

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2017101304

张未利, JAMES Blessing, 陈炎辉, 等. 不同南方籼稻品种对土壤锑的富集及其健康风险评估[J]. 环境化学, 2018, 37(3): 544-551.

ZHANG Weili, JAMES Blessing, CHEN Yanhui, et al. Accumulation characteristics of soil antimony (Sb) by different Indica rice varieties and its health risk assessment in the southern areas of China[J]. Environmental Chemistry, 2018, 37(3): 544-551.

不同南方籼稻品种对土壤锑的富集及其健康风险评估

张未利 JAMES Blessing 陈炎辉 谢团辉 王 果*

(福建农林大学资源与环境学院, 福州, 350001)

摘 要 为探讨不同水稻品种对土壤锑(Sb)的富集能力, 本文采用福建部分区域 13 个籼稻品种的稻米和对应的表层土壤样品(138 对), 研究了不同品种水稻对土壤 Sb 的富集能力和累积特征, 并评估了稻米 Sb 对人类健康的潜在风险. 结果表明, 调查区域土壤 Sb 全量介于 0.12—1.02 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 其中 39.5% 的土壤 Sb 全量高于福建土壤 Sb 的背景值; 水稻不同部位 Sb 含量依次为: 根>>叶>茎>糙米; 不同水稻品种糙米中 Sb 含量介于 2.2 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ (宜优 673) 和 14.6 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ (Ⅱ优 673) 之间; 水稻对土壤有效 Sb 的平均富集系数表现出明显的品种差异, 常规稻(东联 5 号)和两系杂交稻(培杂泰丰、扬两优 6 号)的富集系数均处于中-低水平. 风险评估结果表明, 在未遭受 Sb 污染的农田上生产的籼稻稻米中的 Sb 不至于对人体健康构成危害.

关键词 锑, 土壤, 水稻, 富集, 健康风险.

Accumulation characteristics of soil antimony (Sb) by different Indica rice varieties and its health risk assessment in the southern areas of China

ZHANG Weili JAMES Blessing CHEN Yanhui XIE Tuanhui WANG Guo*

(College of Resources and Environment, Fujian Agriculture and Forestry University, Fuzhou, 350001, China)

Abstract: In order to study the accumulation ability of soil Sb by different indica rice varieties, a total of 138 rice grain samples of 13 indica rice varieties and the corresponding surface soil samples were collected from areas in Fujian Province. The accumulation factors and the potential risks of Sb in brown rice were assessed. The results showed that the total amount of Sb in soils ranged from 0.12—1.02 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, of which 39.5% was higher than the background value of Sb in Fujian soils. The Sb contents in different parts of rice decreased in the order of root>>leaf>stem>grain. The Sb concentration in brown rice varied between 2.2 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ (Yi-you 673) and 14.6 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ (Ⅱ-You 673). The bioaccumulation factors (BAF) of brown rice based on the available soil Sb differed with rice varieties, of which the BAF of the conventional rice (Dong-lian 5) and the two-line hybrid rice (Pei-za-tai-feng and Yang-liang-you 6) were at the low and middle level. The risk assessment showed that the rice produced from the selected areas may not possess health risks to residents.

Keywords: antimony (Sb), soil, rice, accumulation, health risk

锑(Sb)是元素周期表中 VA 的类金属元素, 在自然界中的含量很低. Sb 在土壤中的背景浓度为 0.2—2.3 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ^[1], 中国各省份土壤 A 层中 Sb 背景含量的几何平均值为 0.41—2.35 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ^[2]. 采矿、冶炼和化石燃料燃烧等是导致环境 Sb 污染的主要原因^[3-5]. 据估计, 1987 年美国工业释放了超过 1388 t

2017 年 10 月 13 日收稿 (Received: October 13, 2017).

