍、内分泌失调、生殖功能障碍和癌症等。因此,土壤有害元素污染问题已成为社会各界关注与研究的热点。

赣州市作为“一带一路”的重要节点城市,是江西省南部重要的生态屏障,同时也是稀土、钨矿资源富集的地区。受特殊的地质背景控制,赣州市土壤本身具有元素背景值高的属性,加之工矿企业等人类活动的巨大影响,研究区有害元素来源机制及影响因素极为复杂^[4]。赣州市南部地区具有土壤有害元素范围广、毒性强、潜在健康风险高等特征,对原本脆弱的白垩纪红层为主要区域的生态系统和人体健康构成潜在危害。因此,研究有害元素的空间异质性以及潜在的人体健康风险可为保障区域粮食安全和防范人类健康风险提供科学依据。

长期以来,克里格和随机模拟是地统计学研究的两大主流方法^[5]。邹勇军等^[6]运用普通克里格法解析出赣州市8种土壤有害元素的空间分异规律;杨涛^[7]基于克里格法绘制了赣南钨矿区周边农田土壤7种有害元素分布图;雍太健等^[8]应用克里格插值法分析了赣州市土壤有害元素空间分布及地球化学等级。但是,克里格法存在“平滑效应”的缺点。随机模拟中的序贯高斯协同模拟(SGCS)可以刻画出多变量的线性模型的空间关系,实现多个土壤有害元素变量的协同模拟^[9],但是SGCS存在数据计算量大、运行时间慢的缺点。序贯高斯模拟(SGS)解决了克里格平滑效应的缺点,还可以刻画出多变量的空间分异性^[10]。最小/最大自相关因子(MAF)是基于主成分分析的多元统计算法^[11],能够将多个土壤有害元素变量分解为独立成分。将MAF与SGS相结合可很好地实现复杂的

多元地统计模拟。

有害元素的健康风险评价方法通常使用美国环保署(USEPA)提出的人体健康暴露风险模型^[12],如杨泉等^[13]对赣州市土壤有害元素污染特征与健康风险进行评价,表明Cd中度污染,且存在一定潜在健康风险,但在应用中需要结合实际情况调整模型参数。本研究考虑到我国居民的行为习惯,采用2019年生态环境部发布的《建设用地土壤污染风险评估技术导则》(HJ 25.3—2019)中的人体健康暴露参数,可以更精准地评价人体健康风险。

前人的研究证实,江西省赣州地区存在一定程度的土壤有害元素污染问题^[6-7,13],但鲜见生态脆弱区——于都县和赣县南部的红层盆地土壤有害元素系统全面的研究。鉴于此,本研究系统采集了表层(0~20 cm)土壤230个样品,测定了土壤Hg、As、Cu、Ni、Pb、Cr、Cd、Zn的含量,构建了基于MAF和SGS的多元地统计模拟模型,运用改进的人体健康风险指数模型评估了儿童和成人致癌风险及非致癌风险,以期准确掌握生态脆弱区内各乡镇土壤重金属污染的程度,构建土壤空间数据库系统,为管理部门解决土壤环境安全利用、污染源阻断及污染土壤的修复提供决策支持。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于素有“世界钨都”和“稀土王国”之称的赣州市下辖的于都县和赣县西南部,包括12个乡镇,总面积1 800 km²(图1)。研究区属于亚热带湿润季风性气候,年平均气温18.8℃。研究区西部地层主要属于晚元古界震旦系、寒武系,燕山期早期中侏罗世、中期晚侏罗世花岗岩,中部多为白垩系上统地层,中西部地质状态较为稳定,生态环境良好,而东部的地层状态较不稳定,包含了寒武系的上中下统、泥盆系的上统、石炭系的下统、侏罗系下统、二叠系的上统和下统、白垩系上统以及晚元古界震旦系上统,地质年代的跨度非常广,处于地层新老交替的地带则较为活跃,生态脆弱度低。整体来看,地质背景的控制使得研究区内的生态脆弱区占较大面积。土壤类型以

