

滇东农田土壤铅污染健康风险评价及基准研究

刘娟^{1,3}, 李洋^{2,3}, 张敏^{2,3}, 张乃明^{2,3*}, 韩东锦^{2,3}

(1. 云南农业大学植物保护学院, 昆明 650201; 2. 云南农业大学资源与环境学院, 昆明 650201;
3. 云南省土壤培肥与污染修复工程实验室, 昆明 650201)

摘要: 农田土壤重金属污染造成农产品中重金属含量超标进而通过食物链对人体健康的风险和隐患不容忽视, 滇东农田土壤同时受到高地质背景与矿业活动叠加的双重影响, 铅污染的问题开始受到广泛关注。为了掌握滇东地区土壤-作物系统铅累积规律及其健康风险以及农田土壤铅健康风险基准, 通过对滇东 6 个市(州)农田土壤和农产品点位协同采样, 探讨滇东土壤及其种植农作物中铅的累积特征及健康风险状况, 并基于物种敏感分布模型(Log-logistic)反推滇东农田土壤铅安全基准值。结果表明: 1) 滇东不同市(州)农田土壤中铅含量平均值从大到小依次为红河州、曲靖市、昭通市、文山州、玉溪市、昆明市, 其中, 昭通市、曲靖市、文山州和红河州农田土壤均存在轻微程度的铅超标问题; 2) 滇东 6 个市(州)农产品总的点位超标率为 11.9%; 不同类别作物吸收富集铅的能力不同, 豆类的豌豆和花生对铅具有较高的富集能力, 其次是根茎类的莴笋、叶菜类的油菜和谷物类的小麦。3) 健康风险评价结果表明, 滇东各区域农田土壤重金属铅对居民不存在明显的非致癌风险和致癌风险, 铅在不同区域对儿童产生的非致癌风险大于成人, 不同暴露途径非致癌健康风险指数从大到小依次为手-口摄入、皮肤接触、呼吸吸入; 4) 基于物种敏感性分布模型反推滇东农田土壤铅健康风险基准值, 种植根茎类、茄果类、叶菜类、豆类、谷物类作物时, 其临界值分别为 13.0、19.7、35.1、11.3、18.1 mg/kg; 其警戒值分别为 269.5、481.3、500.7、367.5、560.3 mg/kg。研究结果可为滇东以及类似区域铅高背景区农田土壤制定更为精准的地方标准、实现铅污染土壤安全利用提供科学依据。

关键词: 土壤; 重金属; 污染; 健康风险基准值; 物种敏感度分布(SSD)曲线法; 铅; 滇东

doi: 10.11975/j.issn.1002-6819.2021.01.029

中图分类号: S154.4; X53

文献标志码: A

文章编号: 1002-6819(2021)-01-0241-10

刘娟, 李洋, 张敏, 等. 滇东农田土壤铅污染健康风险评价及基准研究[J]. 农业工程学报, 2021, 37(1): 241-250.

doi: 10.11975/j.issn.1002-6819.2021.01.029 <http://www.tcsae.org>

Liu Juan, Li Yang, Zhang Min, et al. Health risk assessment and benchmark of lead pollution in agricultural soils in East Yunnan, China[J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE), 2021, 37(1): 241-250. (in Chinese with English abstract) doi: 10.11975/j.issn.1002-6819.2021.01.029 <http://www.tcsae.org>

0 引言

铅是植物非必需的金属元素^[1], 同时也是土壤污染较普遍的元素, 铅被植物吸收并累积到一定程度会影响作物的产量和品质^[2], 并通过食物链、土壤、水和空气等方式进入人体^[3], 低浓度的铅可使人体的神经系统和肾脏等所有系统和器官产生损害, 高浓度的铅可致癌或致人死亡, 大量研究证明铅已成为影响食品安全和人体健康的重要污染物之一^[4-5]。根据环境保护部和国土资源部联合发布的《全国土壤污染状况调查公报》, 中国土壤环境状况总体不容乐观, 耕地土壤点位超标率为 19.4%, 从污染类别来看, 主要以无机污染为主, 其中, 土壤铅的点位超标率为 1.5%, 在“五毒”元素中超标率位列第四。人为铅污染源主要来自于矿山、冶炼及农业上施用含铅农药(砷酸铅)等, 而自然状态下土壤中铅元素主要来

源于成土母质^[6]。云南省地处中国西南, 土壤铅的环境背景值为 40.6 mg/kg, 仅次于福建省(41.3 mg/kg), 是中国典型的铅背景区^[7]。同时, 云南省素有“有色金属王国”之称, 是矿产资源开发活动集中的区域^[1], 铅高背景叠加矿业活动、农业耕作活动等因素的影响^[8], 使得云南农田土壤铅污染问题更加突出。

云南省是中国蔬菜水果等农产品的重要生产基地, 而滇东又是云南最大的蔬菜、粮食生产地之一。据统计, 2019 年, 云南省蔬菜和粮食的种植面积分别为 12×10^5 和 41.7×10^5 hm^2 , 蔬菜和粮食的产量分别为 23.04×10^6 和 18.70×10^6 t, 而昭通市、曲靖市、昆明市、玉溪市、文山州、红河州 6 个行政区蔬菜种植面积和产量分别占全省的 65.85% 和 68.00%, 粮食种植面积和产量分别占全省的 33.47% 和 24.24%。根据《中华人民共和国土壤环境背景值图集》^[9], 滇东大部分地区土壤铅的地球化学背景值范围为 23.9~300 mg/kg, 部分滇东土壤铅的地球化学背景值超过国家《农用地土壤污染风险管控标准》(GB15618—2018)中的污染风险筛选值。近年来, 关于耕地-农作物中重金属污染特性及其对人体造成的健康风险问题越来越受到广大研究者的关注^[10-11]。谢团辉等^[12]通过健康评价模型-目标危害目标危险系数

收稿日期: 2020-10-11 修订日期: 2020-12-11

基金项目: 云南省重点研发计划项目(2018BC003)

作者简介: 刘娟, 博士生, 主要从事农用化学物质与环境方面的研究。

Email: 15587214232@163.com

*通信作者: 张乃明, 博士, 教授, 主要从事土壤培肥与污染修复方面的研究。

(THQ, Target Hazard Quotient) 评估福建某矿区周边土壤-农作物健康风险, 发现矿区作物 THQ 表现为: 根茎类从大到小依次为 Cd、Pb、Cu、Zn、Ni、As、Cr, 薯类为 Cu、Pb、Ni、Cd、Zn、As、Cr, 叶菜类为 Cd、Pb、Zn、Cu、Ni、As、Cr, 矿区农作存在复合健康风险。马建华等^[13]通过开展污灌区土壤-作物-人发系统的累积状况, 发现污灌区人发重金属累积明显, 随年龄增长人发多数重金属含量呈增加趋势, 并且男性高于女性。陈凤等^[14]通过潜在生态风险指数 (RI, Potential Ecological Risk Index) 和危险商 (HQ, Hazard Quotient) 法对贵州省某典型锌冶炼区耕地土壤和主要谷类农作物 (稻米、玉米和小麦) 风险进行评价, 发现锌冶炼区稻米、玉米和小麦存在 Pb、Cd、Zn、Cu 超标现象, 食用该区域谷类农作物引起复合重金属污染对成人和儿童均存在健康风险。目前这些研究主要集中在有明确污染来源的区域如工矿、冶炼区、污灌区等^[15-17], 而关于土壤铅地球化学背景值高的区域以及高背景值叠加人类耕作活动影响的区域, 土壤-作物系统铅累积规律及健康风险方面的研究目前还没有报道。滇东既是铅高背景值区域, 又是云南蔬菜、谷物等种植面积比较大的区域, 在铅高背景区土壤种植作物是否也存在健康风险问题尚不可知。