* 通讯联系人, Tel: 13959183902, E-mail: 1400619353@qq.com

Corresponding author, Tel: 13959183902, E-mail: 1400619353@qq.com

的 Sb,其中 92.9%进入陆地^[6].我国是世界 Sb 储量最高的国家^[7],长期的开采不仅迅速消耗 Sb 资源,同时也对土壤产生了严重的污染.湖南锡矿山周围土壤中 Sb 含量高达 100.6—5045 mg·kg⁻¹^[8];广西河池铅锑矿冶炼区土壤中 Sb 含量也达 155—3043 mg·kg⁻¹^[9];成都燃煤电厂周围土壤中 Sb 含量介于 5.60—21.93 mg·kg⁻¹,已明显高于当地的土壤背景值^[10].

Sb 是一种有毒元素,人过量摄入会导致一系列的疾病,如癌症、心血管病、肝脏疾病以及呼吸系统疾病等^[11].Sb 会通过呼吸、饮食和皮肤接触等途径进入人体,而通过食用 Sb 污染的食物是人类摄入 Sb 的重要途径^[12-13].植物从土壤吸收 Sb,在不同器官中 Sb 浓度差异悬殊.有报道表明,植物叶中 Sb 的浓度可高达 4029 mg·kg⁻¹^[14],作物可食用部分 Sb 含量介于 0.004(菊苣)—1400(绿豆)mg·kg⁻¹^[6].在我国南方某 Sb 矿区附近,蔬菜中 Sb 浓度可达 2.05 mg·kg⁻¹^[15];贵州晴隆 Sb 矿区土壤上玉米 Sb 含量为 0.46 mg·kg⁻¹,茶叶 Sb 含量为 0.78 mg·kg⁻¹^[16].稻米是世界上消耗量最大的粮食之一.稻米中 Sb 的累积会对人体健康造成威胁,特别在食用稻米最多的亚洲国家,稻米中的 Sb 污染应引起重视^[6].有研究发现,稻米中的 Sb 浓度可高达 5.79 mg·kg⁻¹^[17],湖南锡矿山附近的稻米中 Sb 的浓度约为 0.47 mg·kg⁻¹^[18],我国某 Sb 矿区附近的稻米 Sb 含量介于 0.16 mg·kg⁻¹到 0.48 mg·kg⁻¹之间^[8].

水稻对 Sb 的累积与水稻品种有关^[19],利用不同水稻品种对 Sb 的累积差异来降低稻米中 Sb 的累积是 Sb 污染土壤上安全种植水稻的主要途径之一.但是目前这方面的研究还不足,国内外对土壤 Sb 的研究多聚焦于矿区土壤,对于一般农田(即不是矿区、冶炼厂等重要 Sb 污染源附近的农田)土壤 Sb 的研究甚少,且对土壤有效 Sb 和植物 Sb 之间的关系的研究也很缺乏.一般农田作为主要的粮食产区,其污染状况与人类健康息息相关.本文较系统地研究了 Sb 在一般农田土壤-水稻之间的转移和富集规律,以期对 Sb 污染土壤的修复和安全利用奠定基础.

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 样品采集

分别在福建省福清市、泰宁县、龙海市、龙岩市、南安市等 5 个县市的不同区域,采集了 13 个籼稻品种共计 138 个稻谷和对应的表层土壤样品.13 个籼稻品种包含常规稻和杂交稻,其中东联 5 号为常规稻,培杂泰丰、扬两优 6 号为两系杂交稻,其余的均为三系杂交稻.采样时,先选择采样小区,在小区内采集 3—5 株稻穗,部分连同水稻根、茎、叶一起采集.在稻株下采集耕层土壤样品,形成混合土样.将样品运回实验室.根、茎和叶样品洗净后晾干去除表面水分,用 70 ℃烘箱烘干至恒重.谷粒手工去稻壳,充分风干.根、茎、叶和糙米样品研磨过 0.5 mm 尼龙筛后保存至塑料自封袋中备用.土壤经自然风干后,剔除残体、碎石,先研磨过 2 mm 筛,取小部分<2 mm 土样用玛瑙研磨过 0.149 mm 筛,用塑料自封袋保存备用.