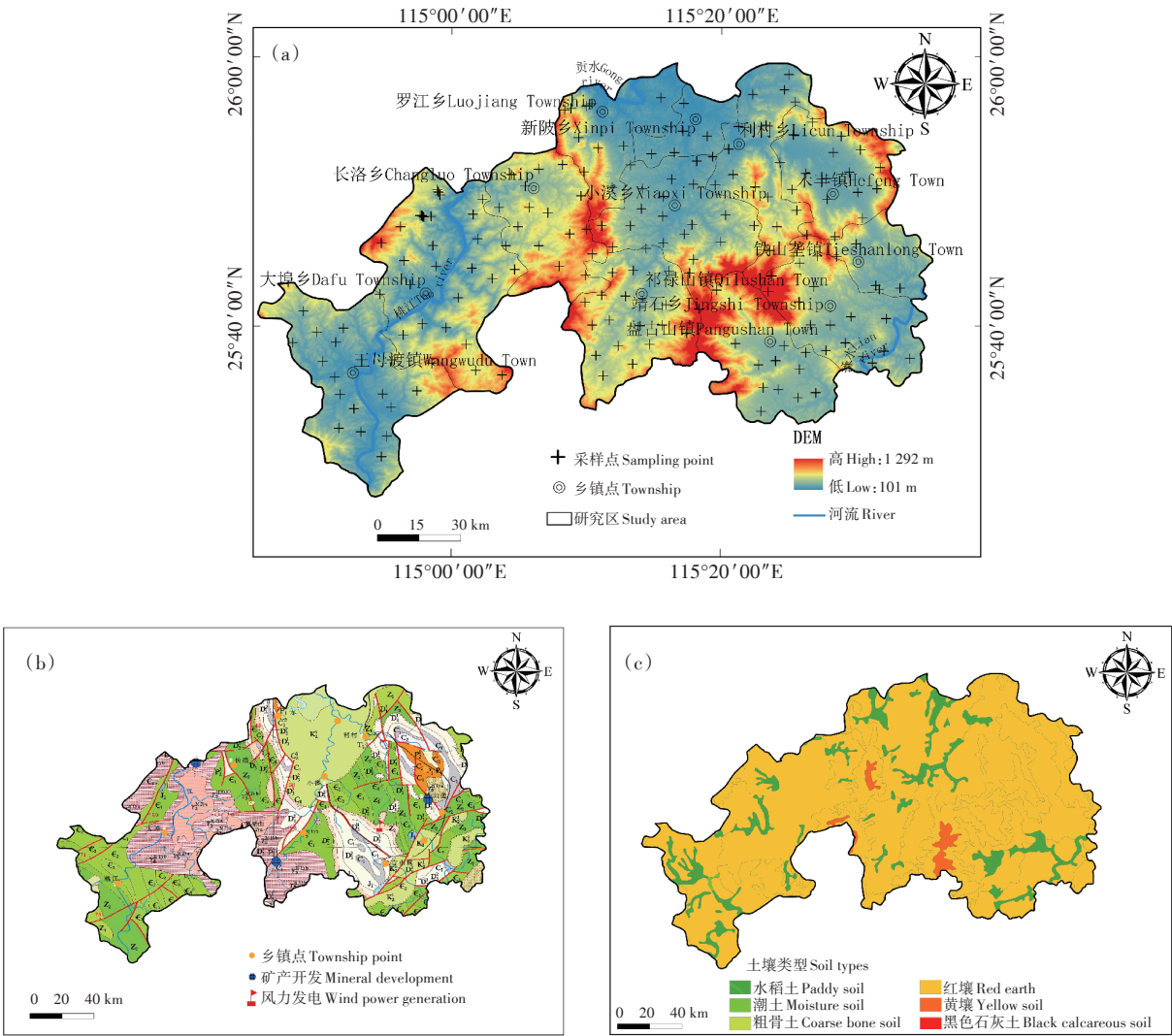


图1 研究区域采样点分布及地质、土壤类型

Figure 1 Sampling point distribution and geological and soil type of the study area

红壤和水稻土为主,经济作物以水稻和花生为主,特色农作物以脐橙、水蜜桃、大红李等水果和竹林为主。采砂、捕鱼、养殖业及工业发达,主要的矿产资源有钨、锡、铋、锌、稀土、金、银、铜等金属矿,非金属矿主要有煤、滑石、萤石、石英、云母、高岭石等24种,钨矿储量尤为丰富,分布着大、中型钨矿7处,是赣州市重要的矿产资源基地。

1.2 土壤样品采集与测定

2019年8月11—21日严格按照《土壤环境监测技术规范》(HJ/T 166—2004)进行采样。采用网格形采样法,采集230个表层(0~20 cm)土壤样品。现场采样阶段,在使用奥维软件定位的同时,根据周围的地形选取采样点。对每个采样点的坐标和该点周围的环境进行记录和描述,记录该点的位置以及土壤A

层的土壤类型、颜色、湿度、质地等信息。采样时,将含杂质的2 cm的土壤表层土去掉,并采集新鲜土壤样本3袋,充分混合后约1 000 g,剔除土样中的杂质,自然晾晒,研磨过20目(0.84 mm)筛,过筛后的样本质量300 g左右,全部通过200目(0.074 mm)孔径筛,用pH计(水土比为2.5:1)测定土壤样品,然后采用HNO₃-HCl-HF-HClO₄法消煮。在样品收集、运输、加工等过程中,确保每个样品密封,在每个样品箱内安装湿度计,并做好防污染措施。

核工业二三〇研究所对8种有害元素进行了分析测试。土壤Hg含量参照GB/T 22105.1—2008中的原子荧光光谱法(HG-AFS)测定,土壤As、Cd含量参照GB/T 14506.30—2010中的等离子体质谱法(ICP-MS)测定,土壤Cr、Cu、Ni、Pb、Zn含量参照HJ 780—

2015 中的 X 射线荧光光谱法测定。分析方法的准确度和精密度采用中国计量科学研究院标准土壤样品 (GBW 系列) 均进行分析检验, 按比例随机检查和异常点剔除均进行严格的质量控制, 最终标准土样的回收率为 95.21%~103.37%, 确保结果真实可靠。测试过程中, 所有样品均进行 3 次平行试验和空白试验。平行样标准偏差均在 9% 以内。

1.3 数据分析

1.3.1 基于 MAF 和 SGS 的多元地统计分析

(1) MAF 基本原理

MAF 是以空间自相关和主成分分析为基础而形成的多元统计方法, 主要应用于空间网格图像的多通道数据处理领域^[14], 而对土壤有害元素的研究较少, 本研究尝试将其应用于研究区土壤有害元素多元地统计分析。其原理是求解原始变量的自相关因子矩阵并按照空间自相关大小进行排列。

(2) 多元地统计模拟步骤

MAF 分解的前提是数据符合正态分布, 将 i 个样品、 j 个有害元素构成的数据矩阵 $X(i \times j)$ 进行高斯变换, 形成符合正态分布的矩阵, 并且将 $X(u) = \delta[F(u)]$ 函数展开为埃尔米特多项式^[15]。对 $\delta[Y(f)]$ 的反函数进行原始变量标准化。埃尔米特多项式展开如下:

$$\delta[F(u)] = \sum_{i=1}^m \varphi_i \times H_i[Y(f)] \quad (1)$$

使用 R 软件包中的 Rcpp 和 RGeostats 模块可以很好地求解原始变量的自相关因子矩阵, 并可以将高斯变量数据转换成相同数量的独立成分。

对每个自相关因子进行变异函数计算, 拟合得到理论变异函数。

采用 SGS 对各个独立成分进行 1 000 次模拟^[16], 创建研究区内网格节点的随机路径, 每个网格节点只被访问一次, 在每个节点处: ①利用反距离权重累计分布