中国现行土壤质量标准《土壤环境质量 农用地土壤风险管控标准 (试行)》(GB 15618—2018) 规定了农用地土壤中重金属及类金属铅的风险筛选值和管制值, 该标准适用于所有农用地^[18], 但由于中国农田土壤环境质量差异较大, 且种植作物种类多, 不同作物对铅的富集能力差异大, 采用现行标准对重金属高背景值区土壤不同作物种类铅污染评价并不完全适用, 需要针对主栽作物品种制定相应的农田土壤安全限量标准^[19]。本研究以滇东的昭通市、曲靖市、文山州三个市 (州) 以及昆明市、玉溪市、红河州的东部部分县区为研究对象, 系统地研究了该区域农田土壤和农产品中铅的累积状况, 通过人体健康风险评价模型评价了滇东农田土壤铅污染对人体造成的健康风险状况, 并基于物种敏感度分布曲线 (SSD, Species Sensitivity Distribution) 法研究滇东农田土壤铅的健康风险基准值, 这对铅高背景区农田土壤的安全利用和保障人体健康都具有重要意义。

1 材料与方法

1.1 研究区域概况

研究区域位于云南省东部 (102.54°~106.87°E, 22.5°~28.34°N), 主要包括昭通市、曲靖市、文山州三个市 (州) 以及昆明市、玉溪市、红河州东部部分县区, 覆盖土地总面积 5.51 万 km², 滇东属亚热带季风气候, 四季如春, 最热月平均气温在 19~22 °C 之间, 最冷月在 6~8 °C 以上, 无霜期 210~220d, 年降雨量在 1000 mm 以上, 雨季多集中在 5—10 月。滇东为云贵高原的组成部分, 地形表现为起伏和缓的低山和丘陵, 发育着各种类型的喀斯特地貌, 地带性土壤类型为红壤和砖红壤。滇东同时也是云南省蔬菜、粮食的重要生产地之一, 区

域内主栽品种为: 叶菜类 (青菜、白菜、菠菜等); 茄果类 (辣椒、茄子等); 根茎类 (萝卜、生姜、马铃薯等); 豆类 (花生、豌豆、蚕豆等); 谷物类 (小麦和玉米)。

1.2 土壤样品采集

样品采自云南省滇东的昭通市、曲靖市、文山州三个市 (州) 以及昆明市、玉溪市、红河州的东部部分县区, 2018 年 8 月, 按照土壤与作物点对点协同采集 492 对。土样的采集按照“随机”多点混合采样的原则, 采集耕层土壤样品, 去除土样中的根茬、动物残体和石块等杂物, 土壤风干过筛 (2 mm) 备用。作物的采集既考虑滇东地区作物的播种面积、产量, 又兼顾到栽培方式 (裸露栽培和设施栽培), 作物种类包括芥蓝菜、萝卜、生姜、马铃薯、莴笋、辣椒、小米辣、油辣椒、茄子、白菜、包菜、菠菜、菜心、甘蓝、花菜、韭菜、苦菜、莲花白、牛皮菜、青菜、生菜、蒜苗、小白菜、油菜、西兰花、油麦菜; 豆类: 蚕豆、花生、豌豆、小麦、玉米等 31 种均属成熟生长阶段作物, 根据《食品安全国家标准 食品中污染物限量》(GB2762—2017) 中食品名称说明, 可以将作物大致分为叶菜类、豆类、根茎类、豆类、茄果类及谷物类, 作物样品具有一定的代表性, 符合当地居民日常需求。农作物均采集可食用部分, 采回的作物样品应该冲洗、擦干, 105 °C 杀青 30 min, 75 °C 恒温烘干至恒质量, 打碎研磨并通过 0.149 mm 尼龙筛后分装室温保存备用。

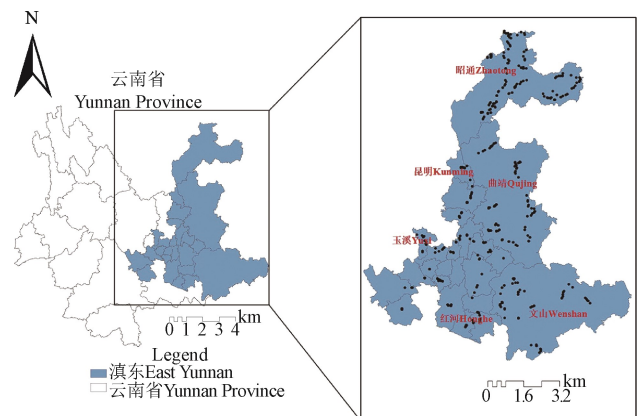


图 1 滇东农田中土壤-作物采样点分布图

Fig.1 Distribution of soil-crop sampling points in farmland in eastern Yunnan

1.3 样品分析及数据统计

土壤 pH 值采用酸度计 (NY-T 1121.2—2006) 测定; 土壤中铅采用石墨炉原子吸收分光光度法 (岛津 AA6880) 测定, 加入标准物质 GBW 07405 对整个分析测试过程进行质量控制; 植株中铅含量采用电感耦合等离子体质谱法 (GB5009.12—2017) 测定。

试验数据采用 Microsoft Excel 2007 和 OriginPro 9.0 软件进行整理和作图, 采用 IBM SPSS Statistics 19 软件进行单因素方差分析、相关分析等统计分析, 采样点的空间分布采用 ArcGIS10.2 作图。

1.4 模型方法

1.4.1 重金属人体健康评价方法

土壤重金属以呼吸、皮肤、口手的接触途径进入人体，长时间的累积后会对人体健康造成危害。人体长期暴露于某一污染物是否能对人带来不良的健康风险可以通过健康风险值进行评价和预测。本研究采用美国环境保护署^[20-21]提出的健康风险评价模型对滇东地区农田土壤的铅对居民造成的健康风险，其公式如下：

$$ADD_{\text{土壤,口手}}=(C\cdot IR_1\cdot CF\cdot EF\cdot ED)/(BW\cdot AT) \quad (1)$$

$$ADD_{\text{土壤,皮肤}}=(C\cdot CF\cdot SA\cdot AF\cdot ABC\cdot EF\cdot ED)/(BW\cdot AT) \quad (2)$$

$$ADD_{\text{土壤,呼吸}}=(C\cdot IR_2\cdot EF\cdot ED)/(BW\cdot PEF\cdot AT) \quad (3)$$

式中 $ADD_{\text{土壤,口手}}$ 、 $ADD_{\text{土壤,皮肤}}$ 、 $ADD_{\text{土壤,呼吸}}$ 为不同暴露途径的长期日均暴露量， $\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$ ； BW 为体质量，成人取值 70 kg，儿童取值 15.9 kg； C 为重金属含量， mg/kg ； CF 为单位转化因子，取值 $10^{-6} \text{ mg}/\text{kg}$ ； IR_1 为土壤颗粒摄入量，成人取值 100 mg/d ，儿童取值 200 mg/d ； IR_2 为呼吸频率，成人取值 20 mg/d ，儿童取值 7.65 mg/d ； ED 为土壤暴露持续时间，成人取值 24 a，儿童取值 6 a； EF 为土壤暴露频率，取值 350 d/a； SA 为暴露皮肤面积，成人取值 5 700 cm^2 ，儿童取值 2 800 cm^2 ； AF 为皮肤的黏附系数，成人取值 0.07 $\text{mg}/(\text{cm}\cdot\text{d})$ ，儿童取值 0.2 $\text{mg}/(\text{cm}\cdot\text{d})$ ； ABS 为皮肤的吸收因子，成人取值 0.003，儿童取值 0.001； PEF 为灰尘的排放因子，取值 $1.36\times10^9 \text{ mg}^3/\text{kg}$ ； AT 为平均总的暴露时间， $ED\times365 \text{ d}$ （非致癌）， $70\times365 \text{ d}$ （致癌）。