1.2 分析方法

土壤全 Sb 含量采用 HCl-HNO₃-HClO₄-HF 消解、ICP-MS(PE, NexION 300)测定^[20].测定过程中插入土壤标准样品(GSB11)进行质量控制,回收率为 91%—111%.土壤有效 Sb 含量参考有效钼的提取方法,采用草酸-草酸铵混合溶液浸提、ICP-MS 测定^[21].水稻根、茎、叶和稻米样品中 Sb 含量的测定采用 HNO₃-H₂O₂消解、ICP-MS 测定^[22].植物样品消解过程加入了国家大米标样(GBW10044)进行质量控制,回收率为 95%—130%.土壤机械组成、有机质含量、阳离子交换量以及 pH 值等采用常规方法测定^[23].所用 ICP-MS 的检出限>0.0013 mg·kg⁻¹.

本文用土壤有效度来衡量土壤 Sb 的有效性,其计算如下(公式(1)):

$$\text{土壤 Sb 的有效度}(\%) = \frac{\text{有效 Sb 含量}(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1})}{\text{全 Sb 含量}(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1})} \times 100\%$$

(1)

转移系数(TF)可以反映 Sb 在土壤-植物体系中的转移情况,Sb 由一个部位向另一个部位的转移系数(TF)等于后者 Sb 的含量与前者 Sb 含量的比值(公式(2))^[24].

$$TF_{\text{根-茎}} = \frac{\text{茎中 Sb 含量}(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1})}{\text{根中 Sb 含量}(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1})}$$

(2)

本文采用有效量基富集系数(BAF_{Avail})来衡量糙米对土壤 Sb 的富集能力,计算如下(公式(3))^[6]:

$$BAF_{\text{Avail}} = \frac{\text{糙米中 Sb 含量}(\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1})}{\text{土壤有效态 Sb 含量}(\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1})}$$

(3)

数据用 SPSS 22.0 统计软件和 Sigmaplot 12.5 进行分析和处理.

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 供试土壤中的 Sb 含量

全球土壤 Sb 的平均含量约为 $1\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[4], 中国土壤 Sb 的平均含量为 $1.06\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 均高于福建土壤 Sb 的背景值 ($0.55\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[25]. 在与锑有关的矿山或冶炼厂周边的土壤中, Sb 的浓度可高达数千 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[12-26]. 福建土壤的 Sb 含量处于中等水平, 介于 $0.50\text{—}1.50\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[27]. 表 1 为供试土壤的 Sb 含量及基本理化性质. 由表 1 可知, 供试土壤 Sb 全量介于 $0.12\text{—}1.02\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均浓度为 $0.47\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$. 供试土壤 Sb 全量的变异系数为 38.30%, 属于中等变异, 表明研究区域土壤中 Sb 含量在空间分布上不均匀, 可能局部存在点源污染或地球化学背景异常区. 对研究区域土壤 Sb 含量进行统计, 发现土壤 Sb 全量超过福建土壤 Sb 背景值的占 39.5%, 主要分布在南安市和龙海市. Sb 全量均低于《农用地土壤环境质量标准(三次征求意见稿)》所规定的农用地土壤污染物中总锑的含量限值($3.0\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$).

表 1 土壤 Sb 含量及理化性质
Table 1 The Sb content and physio-chemical properties of the soils

项目 project	最小值 Minimum	最大值 Maximum	平均值 Mean	标准差 Standard deviation	变异系数 Coefficient of variation
全量 Sb/($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	0.12	1.02	0.47	0.18	38.30 %
有效 Sb/($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)	0.02	0.27	0.12	0.06	50.00 %
pH	4.48	7.59	5.49	0.59	10.75%
有机质/($\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	7.81	68.76	28.47	8.49	29.82 %
CEC/($\text{cmol}\cdot\text{kg}^{-1}$)	1.47	52.00	12.61	7.36	58.37%
粘粒<0.002mm/%	1.88	55.81	20.79	12.34	59.36%
游离氧化铁/($\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	1.82	31.82	12.92	4.37	33.82 %
土壤 Sb 的有效度/%	9.77	52.79	25.54	7.94	31.09%

为进一步探讨土壤性质对土壤 Sb 富集的影响, 分区域对样本进行土壤性质与土壤 Sb 富集影响的分析, 发现泰宁县 24 个土壤样品的土壤性质与土壤 Sb 富集能力之间有显著相关性. 分析 5 个研究区域的土壤环境发现, 泰宁县的土壤 pH 均值 (4.96 ± 0.22) 小于福清市 (6.15 ± 0.67)、龙海市 (5.63 ± 0.52)、龙岩市 (5.82 ± 0.52) 和南安市 (5.38 ± 0.24), 由此推测, 在强酸性土壤环境下, 土壤性质对土壤 Sb 富集能力的影响更为显著, 这可能是由于当 pH 升高时, 土壤的还原溶解对释放 Sb 的影响更大, 因而增加了 Sb 在土壤中活动的复杂性.