函数 (CCDF) 的参数 (包括均值和方差); ②从 CCDF 中随机获得一个点的模拟值, 然后将其添加到网格节点; ③重复步骤 ①和 ②, 直到每个网格节点全部被赋予模拟值。

运用公式 (1) 实现 MAF 的自相关因子模拟值-高斯变量模拟值-原始变量模拟值的全部逆转换过程。

1.3.2 人体健康风险评估

健康风险评估是用定量的方法来评估人体的危害。根据 USEPA 推荐的健康风险评价模型, 结合《建设用土壤污染风险评估技术导则》(HJ 25.3—2019) 中的人体健康暴露参数 (表 1), 分别对儿童和成人的非致癌性和致癌性风险进行危害识别、接触评估、剂量反应评估。土壤有害元素通过经口摄入、呼吸吸入、皮肤接触这三种途径进入体内并对儿童和成年人产生危害。上述三种暴露剂量可以通过平均每日剂量进行估算^[17-18], 其中, 成人的寿命采用 2019 年《江西统计年鉴》中的男女平均值 74 a, 三种途径日平均暴露剂量计算公式如下:

$$CDD_{ing} = \frac{C \times IngR \times EF \times ED}{BW \times AT} \times 10^{-6} \quad (2)$$

$$CDD_{inh} = \frac{C \times InhR \times EF \times ED}{PEF \times BW \times AT} \times 10^{-6} \quad (3)$$

$$CDD_{derm} = \frac{C \times SA \times SL \times ABF \times EF \times ED}{BW \times AT} \times 10^{-6} \quad (4)$$

式中: C 为表层土壤重金属含量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

(1) 非致癌风险

USEPA 规定 1 为风险阈值, 当 $HI \leq 1$ 时, 无非致癌风险, 不会产生非致癌效应; 当 $HI > 1$ 时, 暴露人群具有潜在的非致癌风险, 计算公式如下:

$$HQ_i = \frac{CDD_{ij}}{RfD_{ij}} \quad (5)$$

$$HI = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \frac{CDD_{ij}}{RfD_{ij}} \quad (6)$$

表 1 健康风险评估模型暴露参数

Table 1 Exposure parameters of health risk assessment model

参数 Parameter	含义 Meaning	单位 Unit	儿童 Children	成年人 Adult	参数 Parameter	含义 Meaning	单位 Unit	儿童 Children	成年人 Adult
$IngR$	每日摄取率	$\text{mg} \cdot \text{d}^{-1}$	200	100	$AT_{\text{致癌}}$	致癌平均暴露时间	d	26 280	26 280
$InhR$	每日吸收频率	$\text{m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$	7.5	14.5	PEF	灰尘释放因子	$\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1}$	1.36×10^9	1.36×10^9
EF	暴露频率	$\text{d} \cdot \text{a}^{-1}$	350	350	SA	暴露皮肤表面积	cm^2	2 800	5 700
ED	暴露持续时长	a	6	24	SL	皮肤的黏着系数	$\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$	0.20	0.07
BW	平均体质量	kg	15.9	56.8	$ABF_{\text{非致癌}}$	非致癌皮肤吸收系数	—	0.001	0.001
$AT_{\text{非致癌}}$	非致癌平均暴露时间	d	2 190	9 125	$ABF_{\text{致癌}}$	致癌皮肤吸收系数	—	0.01	0.01

注: “—” 为无数据。下同。

Note: “—” indicates no data. The same below.

式中: HI 表示有害元素非致癌风险总指数; HQ_i 表示非致癌有害元素 i 的单项健康风险指数; CDD_{ij} 表示非致癌有害元素 i 的第 j 种暴露途径的日平均暴露剂量; RfD_{ij} 表示非致癌有害元素 i 的第 j 种暴露途径的参考剂量。

(2)致癌风险

当 $TCR<10^{-6}$ 时,认为不会对人体产生致癌风险;当 $10^{-6}\leq TCR\leq 10^{-4}$ 时,认为致癌风险处于可接受的水平;当 $TCR>10^{-4}$ 时,认为致癌风险不可接受,会对人体健康产生致癌风险。计算公式如下:

$$CR_{ij} = CDD_{ij} \times SF_{ij} \tag{7}$$

$$TCR = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m CR_{ij} \tag{8}$$

式中: CR_{ij} 表示有害元素 i 的第 j 种暴露途径的致癌风险指数; CDD_{ij} 表示致癌有害元素 i 的第 j 种暴露途径的日平均暴露剂量; SF_{ij} 表示致癌有害元素 i 的第 j 种暴露途径的斜率因子; TCR 为有害元素所有途径所引

起的总致癌风险指数。各有害元素的 RfD_{ij} 和 SF_{ij} 的参考值见表2。

2 结果与讨论

2.1 描述性统计分析

描述性统计分析结果(表3)表明,研究区pH平均值为4.46,呈酸性,研究区土壤有害元素As、Cd、Hg、Cr、Ni、Cu、Zn、Pb的平均含量分别为24.83、0.11、0.07、66.28、20.20、25.12、52.67、39.46 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。所有元素的含量平均值均低于《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》(GB 15618—2018)筛选值。除Ni、Zn外,土壤中其余6种有害元素含量均超过江西省背景值^[18],分别为背景值的1.73、1.02、1.32、1.45、1.13、1.30倍。但是8种元素的最大值均超过背景值,As、Cd、Cu、Pb的最大值超过农用地土壤污染风险筛选值。其中Pb、Cu的最大值分别为农用地风险

表2 土壤有害元素不同暴露途径的参考剂量(RfD)和斜率因子(SF)
Table 2 RfD and SF of different toxic elements exposure pathways