重金属对人体产生的健康风险可分为致癌风险评价和非致癌健康风险评价两种模型。计算公式如下：

$$HI=\sum HQ_i=\sum \frac{ADD_{ij}}{RFD_{ij}} \quad (4)$$

$$CR=\sum ADI_{ij}\cdot SF_{ij} \quad (5)$$

$$TCR=CR_1+CR_2+\dots+CR_i \quad (6)$$

式中 HI 为总非致癌风险指数； HQ_i 为非致癌重金属 i 的单因子健康风险指数； ADD_{ij} 为非致癌重金属 i 的第 j 种暴露途径的日均暴露量； RFD_{ij} 为非致癌重金属 i 的第 j 种暴露途径的参考剂量； CR 为致癌风险； ADI_{ij} 为致癌重金属 i 的第 j 种暴露途径日均暴露量； SF_{ij} 为致癌重金属 i 的第 j 种暴露途径的斜率系数； TCR 为总致癌风险指数。

重金属铅的 RFD 参考值和 SF 参考值如表 1 所示。

表 1 土壤重金属不同暴露途径参考剂量和斜率系数

Table 1 Reference dose and slope coefficient of soil heavy metal by different exposure routes

重金属 Heavy metal	参考剂量 $RFD/(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1})$			斜率系数 $SF(\text{kg}\cdot\text{d}^{-1}\cdot\text{mg}^{-1})$		
	口腔摄入 Oral intake	呼吸摄入 Breath intake	皮肤摄入 Skin intake	口腔摄入 Oral intake	呼吸摄入 Breath intake	皮肤摄入 Skin intake
铅 Lead	3.5×10^{-3}	3.52×10^{-3}	5.25×10^{-4}	-	-	8.5×10^{-3}

根据 EPA 的综合风险信息系统 (IRIS) 与 HJ25.3—2014《污染场地污染风险技术守则》中推荐土壤治理标准 CR 为 10^{-6} ；风险评价存在阈值，当超过阈值存在一定风险，总体非致癌风险指数 HI 与致癌风险值 CR 见表 2。

1.4.2 健康风险基准值推导方法

健康风险基准值推导方法采用敏感性分布曲线法 (SSD)，物种敏感分布曲线是一系列物种或相同物种的不同品种间对某一种污染物敏感性差异提出的一种生态风险评价方法^[22]。SSD 法通过概率分布函数将不同物种间的毒理数据外推，实现污染物在生物群落甚至生态系统水平上的风险评估^[23]。常用的累积概率分布函数主要包括有 Log-logistic、BurrIII 和 Log-normal 等^[24-25]。利用 SSD 法推导作物合理种植土壤的生态安全阈值，主要包括 3 个步骤：1) 通过对实地采集的作物样品及其对应土壤中重金属铅含量的分析，计算出农作物可食用部分的富集系数 (BCF, Biological Concentration Factor) 作为概率分布指标；2) 采用 Log-logistic 型分布拟合 SSD 曲线；3) 参照《食品安全国家标准食品中污染物限量》中规定的各类农作物的限值，反推保护各作物种类种植土壤中铅风险基准值。

表 2 土壤重金属人体健康风险评价分级

Table 2 Human health risk assessment and classification of soil heavy metals

非致癌风险 Non-carcinogenic risk	致癌风险 Carcinogenic risk
$HQ_i<1$ ，单一重金属对人体不存在非致癌风险	$CR_i<10^{-6}$ ，人体可接受单一重金属致癌风险水平
$HI<1$ ，总体重金属对人体不存在非致癌风险	$CR_i<10^{-4}$ ，人体可接受累积重金属致癌风险水平

注： HI 为总非致癌风险指数； HQ_i 非致癌重金属 i 的单因子健康风险指数； CR_i 为致癌风险。

Note: HI represents the total non-carcinogenic risk index; HQ_i represents single factor health risk index of non-carcinogenic heavy metal i ; CR_i represents carcinogenic risk.

作物可食用部分的富集系数 (BCF) 为每个作物品种与其生态环境中污染物总量的浓度比值，其表达式为

$$BCF=C_F/C_s \quad (7)$$

式中 C_F 为农作物中重金属铅含量， mg/kg ； C_s 表示土壤重金属含量， mg/kg 。富集系数可以衡量不同农作物吸收重金属能力的强弱。

求取某作物品种对应点位 BCF 的平均值，将每个作物品种的 BCF 求倒数，得到 $1/BCF$ 的值，各类作物品种的 $1/BCF$ 对土壤中重金属铅的富集效应的敏感分布遵循“S”型曲线分布，拟合 SSD 曲线。拟合方程如下

$$y=\frac{a}{1+(\frac{x}{x_0})^b} \quad (8)$$

式中 x 为 $1/BCF$ ； y 为作物样品对应的累积概率， a 、 b 、 x_0 为常数。

通过以上方程反推不同比例各类作物存在超标风险的 $1/BCF$ 值，公式如下：

$$\frac{1}{BCF}=10^{\frac{\lg(\frac{a}{y}-1)}{b}}+\lg x_0 \quad (9)$$

根据《食品安全国家标准食品中污染物限量》(GB2762—2017) 中规定中各类别食品中铅的标准限值为

根茎类 0.1 mg/kg; 茄果类 0.1 mg/kg; 叶菜类 0.3 mg/kg; 豆类 0.2 mg/kg; 谷物类 0.2 mg/kg。以 1/BCF 计算公式,反推得到农田土壤铅安全基准值

$$Cs = 1 / BCF \cdot C_F \tag{10}$$

2 结果与分析

2.1 滇东地区农田土壤中铅的累积状况

滇东地区农田土壤中铅含量统计特征如表 3 所示,由表可知,滇东地区农田土壤中铅含量范围为 4.90~889.91 mg/kg,红河州和曲靖市土壤铅平均值高于滇东全

区水平,分别为 176.48 和 75.64 mg/kg,分别是滇东全区域铅均值的 4.1 倍和 1.76 倍,而昭通市、昆明市、玉溪市、文山州土壤重金属铅平均值分别为 36.85、20.91、23.53 和 31.71 mg/kg,均低于滇东全区水平。

根据土壤环境质量《农用地土壤污染风险管控标准》(GB15618—2018)中对铅污染风险筛选值的要求,滇东地区昭通市、曲靖市、文山州和红河州耕地土壤均存在轻微程度的土壤铅超标问题,其超标率分别为 0.7%、8.5%、5.08% 和 25.9%,其中红河州土壤铅点位超标率高于全区水平,而昆明市和玉溪市未出现土壤铅超标情况。

表 3 滇东农田土壤铅含量统计特征
Table 3 Statistical characteristics of lead content in farmland soils in eastern Yunnan

采样区域 Sampling area	样品数 Number of samples	最小值 Minimum (mg·kg ⁻¹)	最大值 Maximum (mg·kg ⁻¹)	平均值 Mean/ (mg·kg ⁻¹)	标准差 Standard deviation/ (mg·kg ⁻¹)	变异系数 Coefficient of variation /%	点位超标率 Point exceeding rate /%	pH 值范围 Range of pH value
昭通市 Zhaotong	133	10.13	104.5	36.85	17.03	46.2	0.7	5.19~7.98
曲靖市 Qujing	105	4.90	889.91	75.64	165.85	219.25	8.5	4.93~7.85
昆明市 Kunming	78	4.97	103.76	20.91	15.21	72.74	0	4.78~7.76
玉溪市 Yuxi	65	6.70	111.0	23.52	19.32	82.14	0	4.44~7.88
文山州 Wenshan	59	5.95	179.86	31.71	31.19	98.35	5.08	5.71~7.71
红河州 Honghe	66	10.13	678.07	176.48	195.76	110.92	25.9	5.03~7.66
滇东 East Yunnan	492	4.90	889.91	42.91	103.56	241.35	8.06	4.44~7.98