泰宁县土壤性质与土壤全量 Sb 线性回归分析结果如 1a 所示, 由图 1a 可知, 土壤全 Sb 含量与 pH 值呈负相关关系, 即较低的土壤 pH 有利于土壤 Sb 的累积, 这与低 pH 值条件下土壤对 Sb 的吸附较强有关. 有研究表明, 当 $\text{pH}>6$ 时, Fe、Al、Mn 等氧化物对三价 Sb 的吸附量随 pH 的升高而降低^[28], 高岭石对五价 Sb 的吸附作用也随 pH 的升高而降低^[29]. 较低的 pH 有利于土壤对 Sb 的吸附, 从而增加土壤 Sb 的累积. 土壤全量 Sb 与 CEC 之间呈显著正相关(图 1b), 即土壤 CEC 的提高有利于土壤 Sb 的富集, 这是由于 Sb 的无机形态主要以阳离子的形式存在^[30], 因此 CEC 高的土壤对 Sb 吸附量增强, 有利于 Sb 在土壤中的累积. 土壤全量 Sb 与有机质含量之间呈显著正相关(图 1c), 可能由于土壤中的腐殖酸容易与 Sb 结合从而提高了土壤中的 Sb 含量^[31]. 有研究表明, 高有机质土壤在特定环境下对三价 Sb 的吸附比例达到全 Sb 的 34%^[32], 对五价 Sb 的吸附比例达到所加入 Sb 含量的 56%^[33]. 土壤全量 Sb 与土壤质地、游离氧化铁之间无显著相关.

土壤性质不仅影响土壤 Sb 的富集, 还影响土壤 Sb 的有效性^[34]. 土壤有效 Sb 与土壤全 Sb 之间存在极显著的正相关($r=0.774^{**}$, $n=138$). 有报道显示土壤中水溶态 Sb 含量随土壤 pH 的升高而升高^[35], 土壤 pH 会影响 Sb 在土壤中的形态和溶解度, 有机质含量会影响土壤对 Sb 的吸附, 从而影响 Sb 在土壤

中的有效度^[31].由表 1 可知,供试土壤中的有效 Sb 含量差异明显.对泰宁县 24 个土壤样品中土壤性质与土壤 Sb 的有效度进行线性回归分析,结果表明土壤 Sb 的有效度与 pH 值呈显著负相关(图 2a),与 CEC 呈显著正相关(图 2b),这与土壤全 Sb 随土壤性质的变化趋势是吻合的,土壤全 Sb 含量越高,有效 Sb 含量就越高.分析未发现土壤 Sb 的有效度与土壤质地、游离氧化铁和有机质之间有显著相关性.