有害元素 Toxic element	$RfD/(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1})$			$SF/(\text{kg}\cdot\text{d}\cdot\text{mg}^{-1})$		
	经口摄入 Oral intake	呼吸吸入 Inhalation	皮肤接触 Skin exposure	经口摄入 Oral intake	呼吸吸入 Inhalation	皮肤接触 Skin exposure
Cd	1×10^{-3}	1×10^{-5}	1×10^{-5}	6.1	6.3	—
Cr	3×10^{-3}	2.68×10^{-5}	6×10^{-5}	—	42	—
Pb	3.5×10^{-3}	3.52×10^{-3}	5.25×10^{-4}	—	—	0.008 5
Zn	3×10^{-1}	3×10^{-1}	6×10^{-2}	—	—	—
Cu	4×10^{-4}	4×10^{-2}	1.2×10^{-3}	—	—	—
Ni	2×10^{-2}	2.1×10^{-2}	5.4×10^{-3}	—	—	—
As	3×10^{-4}	3×10^{-1}	1.23×10^{-4}	1.5	15.1	3.66
Hg	3×10^{-4}	8.57×10^{-5}	2.1×10^{-5}	—	—	—

表3 研究区土壤有害元素及pH的描述性统计
Table 3 Descriptive statistics of toxic elements and pH in the study area

项目 Item	As/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Cd/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Hg/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Cr/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Ni/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Cu/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Zn/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	Pb/ ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	pH
最小值	3.08	0.02	0.03	9.25	2.95	2.99	23	9.12	3.58
最大值	114.92	0.83	0.15	120	50.3	153	188	271	5.83
平均值	24.83	0.11	0.07	66.28	20.20	25.12	52.67	39.46	4.46
标准差	26.81	0.12	0.03	26.47	10.34	19.90	28.90	37.96	0.49
偏度	1.70	3.83	0.76	-0.34	0.96	4.00	2.45	3.99	0.08
峰度	1.93	18.08	0.14	-0.39	0.68	23.61	7.39	20.18	-0.43
K-S 检验(P)	<0.01	<0.01	0.098	0.171	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.025
变异系数(%)	108	109	43	40	51	79	55	96	0.03
江西省土壤重金属背景值 ^[18]	14.3	0.108	0.053	45.8	21.5	22.2	81.1	30.4	—
农用地土壤污染风险筛选值(pH≤5.5)	40	0.3	1.3	150	60	50	200	70	—

筛选值的3.87、3.06倍。土壤背景值本身是自然状态下的有害元素的含量,研究区中的土壤有害元素已经超出背景值,意味着在人类活动的影响下土壤有害元素的聚集呈现增强趋势。土壤有害元素在酸性条件下多以游离态或水化离子态存在^[13],随着时间的推移,土壤有害元素富集程度逐渐加强^[19],这说明土壤受自然源重金属污染的影响。参照文献方法^[20]对变异系数(CV)进行分级,8种有害元素的变异系数变化范围在40%~109%之间,均属于高度变异(CV>36%)。特别是As、Cd的变异系数超过其他元素,说明这两种元素分布较不均匀,可能受人类活动的影响较大。K-S检验表明土壤中Cr、Hg符合正态分布,其余6种元素则不符合正态分布,经过对数变换后使之全部符合正态分布。研究区的土壤pH变异系数为0.03,表明土壤的理化性质较为稳定。

将赣州市与其他城市的土壤有害元素含量进行比较^[21-26],结果如表4所示,赣州市As元素的含量高于其他城市,与抚州市的差值高达23.66 mg·kg⁻¹;Cd的平均含量与三明市相同,但低于其他地区;Cr的平均含量仅低于衡阳市、中山市;Cu的平均含量低于南昌市、中山市,与广州市、桂林市较为接近;Hg的平均含量明显低于其他城市,与瑞金市较为接近;Ni的平均含量与桂林市较为接近;Pb的平均含量仅高于抚州市、瑞金市,低于其他地区;Zn的平均含量明显低于其他地区。综上所述,研究区的As平均含量高于其他地区,Cr、Cu、Ni、Pb的平均含量在所有地区中处于中等水平,Hg、Zn、Cd的平均含量与其他地区相比水平较低。广州、中山、南昌等大城市的土壤有害元素的富集可能与城市快速发展和产业集聚有关。

2.2 空间分析

对研究区土壤有害元素数据高斯变换之后进行MAF分析,得到符合正态分布的8个自相关因子(ICs)。计算8个自相关因子的变异函数,利用SGS做空间分布模拟后,将因子模拟结果转化为原始变量数据,使用ArcGIS将有害元素含量模拟结果可视化。在自相关因子的理论变异函数拟合过程中,运用多个变异函数的嵌套可以更精准地刻画变量的空间结构^[27]。模型结构将块金效应和2个球状模型对ICs进行拟合,见表5。IC1、IC2、IC3、IC4、IC5均可用块金效应和2个球状模型拟合;IC6和IC8只能用块金效应和一个球状模型拟合,另外1个球状模型不符合,因而被剔除。IC6和IC8的块金值/总方差值均低于0.25,说明样本之间的空间相关性较强;其余6个ICs的块金值/总方差值在30%~80%之间,说明样本之间的空间相关性呈中度。

图2为研究区土壤中8种有害元素及pH的空间分布图。总体来说,这些有害元素在土壤中的空间分布呈岛状分布格局,尤其是As、Ni这两种重金属的分布较为相似(图2a、2e),高值区基本一致。As高值区分布在王母渡镇的东北部、铁山垅镇西部,低值区主要分布在新陂乡、利村乡白垩纪红层盆地(图2a)。Cd主要分布在铁山垅镇西部、大埠乡西北部(图2b)。Hg高值区分布在利村乡北部、禾丰镇东部、铁山垅镇东南部,Hg的含量在整个研究区都偏高(图2c),高值区分布在铁山垅镇大型的稀土钨业集团公司附近,稀土钨业集团采用的是“浮选-磁选-重选”联合工艺,生产过程中会产生废弃物,因而导致Hg含量较高。Pb的高值区主要集中于禾丰镇东部(图