2.2 滇东地区各类作物铅累积差异及富集情况

滇东地区各类作物铅累积差异由表 4 可知,由表可知,不同作物品种对应作物类别铅含量范围分别为根茎类 0.005~1.64 mg/kg,茄果类 0.004~0.17 mg/kg,叶菜类 0.001~1.95 mg/kg,豆类 0.018~3.582 mg/kg,谷物类 0.002~3.12 mg/kg。其中,根茎类的生姜、马铃薯和莴笋,茄果类的油辣椒和茄子,叶菜类的甘蓝、韭菜和小白菜,豆类的蚕豆、豌豆和花生以及谷物类的小麦,其点位超标率均高于全区平均水平。

滇东各类作物对重金属铅的富集能力如表 4 所示,各类作物对铅吸收累积能力由图按比例可分为低累积、中累积、较高累积 3 个级别。低累积级别主要包括根茎类的芥蓝、萝卜、生姜、马铃薯,其铅含量均值为 0.170 mg/kg,富集系数均值为 0.002;茄果类的辣椒、小米辣、油辣椒和茄子,其铅含量均值为 0.046 mg/kg,富集系数均值为 0.001;叶菜类的白菜、包菜、菠菜、菜心、甘蓝、花菜、韭菜、苦菜、莲花白、牛皮菜、青菜、生菜、蒜苗、小白菜、西兰花、油麦菜,其铅含量均值为 0.089 mg/kg,富集系数均值为 0.003;豆类的蚕豆,其铅含量均值为 0.107 mg/kg,富集系数均值为 0.003;谷物类的玉米,其铅含量均值为 0.140 mg/kg,富集系数均值为 0.003。中累积级别主要包括根茎类的莴笋,其铅含量均值为 0.187 mg/kg,富集系数均值为 0.008;叶菜类的油菜,其铅含量均值为 0.155 mg/kg,富集系数均值为 0.007;谷物类的小麦,其铅含量均值为 0.204 mg/kg,富集系数均值为 0.006。而较高累积级别主要包括豆类的豌豆和花生,其铅含量均值为 0.450 mg/kg,富集系数均值为 0.018。较高累积级别的

作物品种铅含量高于现行食品污染物限值。

2.3 农产品铅摄入的健康风险评价

2.3.1 非致癌健康风险

利用式(1)~(4)计算出滇东各区域农田土壤重金属铅非致癌风险指数(HQ_i)如表 5 所示,由表可知,本文研究的 6 个市(州)农田土壤重金属铅的非致癌健康风险单项指数均小于 1,说明滇东各区域农田土壤重金属铅对居民不存在明显的非致癌风险;同时还发现,重金属铅对儿童的非致癌健康风险指数均高于成人,说明在本研究区,重金属铅对儿童的危害更大。

从不同暴露途径的非致癌风险指数来看(表 5),滇东各区域农田土壤重金属铅通过口-手摄入、呼吸摄入和皮肤接触等 3 种暴露途径导致儿童和成人的非致癌健康风险指数均小于 1,说明滇东各区域农田土壤重金属铅对居民不存在明显的非致癌风险;不同暴露途径非致癌健康风险指数大小表现为手-口摄入>皮肤接触>呼吸吸入,说明手-口摄入是农田土壤重金属铅的主要摄入途径。

2.3.2 致癌健康风险

滇东各区域农田土壤重金属铅致癌风险指数(HQ_i)如表 6 所示,滇东 6 个城市农田土壤中铅的致癌风险指数处于 1.0177×10⁻⁹~8.0364×10⁻⁹之间,致癌风险指数均低于美国环境保护署推荐的可接受风险阈值 10⁻⁶~10⁻⁴,说明滇东各区域农田土壤重金属铅致癌风险较低,作物中铅在安全范围内,不会对人体产生明显的致癌风险。同时还发现,昭通、曲靖、昆明和红河 4 个地区重金属铅对儿童的致癌健康风险指数要高于成人,而玉溪和文山 2 个地区重金属铅对儿童的致癌健康风险指数要低于成人。

表 4 滇东各类作物铅吸收累积与富集系数比较

Table 4 Comparison of Pb uptake and accumulation coefficients of various crops in eastern Yunnan

类别 Category	品种 Variety	数量 Numbers	Pb 含量范围 Range of Pb content/(mg·kg ⁻¹)	Pb 含量均值 Mean Pb content/ (mg·kg ⁻¹)	变异系数 Coefficient of variation/%	点位超标率 Point exceeding rate/%	富集系数均值 Mean of enrichment coefficient
根茎类 Rhizomes	芥蓝	7	0.060~0.175	0.039	77.55	0	0.001
	萝卜	10	0.005~0.148	0.062	85.83	0	0.002
	生姜	7	0.005~0.400	0.115	114.42	28.6	0.004
	马铃薯	6	0.020~1.640	0.568	164.67	16.7	0.003
	莴笋	12	0.008~1.115	0.187	168.46	25	0.008
茄果类 Nightshades	辣椒	18	0.004~0.119	0.023	111.40	5.5	0.001
	小米辣	5	0.005~0.047	0.022	74.51	0	0.002
	油辣椒	5	0.006~0.170	0.104	81.03	40	0.002
	茄子	12	0.006~0.127	0.067	128.35	45	0.001
叶菜类 Leafy vegetables	白菜	28	0.004~1.253	0.107	230.46	7.1	0.004
	包菜	29	0.005~0.322	0.058	101.13	3.4	0.002
	菠菜	4	0.015~0.259	0.106	102.79	0	0.003
	菜心	3	0.010~0.095	0.053	112.23	0	0.002
	甘蓝	4	0.012~0.432	0.127	161.62	25	0.003
	花菜	7	0.005~0.088	0.042	74.30	0	0.001
	韭菜	3	0.030~0.360	0.158	111.96	33.3	0.004
	苦菜	11	0.027~0.267	0.101	80.98	0	0.003
	莲花白	3	0.087~0.122	0.105	23.57	0	0.003
	牛皮菜	22	0.008~0.308	0.113	85.40	4.5	0.003
	青菜	23	0.003~0.322	0.053	126.80	4.3	0.001
	生菜	10	0.003~0.223	0.069	121.03	0	0.004
	蒜苗	17	0.003~0.304	0.065	115.88	5.8	0.002
	小白菜	21	0.001~1.279	0.171	171.34	19.1	0.004
	油菜	26	0.005~1.950	0.155	232.69	3.8	0.007
豆类 Beans	蚕豆	15	0.018~0.321	0.107	83.86	13.3	0.003
	豌豆	13	0.018~3.582	0.487	209.36	46.2	0.017
	花生	11	0.240~0.580	0.406	58.35	43.3	0.019
谷物类 Cereals	小麦	28	0.037~0.498	0.204	69.40	39.3	0.006
	玉米	116	0.002~3.120	0.140	276.38	8.6	0.003
全部作物 All crops		492	0.001~3.582	0.128	241.5	11.9	0.004

注：上述 Pb 含量均为各类作物鲜样中的 Pb 含量。
Note: The above Pb content were the Pb content in fresh samples of various crops.