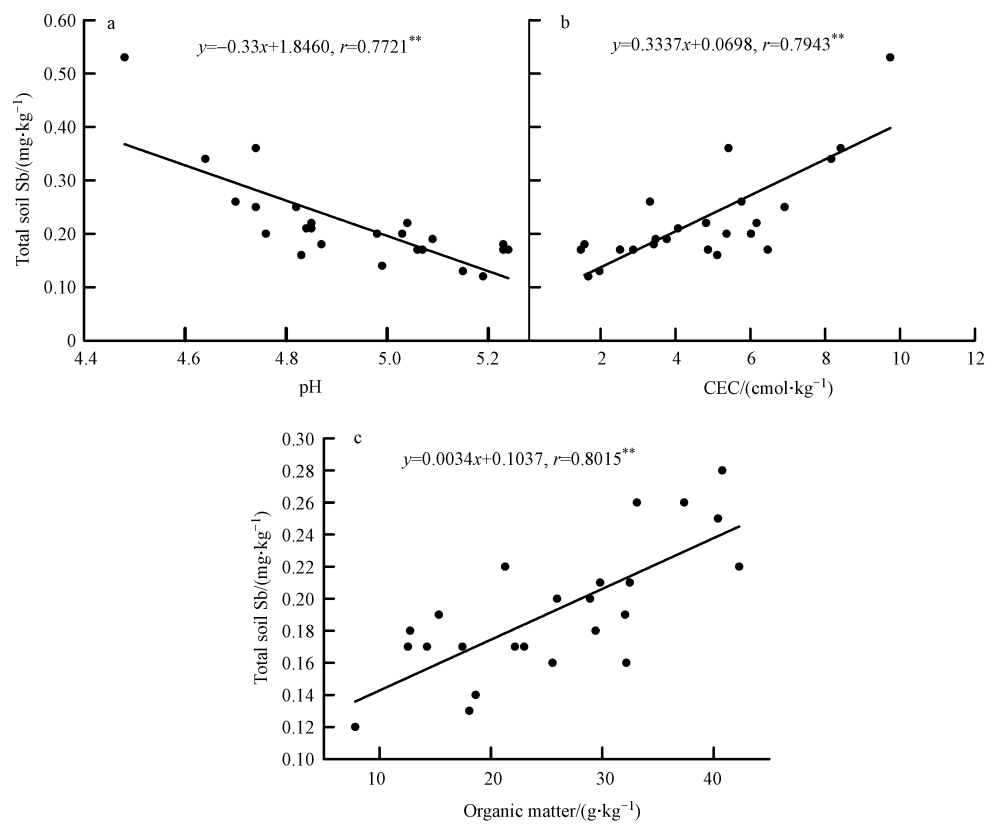


图 1 土壤全量 Sb 与土壤性质之间的关系

* * 表示在 $P<0.01$ 水平上显著相关

Fig.1 Relationship between total soil Sb and the main soil properties

* * Indicate significant correlation ($P<0.01$)

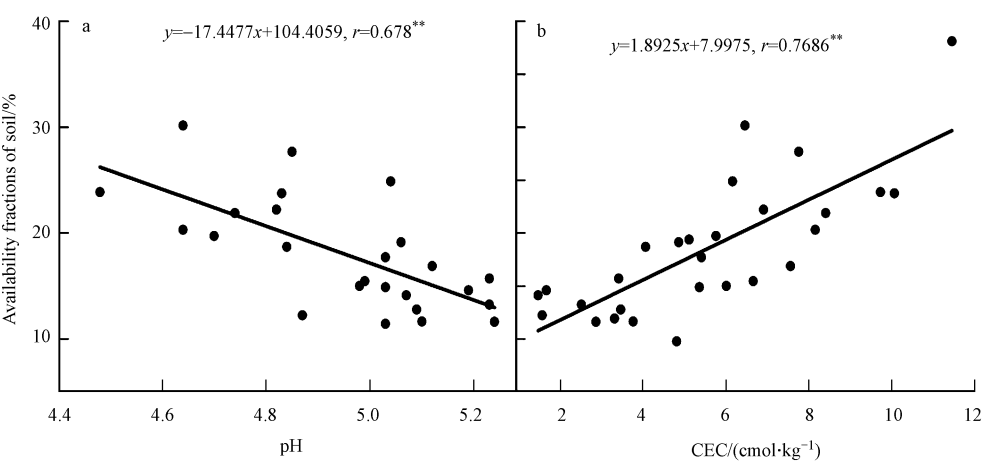


图 2 土壤 Sb 的有效度与土壤性质之间的关系

Fig.2 Relationship between the Sb availability and the main soils properties

2.2 不同品种水稻中 Sb 的含量

表 2 列出了供试 13 个籼稻品种糙米中 Sb 的含量.由表 2 可见,糙米中 Sb 含量介于 2.2—14.6 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$;不同水稻品种糙米中 Sb 含量差异很大,最高的是Ⅱ优 673,达 14.6 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,最低的是宜优 673,仅为 2.2 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$.研究表明,Sb 在水稻可食用部分的累积与水稻品种密切相关^[36],水稻籽粒中的 Sb 含量最高可达 5.79 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[17] 远远高于本研究水稻糙米中的 Sb 含量.