表4 研究区与其他城市土壤中8种元素的平均含量(mg·kg⁻¹)

Table 4 Average content of eight elements in the research area and other cities(mg·kg⁻¹)

城市 City	Hg	As	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn	Cd	参考文献 Reference
赣州市	0.07	24.83	66.28	25.12	20.20	39.46	52.67	0.11	本研究
衡阳市	0.23	18.95	89.30	—	26.24	52.18	—	0.33	[21]
抚州市	0.31	1.17	22.60	—	—	2.65	—	0.26	[22]
三明市	0.09	6.80	21.60	19.50	5.98	55.10	57.20	0.11	[23]
瑞金市	0.10	10.05	43.79	—	15.86	28.51	—	0.13	[24]
桂林市	0.13	14.30	52.30	23.50	21.30	43.20	115.00	0.36	[25]
广州市	0.70	10.90	64.70	24.00	12.35	58.00	162.60	0.30	[17]
中山市	0.20	17.60	77.20	56.90	38.30	50.70	131.30	0.40	[17]
南昌市	0.64	18.09	57.57	43.13	25.05	45.68	101.36	0.21	[26]
中国土壤背景值	0.07	11.20	61.00	22.60	26.90	26.00	74.20	0.10	[18]

表5 自相关因子的理论变异函数拟合参数

Table 5 Parameters of variogram fitting of autocorrelation factors

自相关因子 Autocorrelation factor	模型结构 Model structure	块金值 Nugget value	结构1 Structure 1		结构2 Structure 2		块金值/总方差 Nugget value/total variance
			基台值 Abutment	变程 Variation/m	基台值 Abutment	变程 Variation/m	
IC1(Pb)	块金效应+球状结构+球状结构	0.42	0.26	4 687	0.37	18 726	0.53
IC2(Cd)	块金效应+球状结构+球状结构	0.32	0.09	7 439	0.42	22 678	0.42
IC3(Cr)	块金效应+球状结构+球状结构	0.35	0.28	11 256	0.27	34 621	0.37
IC4(Hg)	块金效应+球状结构+球状结构	0.34	0.26	62 425	0.24	21 351	0.36
IC5(As)	块金效应+球状结构+球状结构	0.28	0.22	6 342	0.41	22 345	0.32
IC6(Cu)	块金效应+球状结构	0.63	0.17	17 684			0.20
IC7(Ni)	块金效应+球状结构+球状结构	0.60	0.19	5 631	0.45	45 923	0.53
IC8(Zn)	块金效应+球状结构	0.21	0.84	18 098			0.22