表 5 滇东各区域农田土壤重金属铅非致癌健康风险

Table 5 Non-carcinogenic health risks of heavy metal lead in farmland soils in eastern Yunnan

对象 Object	区域 Regions					暴露途径 Exposure pathway				HI
	昭通 Zhaotong	曲靖 Qujing	昆明 Kunming	玉溪 Yuxi	文山 Wenshan	红河 Honghe	手-口摄入 Hand-oral intake	呼吸吸入 Breath intake	皮肤接触 Skin intake	
成人 Adults	0.017 5	0.037 2	0.024 1	0.013 8	0.011 1	0.063 9	0.024 7	3.611 0×10 ⁻⁶	0.002 0	0.026 7
儿童 Children	0.145 2	0.309 0	0.199 8	0.114 7	0.092 3	0.531 0	0.217 4	6.080 8×10 ⁻⁶	0.004 1	0.221 5

注：上述数值为非致癌 HQ 风险值；HI 为总非致癌风险。
Note: The above values were non-carcinogenic HQ risk values; HI was the total non-carcinogenic risk.

表 6 滇东各区域农田土壤重金属铅致癌健康风险

Table 6 Carcinogenic health risks of heavy metals Pb in farmland soils in eastern Yunnan

对象 Object	昭通 Zhaotong	曲靖 Qujing	昆明 Kunming	玉溪 Yuxi	文山 Wenshan	红河 Honghe
成人 Adults	1.976 5	4.205 6	2.719 0	1.560 7	1.255 7	7.229 2
儿童 Children	1.017 7	2.165 5	1.400 1	8.036 4	6.465 9	3.722 4

注：上述数值为致癌 HQ 风险值。
Note: The above values are carcinogenic HQ risk values.

2. 4 作物中铅的敏感性分布及健康风险基准值

以 1/BCF 为横坐标，铅的累积概率为纵坐标，通过 Logistic 分布模型拟合结果如图 2 所示，由图可看出，根茎类、茄果类、叶菜类和谷物类的敏感度分布曲线的走向基本一致，豆类数值点主要集中在 0~1 500 之间，茄果类在 0~4 000 范围内均匀分布，叶菜类数值点主要集中在 0~2 000 之间，而谷物类在 0~3 000 范围内均匀分布；豆类敏感度曲线比较平缓，数值点位多分布在 0~500

之间,说明不同作物类别对铅的敏感性分布具有明显差异。如果数据点集中于曲线上端,说明作物对铅的富集能力较弱,较不敏感;如果数据点集中于曲线下段,说明作物对铅富集能力较强,较敏感。

根据 Logistic 分布模型拟合结果,以及《食品安全国家标准食品中污染物限量》(GB2762—2017)中规定中各类别作物铅的标准限值,反推计算得出基于保护 95%和 5%作物类别安全的 HC₅ 和 HC₉₅ 值,具体由表 7 所示。

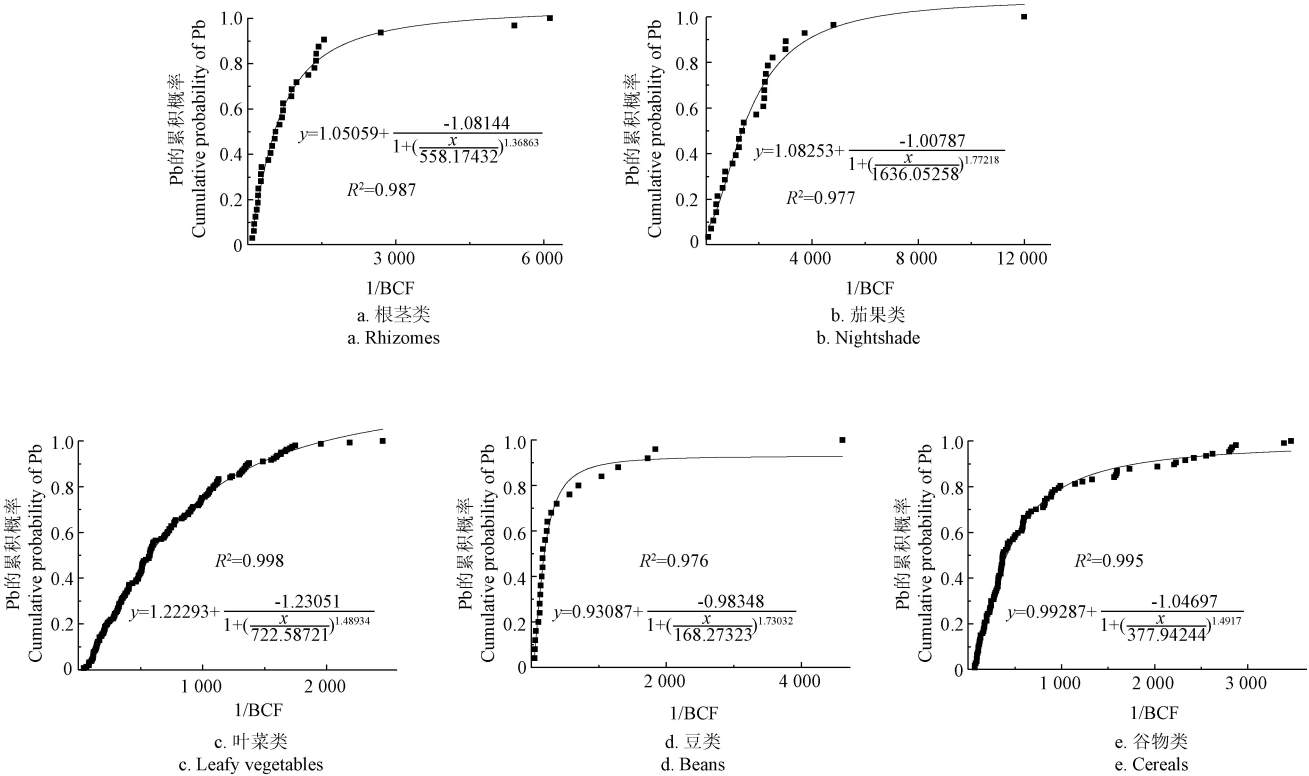


图 2 滇东农田土壤各类别作物敏感性分布 (SSD) 曲线
Fig.2 Species sensitivity distribution curves of crops in various farmlands in eastern Yunnan

表 7 基于 Logistic 拟合模型分布对滇东各类农田土壤铅健康风险值划分

Table 7 Classification of lead health risk values of various farmland in eastern Yunnan based on logistic fitting model distribution					
	mg·kg ⁻¹				
风险值 Risk value	根茎类 Rhizomes	茄果类 Nightshades	叶菜类 Leafy vegetables	豆类 Beans	谷物类 Grains
临界值 Critical value	13.0	19.7	35.1	11.3	18.1
警戒值 Alarm value	269.5	481.3	500.7	367.5	560.3

注:临界值和警戒值分别代表 95%和 5%作物种植土壤铅的含量,95%与 5%的比例参照现行国标编制说明。
Note: The critical value and alarm value represent 95% and 5% of the lead content in the soil where crops were grown, respectively. The ratios of 95% and 5% were described with reference to the current national standard.