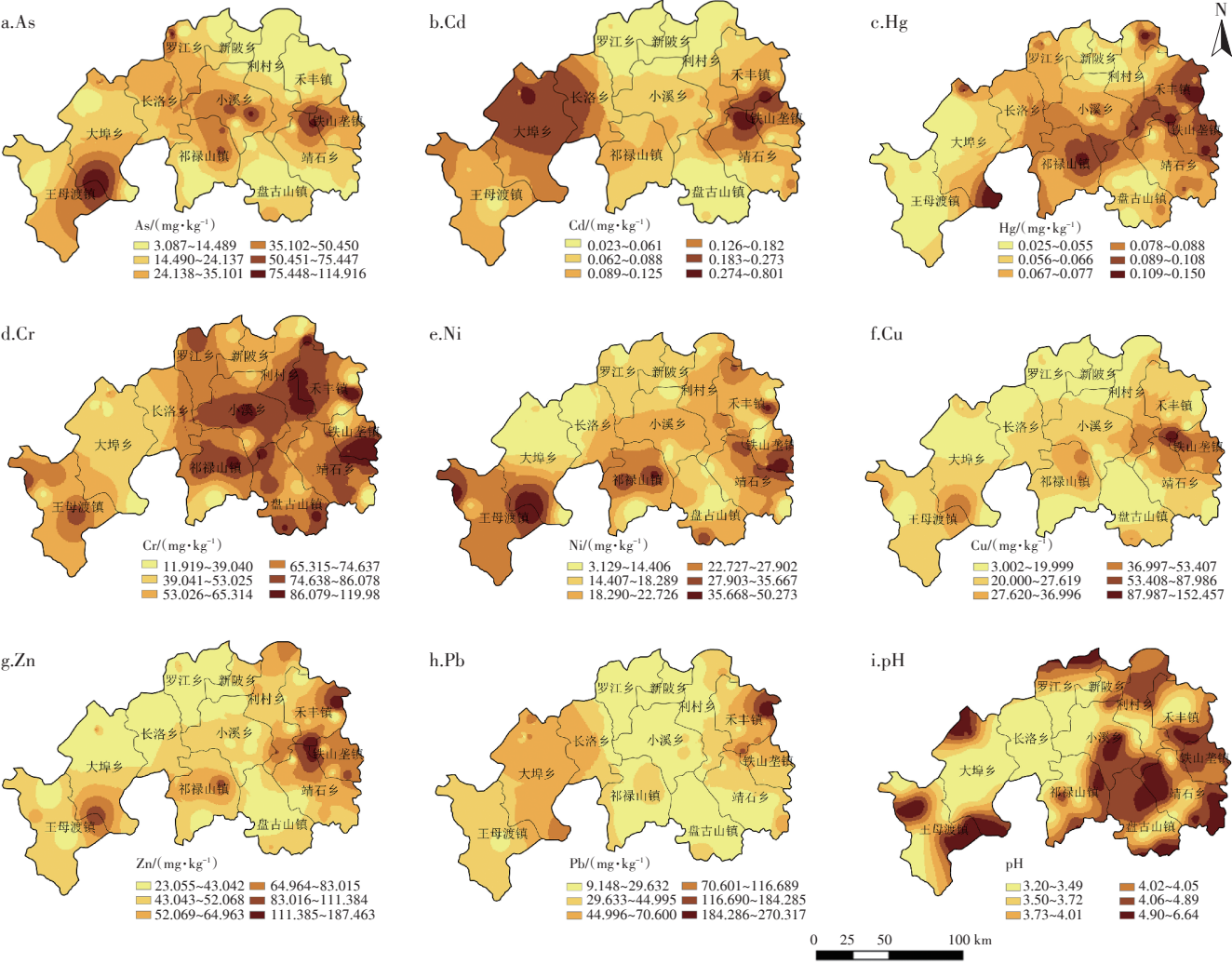


图2 研究区土壤有害元素及pH的空间分布

Figure 2 Spatial distribution of toxic elements and pH in the study area

2h)。Cr含量在除大埠乡外的其他乡镇均较高(图2d)。Ni高值区主要分布在王母渡镇东部(图2e)。Cu、Zn含量在铁山垄镇偏高,其他乡镇普遍偏低(图

2f、2g)。pH高值区集中在小溪乡、祁禄山镇、盘古山镇、靖石乡、铁山垄镇、禾丰镇。这些有害元素的空间分布表明,轻度污染地区主要分布在利村乡、新陂乡、

罗江乡盆地附近。

2.3 人体健康风险评估

将研究区内的土壤有害元素污染划分为非致癌、致癌两种健康风险类型。计算采样点上有毒元素的非致癌风险暴露剂量(CDD)、单项非致癌风险指数(HQ)和总非致癌风险指数(HI), 3种暴露途径的 CDD 、 HQ 均值表现为经口摄入>皮肤接触>呼吸吸入。儿童和成人的 HI 平均值大小均表现为 $As>Cu>Cr>Pb>Ni>Hg>Zn>Cd$ 。Cr、Cu、Pb虽未超过USEPA标准($HI>1$), 但风险值已接近阈值1, 因此环保部门应对该元素给予重视。研究发现, 三种途径下儿童的非致癌风险均高于成人, 8种有害元素在3种暴露途径下的非致癌风险值中, 只有As对儿童的非致癌风险值大于阈值1($HI=1.005$, 图3), 表明As对人体具有潜在的非致癌风险。

如图3所示, 儿童和成人As、Cd、Pb、Cr致癌风险指数分别为 3.999×10^{-5} 、 6.744×10^{-7} 、 9.440×10^{-9} 、 7.715×10^{-14} 和 2.300×10^{-5} 、 3.776×10^{-7} 、 7.531×10^{-9} 、 1.670×10^{-13} 。无论成人还是儿童, 3种暴露途径的风险指数均表现为经口摄入>皮肤接触>呼吸吸入。对比三种

途径各元素 CR_{ing} 、 CR_{inh} 、 CR_{derm} 值可知, CR_{ing} 值最大的有害元素是As(儿童 $CR_{ing}=3.744\times 10^{-6}$, 成人 $CR_{ing}=2.096\times 10^{-5}$), CR_{inh} 值最大的有害元素是Cr(儿童 $CR_{inh}=7.715\times 10^{-14}$, 成人 $CR_{inh}=1.670\times 10^{-13}$), CR_{derm} 值最大的有害元素是As(儿童 $CR_{derm}=2.558\times 10^{-6}$, 成人 $CR_{derm}=2.040\times 10^{-6}$)。其中, As、Cr导致的儿童致癌风险指数和成人致癌风险指数在 $10^{-6}\sim 10^{-4}$ 及以下范围, 说明致癌风险人体可接受。但USEPA推荐的 CR 标准是大于 10^{-6} , 所以As元素需要引起关注, 防止出现土壤As污染事故。由于目前只有部分有害元素的致癌参数, 未考虑其他有害元素的致癌风险, 故潜在的有害元素致癌风险可能高于该研究的风险。土壤中有毒元素的赋存形态特征是研究有害元素的来源和生物有效性的重要信息, 今后的研究应该考虑8种有害元素在离子交换态和水溶态下的生物活性系数对人体健康风险的潜在影响^[28], 此外, 不同人群和年龄段接受的暴露剂量的差异性也应该进一步精细化。