3 讨论

3.1 滇东农田土壤重金属铅人体健康风险评价

滇东农田土壤和作物中铅的来源广泛,首先是成土母质来源即在漫长的风化成土过程中带来重金属,不同的母质类型、成土过程形成的土壤其重金属元素地球化学背景值差异很大,而云南省铅的土壤背景值为 40.6 mg/kg,是中国典型的铅高背景区^[6-7]。同时,滇东有色金属矿床丰富,开发利用度高,在采、选、炼的过程中向农田土壤中释放大量铅。此外,农业上施用含铅农药(砷酸铅)和化肥、污水灌溉等人为活动,也是造成

农田土壤铅污染的原因。土壤中重金属铅可通过植物根系吸收进入到植物体内,并累积在植物不同器官和组织中,如果农作物可食部分积累大量重金属,可通过口-手摄入、呼吸吸入和皮肤接触等方式进入到人体中,对人体健康造成影响^[14,26]。铅属于致癌物质,而蔬菜和谷物摄食量在人们的日常饮食结构中所占比重越来越大^[4-5],在铅高背景区土壤中种植农作物是否会对人体健康造成威胁是公众关心的问题。在本研究中发现,滇东农田土壤和农产品均存在 Pb 超标现象,滇东 6 个市(州)作物总的点位超标率为 11.9%,但健康风险评价结果却表明,滇东各区域农田土壤重金属铅对居民不存在明显的非致癌风险和致癌风险,这说明尽管滇东区域土壤铅虽然存在轻微程度的土壤铅超标问题,其中红河州土壤铅点位超标率还高于全区水平,但是在这些区域种植的农作物不会对人体产生明显的致癌和非致癌风险,滇东各区域农田土壤重金属铅致癌风险较低,作物中铅在安全范围内。同时还发现,重金属铅对儿童的非致癌健康风险指数均高于成人,表明儿童群体对铅污染更为敏感。分析其原因,可能是由于儿童身体发育尚未完全,对污染物排泄能力较差,导致结果存在偏差,因此要特别注意儿童对土壤重金属的防护工作。

人体对于重金属的暴露主要包括口-手、呼吸和皮肤 3 种途径^[27-28]。在本研究中,在口-手摄入、呼吸摄入和

皮肤接触三种暴露途径中,通过口-手摄入对人体产生的风险大于呼吸和皮肤接触的风险,这与王世玉等^[29]在污灌区得出的通过口食途径对人体产生的风险大于通过呼吸和皮肤接触引起的风险以及任艳军等^[30]研究蔬菜时得出的重金属经口暴露产生的风险占总个人年风险的98.90%的结论一致。口-手摄入成为是人体暴露于土壤重金属产生健康风险的最主要途径,主要是由于作物对重金属铅的高富集性造成的。

3.2 农田土壤铅健康风险基准值与现行标准的对比分析及其应用

在本研究中,将保护95%和5%作物类别安全作为划分农田土壤健康风险临界值和警戒值的依据^[31-32]。根据本研究的推导方法,将滇东农田土壤铅健康风险基准值与现行的《食品安全国家标准 食品污染物限量》(GB2762—2017)进行对比,发现滇东农田土壤铅推导临界值均低于农用地土壤风险筛选值(Pb:90 mg/kg);根茎类、茄果类和豆类警戒值低于农用地土壤风险管控值(Pb:500 mg/kg),而叶菜类和谷物类警戒值高于农用地土壤风险管控值。不同作物健康风险基准值存在差异,一方面可能是由于受到滇东高背景区土壤中铅污染程度以及土壤基本理化性质(如pH值、有机质)等因素的影响^[33-34];另一方面也可能是由于不同农作物对土壤中铅的富集能力不同,在本研究中发现,豆类的豌豆和花生对铅具有较高的富集能力,其次是根茎类的莴笋、叶菜类的油菜和谷物类的小麦,谢正苗等^[35]通过分析全国已报道蔬菜地土壤和蔬菜中重金属含量的数据和相关资料发现,不同的蔬菜种类富集重金属能力不同,不同种类蔬菜的铅富集系数表现为豆类>叶菜类>根茎类>瓜类>葱蒜类>茄果类,与研究结论一致。而本研究是基于滇东农田土壤调查数据,推定结果较为科学,可应用于滇东地区的农田污染防治实践。

现行《土壤环境质量农用地土壤污染风险管控标准(试行)》(GB15618—2018)为保护农用地土壤环境、管控农用地土壤污染风险以及保障农产品质量安全、农作物正常生长和土壤生态环境发挥了重要作用,但由于中国农田土壤环境质量差异较大,不同作物对铅的富集能力差异大等原因,导致在应用现行标准的过程中,常常出现“土壤重金属超标而农产品不超标”或“农产品超标而土壤重金属不超标”^[24],对于重金属高背景值区土壤不同作物种类铅污染评价并不完全适用。本研究根据 Logistic 分布模型拟合结果,以及《食品安全国家标准食品中污染物限量》(GB2762—2017)中规定中各类别作物铅的标准限值,反推计算得出基于保护95%和5%作物类别安全的临界值和警戒值,大致将滇东地区农田土壤分为3类,第一类为安全生产(土壤铅总量≤临界值),农田土壤未遭受明显的铅污染,土壤污染风险低,可以保护95%作物正常生长,只有5%的作物铅含量超过食品安全国家标准,尽量避免栽种铅富集能力较强,较敏感的作物类别;第二类为生产风险(临界值<土壤铅总量≤警戒值),农田土壤存在一定的风险,原则上应当采取安全利用措施,如在作物品种选择上应该避免直接

种植对土壤铅吸收富集能力中等或较强的作物;第三类为生产限制(土壤铅总量>警戒值),农田土壤铅污染风险高,可以保护5%作物正常生长,而95%的作物铅含量超过食品安全国家标准,在该区域种植作物会影响作物的正常生长,应该将该区域划为生产限制区,建议改种对铅的富集能力较弱,较不敏感的作物类别。

4 结 论

1) 滇东地区农田土壤中铅含量范围为4.90~889.91 mg/kg,不同市(州)土壤中铅含量平均值大小表现为红河州>曲靖市>昭通市>文山州>玉溪市>昆明市,滇东地区昭通市、曲靖市、文山州和红河州耕地土壤均存在轻微程度的土壤铅超标问题。

2) 不同类型作物可食部位中铅含量范围分别为根茎类0.005~1.640 mg/kg,茄果类0.004~0.170 mg/kg,叶菜类0.001~1.950 mg/kg,豆类0.018~3.582 mg/kg,谷物类0.002~3.120 mg/kg,滇东6个市(州)作物总的点位超标率为11.9%;不同类别作物吸收富集铅的能力不同,豆类的豌豆和花生对铅具有较高的富集能力,其次是根茎类的莴笋、叶菜类的油菜和谷物类的小麦。

3) 健康风险评价结果表明,滇东各区域农田土壤重金属铅对居民不存在明显的非致癌风险,铅在不同区域对儿童产生的风险大于成人,不同暴露途径非致癌健康风险指数大小表现为手-口摄入>皮肤接触>呼吸吸入;滇东6个市(州)农田土壤中铅的致癌风险指数处于 $1.0177 \times 10^{-9} \sim 8.0364 \times 10^{-9}$ 之间,农产品中铅在安全范围内,不会对人体产生明显的致癌风险。

4) 利用物种敏感度分布曲线法推导滇东作物健康风险基准值是基于保护95%及5%的作物品种安全所得的土壤风险值,种植根茎类、茄果类、叶菜类、豆类、谷物类物时,其临界值分别为13.0、19.7、35.1、11.3、18.1 mg/kg;其警戒值分别为269.5、481.3、500.7、367.5、560.3 mg/kg,这可为精准制定区域农田土壤的地方标准实现铅污染土壤安全利用提供科学依据。

[参 考 文 献]

- [1] 张乃明. 环境土壤学[M]. 北京: 中国农业大学出版社, 2013.
- [2] 王金达, 王艳, 任慧敏, 等. 沈阳市城乡结合部土壤-作物系统铅含量水平及其影响因素分析[J]. 农业环境科学学报, 2005, 24(2): 261-265.
Wang Jinda, Wang Yan, Ren Huimin, et al. Pb concentration in soil-plant system and its influence factors in the combination area of urban and rural of Shenyang city[J]. Journal of Agro-environment Science, 2005, 24(2): 261-265. (in Chinese with English abstract)
- [3] 马宏宏, 彭敏, 刘飞, 等. 广西典型碳酸盐岩区农田土壤-作物系统重金属生物有效性及迁移富集特征[J]. 环境科学, 2020, 41(1): 449-458.
Ma Honghong, Peng Min, Liu Fei, et al. Bioavailability, translocation, and accumulation characteristic of heavy metals in a soil-crop system from a typical carbonate rock

- area in Guangxi, China[J]. Environmental Science, 2020, 41(1): 449-458. (in Chinese with English abstract)
- [4] Markus J, McBratney A B. A review of the contamination of soil with lead (II): Spatial distribution and risk assessment of soil lead[J]. Environment International, 2001, 27: 399-411.
- [5] Kaiser J. Toxicologists shed new light on old poisons[J]. Science, 1998, 279: 1850-1851.
- [6] 敖明, 柴冠群, 范成五, 等. 稻田土壤和稻米中重金属潜在污染风险评估与来源解析[J]. 农业工程学报, 2019, 35(6): 198-205.
- Ao Ming, Chai Guanqun, Fan Chengwu, et al. Evaluation of potential pollution risk and source analysis of heavy metals in paddy soil and rice[J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE), 2019, 35(6): 198-205. (in Chinese with English abstract)
- [7] 张乃明. 重金属污染土壤修复理论与实践[M]. 北京: 化学工业出版社, 2017, 2.
- [8] 刘意章, 肖唐付, 熊燕, 等. 西南高镉地质背景区农田土壤与农作物的重金属富集特征[J]. 环境科学, 2019, 40(6): 2877-2884.
- Liu Yizhang, Xiao Tangfu, Xiong Yan, et al. Accumulation of heavy metals in agricultural soils and crops from an area with a high geochemical background of cadmium, southwestern China[J]. Environmental Science, 2019, 40(6): 2877-2884. (in Chinese with English abstract)
- [9] 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.
- [10] 周旭, 周安琪, 曹红斌, 等. 基于健康风险评价的白菜种植土壤中重金属的安全限量研究[J]. 农业环境科学学报, 2020, 39(6): 1213-1220.
- Zhou Xu, Zhou Anqi, Cao Hongbin, et al. Safety limits of heavy metals in planted soil of Chinese cabbage based on health risk assessment[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2020, 39(6): 1213-1220. (in Chinese with English abstract)
- [11] 师荣光, 刘凤枝, 郑向群, 等. 不同土地利用类型下土壤-作物铅的积累特征及其健康风险分析[J]. 农业环境科学学报, 2010, 29(3): 481-486.
- Shi Rongguang, Liu Fengzhi, Zheng Xiangqun, et al. Lead accumulation characteristics in soil-crop system under different land use types and health risk analysis[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2010, 29(3): 481-486. (in Chinese with English abstract)
- [12] 谢团辉, 郭京霞, 陈炎辉, 等. 福建省某矿区周边土壤-农作物重金属空间变异特征与健康风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(3): 544-554.
- Xie Tuanhui, Guo Jingxia, Chen Yanhui, et al. Spatial variability and health risk assessment of heavy metals in soils and crops around the mining area in Fujian Province, China[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2019, 38(3): 544-554. (in Chinese with English abstract)
- [13] 马建华, 马诗院, 陈云增. 河南某污灌区土壤-作物-人发系统重金属迁移与积累[J]. 环境科学学报, 2014, 34(6): 1517-1526.
- Ma Jianhua, Ma Shiyuan, Chen Yunzeng. Migration and accumulation of heavy metals in soil-crop-hair system in a sewage irrigation area, Henan, China[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2014, 34(6): 1517-1526. (in Chinese with English abstract)
- [14] 陈凤, 董泽琴, 王程程, 等. 锌冶炼区耕地土壤和农作物重金属污染状况及风险评价[J]. 环境科学, 2017, 38(10): 4360-4369.
- Chen Feng, Dong Zeqin, Wang Chengcheng, et al. Heavy metal contamination of soils and crops near a zinc Smelter[J]. Environmental Science, 2017, 38(10): 4360-4369. (in Chinese with English abstract)
- [15] 孟楠, 安平, 王萌, 等. 基于典型污灌区土壤筛选耐盐、Cd 低吸收小麦品种[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(3): 409-414.
- Meng Nan, An Ping, Wang Meng, et al. Screening low-Cd wheat cultivars characterized with high salinity tolerance for typical sewage irrigation soils[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2018, 37(3): 409-414. (in Chinese with English abstract)
- [16] 魏益华, 邱素艳, 张金艳, 等. 农业废弃物中重金属含量特征及农用风险评估[J]. 农业工程学报, 2019, 35(14): 212-220.
- Wei Yihua, Qiu Suyan, Zhang Jinyan, et al. Characteristic of heavy metal contents in agricultural wastes and agricultural risk assessment[J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE), 2019, 35(14): 212-220. (in Chinese with English abstract)
- [17] 王金霞, 李谢玲, 何清明, 等. 三峡库区典型农业区土壤重金属污染特征及风险评价[J]. 农业工程学报, 2018, 34(8): 227-234.
- Wang Jinxia, Li Xiuling, He Qingming, et al. Characterization and risk assessment of heavy metal pollution in agricultural soils in Three Gorge Reservoir Area[J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering (Transactions of the CSAE), 2018, 34(8): 227-234. (in Chinese with English abstract)
- [18] 周旭, 周安琪, 曹红斌, 等. 基于健康风险评价的白菜种植土壤中重金属的安全限量研究[J]. 农业环境科学学报, 2020, 39(6): 1213-1220.
- Zhou Xu, Zhou Anqi, Cao Hongbin, et al. Safety limits of heavy metals in planted soil of Chinese cabbage based on health risk assessment[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2020, 39(6): 1213-1220. (in Chinese with English abstract)
- [19] 杜俊杰, 李娜, 吴永宁, 等. 蔬菜对重金属的积累差异及低积累蔬菜的研究进展[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(6): 1193-1201.