3 结论

(1)描述性统计分析表明, 除Ni、Zn外研究区土

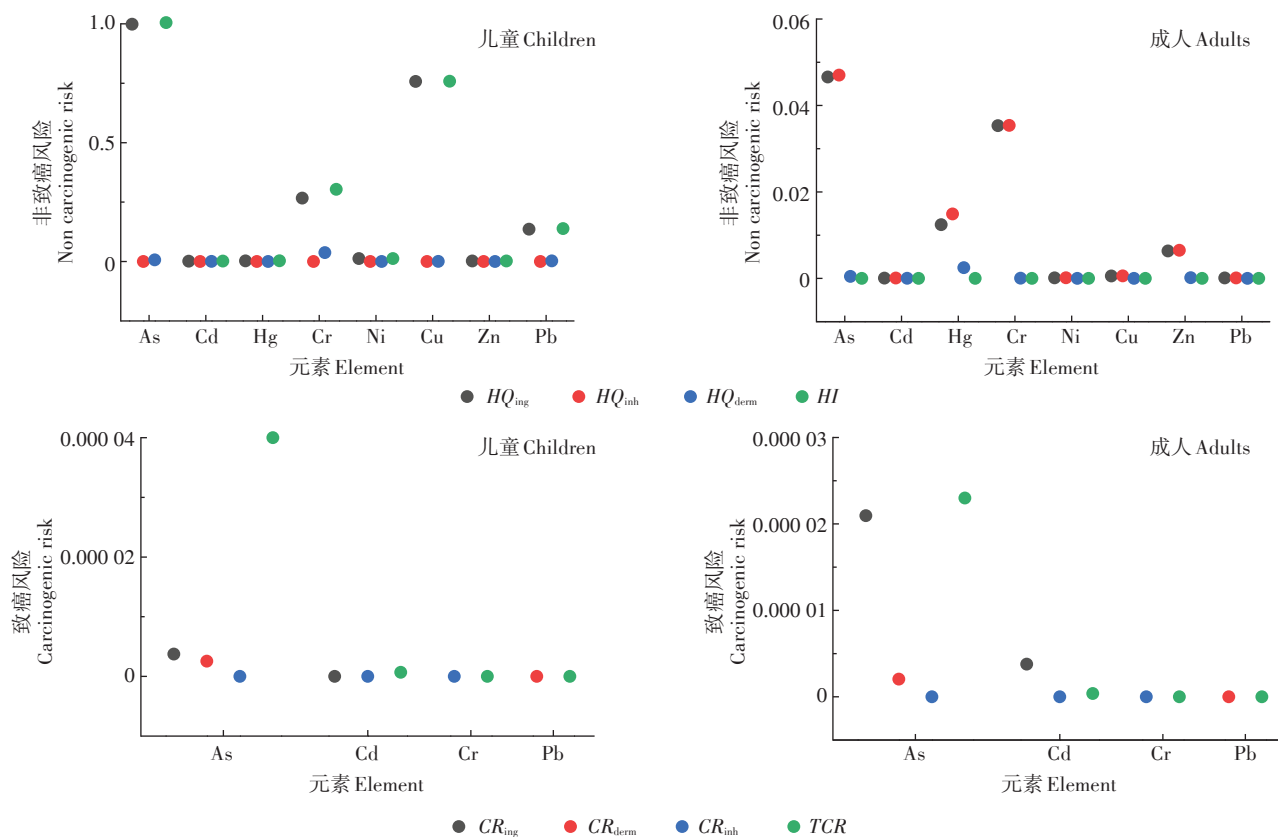


图3 儿童、成人非致癌和致癌人体健康风险

Figure 3 Human health risk of non carcinogenic and carcinogenic with respect to both children and adults

壤中其余6种元素含量均超过江西省背景值,8种元素的平均值均低于《土壤环境质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》筛选值。从变异系数看,8种元素的变异系数均超过36%,表明数据离散程度较高,这8种有害元素的空间差异比较明显。

(2)基于MAF和SGS的多元地统计模拟结果表明,研究区土壤中8种有害元素含量呈现岛状分布格局,各有害元素在王母渡镇东北部、铁山垅镇西部等几个乡(镇)出现高值点,As、Cr的空间分布格局基本一致。

(3)除了As的儿童非致癌风险指数大于阈值外,其余7种元素的儿童和成人非致癌风险指数均小于1,儿童和成人非致癌风险指数平均值大小均表现为 $As > Cu > Cr > Pb > Ni > Hg > Zn > Cd$ 。8种有害元素总致癌风险指数均介于 $10^{-6} \sim 10^{-4}$ 之间,整体来说,土壤有害元素污染导致的两类健康风险处于可接受范围,但应对As元素予以重视,以防出现潜在危害。

参考文献:

- [1] 谢团辉,胡聪,陈炎辉,等. 某炼钢厂周边农田土壤重金属污染状况的调查与评价[J]. 农业资源与环境学报, 2018, 35(2): 155-160. XIE T H, HU C, CHEN Y H, et al. Investigation and evaluation of heavy metals pollution of agricultural soils near a steel plant[J]. *Journal of Agricultural Resources and Environment*, 2018, 35(2): 155-160.
- [2] 杨安,王艺涵,胡健,等. 青藏高原表土重金属污染评价与来源解析[J]. 环境科学, 2020, 41(2): 886-894. YANG A, WANG Y H, HU J, et al. Evaluation and source of heavy metal pollution in surface soil of Qinghai-Tibet Plateau[J]. *Environmental Science*, 2020, 41(2): 886-894.
- [3] 李伟迪,崔云霞,曾撑撑,等. 太浦河流域农田土壤重金属污染特征与来源解析[J]. 环境科学, 2019, 40(11): 5073-5081. LI W D, CUI Y X, ZENG C C, et al. Pollution characteristics and source analysis of heavy metals in farmland soils in the Taige Canal valley[J]. *Environmental Science*, 2019, 40(11): 5073-5081.
- [4] LÜ J S, WANG Y M. PMF receptor models and sequential Gaussian simulation to determine the quantitative sources and hazardous areas of potentially toxic elements in soils[J]. *Geoderma*, 2019, 353: 347-358.
- [5] WACKERNAGEL H. Multivariate geostatistics[M]. Berlin: Springer Verlag, 2003.
- [6] 邹勇军,胡小娟,汪成钵,等. 江西省赣县沙地土壤重金属的来源及环境等级评价[J]. 中国煤炭地质, 2018, 30(11): 66-73. ZOU Y J, HU X J, WANG C B, et al. Study on soil heavy metal source and environmental grade assessment in Shadi Township, Ganxian County, Jiangxi Province[J]. *Coal Geology of China*, 2018, 30(11): 66-73.
- [7] 杨涛. 赣南钨矿区农田土壤重金属污染特征及风险评价[D]. 赣州: 江西理工大学, 2016. YANG T. Characteristics and risk assessment of heavy metal pollution in farmland soil of tungsten producing area in southern Jiangxi[D]. Ganzhou: Jiangxi University of Science and Technology, 2016.
- [8] 雍太健,张明,陈国光,等. 赣州市土地质量地球化学评估及其富硒特征研究[J]. 华东地质, 2020, 41(4): 403-409. YONG T J, ZHANG M, CHEN G G, et al. Geochemical evaluation and selenium-rich characteristics of land quality in Ganzhou City[J]. *East China Geology*, 2020, 41(4): 403-409.
- [9] KIM K R, KIM K H, YU S, et al. Better assessment of the distribution of As and Pb in soils in a former smelting area, using ordinary co-kriging and sequential Gaussian co-simulation of portable X-ray fluorescence(PXRF) and ICP-AES data[J]. *Geoderma*, 2019, 341: 26-38.
- [10] WANG Y M, ZHANG L X, WANG J N, et al. Identifying quantitative sources and spatial distributions of potentially toxic elements in soils by using three receptor models and sequential indicator simulation[J]. *Chemosphere*, 2020, 242: 125266.
- [11] SWITZER P, GREEN A. Min/max autocorrelation factors for multivariate spatial imagery[R]. Stanford University, 1984.
- [12] 安婧,宫晓双,陈宏伟,等. 沈抚灌区农田土壤重金属污染时空变化特征及生态健康风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2016, 35(1): 37-44. AN J, GONG X S, CHEN H W, et al. Temporal and spatial characteristics and health risk assessments of heavy metal pollution in soils of Shenfu irrigation area[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2016, 35(1): 37-44.
- [13] 杨泉,陈明,胡兰文,等. 赣州市绿地土壤重金属污染特征及评价[J]. 土壤通报, 2018, 49(1): 159-166. YANG Q, CHEN M, HU L W, et al. Characteristics and assessment of heavy metal pollution in green space soil of Ganzhou[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2018, 49(1): 159-166.
- [14] 付克昌,袁世辉,蒋世奇,等. 基于MAF的传感器故障检测与诊断[J]. 化工学报, 2015, 66(5): 1831-1837. FU K C, YUAN S H, JIANG S Q, et al. Sensor fault detection and diagnosis using MAF[J]. *Journal of Chemical Industry and Engineering*, 2015, 66(5): 1831-1837.
- [15] 吕建树. 烟台海岸带土壤重金属定量源解析及空间预测[J]. 地理学报, 2021, 76(3): 713-725. LÜ J S. Source apportionment and spatial prediction of heavy metals in soils of Yantai Coastal zone[J]. *Acta Geographica Sinica*, 2021, 76(3): 713-725.
- [16] WEBSTER R, OLIVER M A. Geostatistics for environmental scientists[M]. Chichester: Wiley, 2007.
- [17] PAN Y J, PENG H X, XIE S Y, et al. Eight elements in soils from a typical light industrial city, China: Spatial distribution, ecological assessment, and the source apportionment[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2019, 16(14): 2591.
- [18] 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990. China National Environmental Monitoring Center. Background values of elements in soils of China[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1990.
- [19] 李一蒙,马建华,刘德新,等. 开封城市土壤重金属污染及潜在生态风险评价[J]. 环境科学, 2015, 36(3): 1037-1044. LI Y M, MA J H, LIU D X, et al. Assessment of heavy metal pollution and potential ecological risks of urban soils in Kaifeng City, China[J]. *Environ-*