- Du Junjie, Li Na, Wu Yongning, et al. Variation in accumulation of heavy metals in vegetables and low accumulation vegetable varieties: A review[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2019, 38(6): 1193-1201. (in Chinese with English abstract)
- [20] US EPA. Risk assessment guidance for superfund, Vol. 1 human health evaluation manual[R]. Washington, DC: Office of Emergency and Remedial Response, 1989: 15-28.
- [21] US EPA. Supplemental guidance for developing soil screening levels for superfund sites[R]. Washington, DC: Office of Emergency and Remedial Response, 2002.
- [22] 郭瞻宇, 张子杨, 蒋亚辉, 等. 不同品种芥菜对镉胁迫的敏感性分布及抗氧化特征[J]. *农业环境科学学报*, 2018, 37(12): 2660-2668.
- Guo Zhanyu, Zhang Ziyang, Jiang Yahui, et al. Assessment of variation in sensitivity and antioxidant characteristics of different mustard cultivars under different Cd stress levels[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2018, 37(12): 2660-2668. (in Chinese with English abstract)
- [23] 李晓婧, 郑向群, 郑顺安. 叶菜对 Cd 的富集特征及敏感性分布[J]. *环境科学研究*, 2017, 30(5): 720-727.
- Li Xiaojing, Zheng Xiangqun, Zheng Shun'an. Accumulation and sensitivity distribution of cadmium in leafy vegetables[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2017, 30(5): 720-727. (in Chinese with English abstract)
- [24] 孙聪, 陈世宝, 宋文恩, 等. 不同品种水稻对土壤中镉的富集特征及敏感性分布(SSD)[J]. *中国农业科学*, 2014, 47(12): 2384-2394.
- Sun Cong, Chen Shibao, Song Wenen, et al. Accumulation characteristics of cadmium by rice cultivars in soils and its species sensitivity distribution[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2014, 47(12): 2384-2394. (in Chinese with English abstract)
- [25] 程菁靓, 赵龙, 杨彦, 等. 我国长江中下游水稻产区铅污染分区划分方法研究[J]. *农业环境科学学报*, 2019, 38(1): 70-78.
- Cheng Jingliang, Zhao Long, Yang Yan, et al. Classification methods for typical lead-contaminated rice production areas of the middle and lower Yangtze River in China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2019, 38(1): 70-78. (in Chinese with English abstract)
- [26] 李永霞, 黄莹, 王宁, 等. 山东省某城市近郊生活垃圾堆场重金属污染特征与健康风险评价[J]. *环境化学*, 2014, 33(9): 1476-1483.
- Li Yongxia, Huang Ying, Wang Ning, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals for an open dumping site in inner suburbs in Shandong Province[J]. *Environmental Chemistry*, 2014, 33(9): 1476-1483. (in Chinese with English abstract)
- [27] Huang M L, Zhou S L, Sun B, et al. Heavy metals in wheat grain: Assessment of potential health risk for inhabitants in Kunshan, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2008, 405: 54-61.
- [28] Zhao H, Xia B, 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] 王世玉, 吴文勇, 刘菲, 等. 典型污灌区土壤与作物中重金属健康风险评估[J]. *中国环境科学*, 2018, 38(4): 1550-1560.
- Wang Shiyu, Wu Wenyong, Liu Fei, et al. Assessment of human health risks of heavy metals in the typical sewage irrigation areas[J]. *China Environmental Science*, 2018, 38(4): 1550-1560. (in Chinese with English abstract)
- [30] 任艳军, 马建军. 秦皇岛市蔬菜中重金属污染状况及健康风险分析[J]. *安全与环境学报*, 2013, 13(2): 81-86.
- Ren Yanjun, Ma Jianjun. Concentration analysis in vegetables of Qinhuangdao City and their health-threatening hazards assessment of heavy metals[J]. *Journal of Safety and Environment*, 2013, 13(2): 81-86. (in Chinese with English abstract)
- [31] 王晓南, 陈丽红, 王婉华, 等. 保定潮土铅的生态毒性及其土壤环境质量基准推导[J]. *环境化学*, 2016, 35(6): 1219-1227.
- Wang Xiaonan, Chen Lihong, Wang Wanhua, et al. Ecotoxicological effect and soil environmental quality criteria of lead in the fluvo-aquic soil of Baoding[J]. *Environmental Chemistry*, 2016, 35(6): 1219-1227. (in Chinese with English abstract)
- [32] 李洋, 张乃明, 魏复盛. 滇东镉高背景区菜地土壤健康风险评价与基准[J]. *中国环境科学*, 2020, 40(10): 4522-4530.
- Li Yang, Zhang Naiming, Wei Fusheng. A benchmark study on soil health risks of vegetable fields in a high-cadmium background area in eastern Yunnan[J]. *Chinese Environmental Science*, 2020, 40(10): 4522-4530. (in Chinese with English abstract)
- [33] 葛峰, 云晶晶, 徐珂珂, 等. 重金属铅的土壤环境基准研究进展[J]. *生态与农村环境学报*, 2019, 35(9): 1103-1110.
- Ge Feng, Yun Jingjing, Xu Keke, et al. Progress of research on environmental criteria for lead in soil[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2019, 35(9): 1103-1110. (in Chinese with English abstract)
- [34] 李继宁, 侯红, 魏源, 等. 株洲市农田土壤重金属生物可给性及其人体健康风险评估[J]. *环境科学研究*, 2013, 26(10): 1139-1146.
- Li Jining, Hou Hong, Wei Yuan, et al. Bioaccessibility and health risk assessment of heavy metals in agricultural soil from Zhuzhou, China[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2013, 26(10): 1139-1146. (in Chinese with English abstract)
- [35] 谢正苗, 李静, 陈建军, 等. 中国蔬菜地土壤重金属健康风险基准的研究[J]. *生态毒理学报*, 2006, 1(2): 172-179.
- Xie Zhengmiao, Li Jing, Chen Jianjun, et al. Study on guidelines for health risk to heavy metals in vegetable plantation soils in China[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2006, 1(2): 172-179. (in Chinese with English abstract)

Health risk assessment and benchmark of lead pollution in agricultural soils in East Yunnan, China

Liu Juan^{1,3}, Li Yang^{2,3}, Zhang Min^{2,3}, Zhang Naiming^{2,3*}, Han Dongjin^{2,3}

(1. College of Plant Protection, Yunnan Agricultural University, Kunming 650201, China;

2. College of Resource and Environmental Science, Yunnan Agricultural University, Kunming 650201, China;

3. Yunnan Soil Fertility and Pollution Restoration Laboratory, Kunming 650201, China)

Abstract: Heavy metal contamination of agricultural soil has posed risks and potential dangers to human and livestock, due mainly to most heavy metals are toxic in nature that can cause serious health illness, even at very low concentration. Excessive heavy metals, such as lead, enter the ecological system from the agricultural runoff and industrial discharges to agricultural products of food chain. Since both high geological background and mining activities simultaneously determine the agricultural soils in eastern Yunnan, the lead pollution in agricultural soil has drawn much widespread attention recently. In this study, a simultaneous sampling and analysis test was performed on agricultural soils and products in 6 cities (prefectures) in eastern Yunnan, China, aiming to characterize the lead accumulation in agricultural land. A health risk assessment model was used to evaluate the health risks that caused by lead in the agricultural soils in eastern Yunnan to residents. A species-sensitive distribution model (Log-logistic) was used to construct the species sensitivity distribution curve (SSD) of different crop varieties, and to reverse benchmark values of soil lead safety, according to the protection of 95% and 5% of crop categories. The result showed that: 1) The average content of lead in agricultural soils from various cities (prefectures) in eastern Yunnan was from more to less in the order of Honghe Prefecture, Qujing city, Zhaotong city, Wenshan prefecture, Yuxi city, Kunming city. The average lead content of Zhaotong city, Qujing city, Wenshan prefecture, and Honghe prefecture exceeded the screening value of lead pollution risk released by National Standards of China. 2) The total point exceeding rate of agricultural products in the 6 cities (prefectures) of eastern Yunnan was 11.9%, where the various types of crops showed the different ability of absorbing and enriching lead. Specifically, peas and peanuts from beans had higher lead accumulation capacity, followed by lettuce from rhizome, rape from leafy vegetables, and wheat from cereals. 3) The health risk assessment showed that there was no significant non-carcinogenic risk and carcinogenic risk to the residents. The non-carcinogenic risk of lead to children was higher than that of adults in various regions of eastern Yunnan, where the non-carcinogenic health risk index of various exposure routes was ranked from much to less in the order of hand-oral intake, skin exposure, breathing inhalation. 4) In the species sensitivity distribution model (Log-logistic), the benchmark values of soil lead health risk were inversely deduced for agricultural products in eastern Yunnan. When rhizomes, nightshades, planting beans, cereals crops were planted, the critical value of Pb were 13.0, 19.7, 35.1, 11.3, 18.1 mg/kg, respectively; and the alarm value of Pb were 269.5, 481.3, 500.7, 367.5, 560.3 mg/kg, respectively. It can provide scientific basis for establishing more accurate local standard and realizing the safe utilization of lead-contaminated soil in agricultural soil in eastern Yunnan and similar regions.

Keywords: soils; heavy metals; pollution; health risk benchmark; Species Sensitivity Distribution (SSD) curve method; Pb; East Yunnan