- mental Science*, 2015, 36(3):1037-1044.
- [20] 吕建树, 何华春. 江苏海岸带土壤重金属来源解析及空间分布[J]. 环境科学, 2018, 39(6):2853-2864. LÜ J S, HE H C. Identifying the origins and spatial distributions of heavy metals in the soils of the Jiangsu coast[J]. *Environmental Science*, 2018, 39(6):2853-2864.
- [21] 向鹏华, 单雪华, 黄银章. 衡阳市植烟土壤中重金属含量及其污染评价[J]. 作物研究, 2014, 28(8):915-918. XIANG P H, SHAN X H, HUANG Y Z. Hengyang planting soil heavy metal content in smoke and its pollution evaluation[J]. *Crop Research*, 2014, 28(8):915-918.
- [22] 万应发, 冯小虎, 刘海伟, 等. 江西抚州烟区土壤重金属风险评估与外源分析[J]. 中国烟草科学, 2015, 36(6):43-48. WAN Y F, FENG X H, LIU H W, et al. Risk assessment and input source analysis of heavy metals in the soil of tobacco-planting regions of Fuzhou, Jiangxi Province[J]. *China Tobacco Science*, 2015, 36(6):43-48.
- [23] 刘青付. 三明市畜禽养殖场周边土壤重金属污染调查及评价研究[J]. 海峡科学, 2016(6):38-41. LIU Q F. Investigation and evaluation of heavy metal pollution in soil around livestock and poultry farms in Sanming City[J]. *Strait Science*, 2016(6):38-41.
- [24] 李杰. 江西瑞金地区农用地土壤地球化学特征和环境问题研究[D]. 北京: 中国地质大学(北京), 2018. LI J. Study on soil geochemical characteristics and environmental problems of farmlands in Ruijin, Jiangxi Province[D]. Beijing: China University of Geosciences (Beijing), 2018.
- [25] 黄碧燕. 桂林市菜地土壤重金属含量及其风险评价[J]. 广西农学报, 2010, 25(4):34-36. HUANG B Y. Heavy metal content and their risk evaluation in vegetable field soil of Guilin City[J]. *Journal of Guangxi Agriculture*, 2010, 25(4):34-36.
- [26] 刘春英, 李洪义. 南昌市不同功能区绿化带土壤重金属污染特征及生态风险评价[J]. 生态环境学报, 2019, 28(8):1691-1699. LIU C Y, LI H Y. Pollution characteristics of heavy metals in green belt soil of different functional areas in Nanchang and the ecological risk assessment[J]. *Journal of Ecological Environment*, 2019, 28(8):1691-1699.
- [27] MARTIN J A R, NANOS N. Soil as an archive of coal-fired power plant mercury deposition[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, 308:131-138.
- [28] 魏海英, 饶雷振, 章博函, 等. 太原市叶面尘中重金属分布特征及其健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2021, 41(3):1050-1057. WEI H Y, RAO L Z, ZHANG B H, et al. Distribution characteristics and health risk assessment of heavy metals in foliage dust in Taiyuan City[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2021, 41(3):1050-1057.



少一个纸杯 多一片绿色

《农业资源与环境学报》公益宣传