表 2 不同籼品种的糙米 Sb 含量
Table 2 The Sb content in the brown rice grainsfor each rice variety

籼稻品种 Indica rice varieties	糙米 Sb 含量 Sb content in the brown rice/($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)	籼稻品种 Indica rice varieties	糙米 Sb 含量 Sb content in the brown rice/($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$)
岳优 9113(<i>n</i> =7)	10.0±0.8b	培杂泰丰(<i>n</i> =6)	13.0±2.1c
甬优 9(<i>n</i> =10)	10.3±1.2b	特优 627(<i>n</i> =6)	10.0±1.5b
扬两优 6 号(<i>n</i> =15)	9.9±0.8b	宜优 673(<i>n</i> =8)	2.2±1.2a
Ⅱ优 673(<i>n</i> =5)	14.6±6.3c	特优 009(<i>n</i> =19)	8.9±6.7b
宜香 2292(<i>n</i> =13)	9.8±0.6b	宜优 115(<i>n</i> =5)	10.4±1.7b
Ⅱ优 3301(<i>n</i> =11)	9.1±1.4b	天优 998(<i>n</i> =12)	9.6±0.8b
东联 5 号(<i>n</i> =21)	7.7±5.6b		

注:数据以平均值±标准偏差显示;不同小写字母表示差异性显著;*n* 表示样品数量.
Note: Values are given as mean±SD; Lowercase and capital letters indicate significant differences (*P*<0.05); *n* indicates sample quantities.

为了探讨 Sb 在水稻不同部位中的分布情况,选取宜优 673、东联 5 号和特优 009 的根、茎、叶和糙米样品进行了进一步的分析.图 3 显示了不同水稻品种根、茎、叶、糙米中 Sb 含量的分布.由图 3 可知,3 个水稻品种不同部位 Sb 含量均表现为根>>叶>茎>糙米.这在其它的研究中也有类似发现,何孟常等发现 Sb 在水稻器官中的分布规律为根>茎、叶>>谷壳>糙米^[37],Ren 等研究发现,水稻根部的 Sb 浓度远远大于茎、叶^[17],向猛等研究发现水稻根系 Sb 的富集能力大于水稻茎叶^[38].3 个水稻品种间的差异表现为:(1)根中 Sb 浓度:东联 5 号(常规稻)>宜优 673(杂交稻)>特优 009(杂交稻);(2)茎中 Sb 浓度在 3 个品种间无明显差异;(3)叶中 Sb 浓度:宜优 673、特优 009(杂交稻)>东联 5 号(常规稻);(4)糙米中 Sb 浓度:东联 5 号(常规稻)>宜优 673、特优 009(杂交稻).

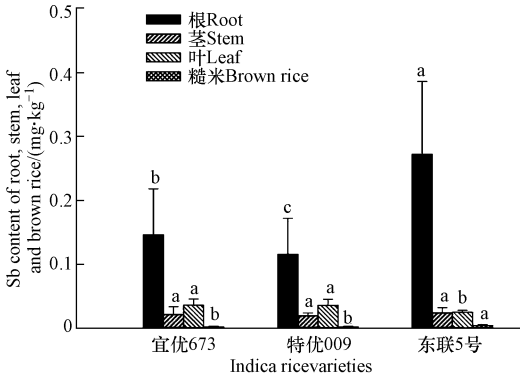


图 3 不同水稻品种根、茎、叶、糙米中 Sb 含量
不同小写字母表示不同水稻品种相同部位锑含量之间有显著性差异 (*P*<0.05)

Fig.3 The content of Sb in different parts of rice
Lowercase letters indicate significant differences (*P*<0.05) between Sb in one part of different rice varieties

2.3 Sb 在水稻体内的迁移与累积

表 3 列出了 Sb 在宜优 673、东联 5 号和特优 009 等 3 种水稻品种中的转移系数.由表 3 可知,宜优 673、特优 009、东联 5 号等 3 种水稻品种中 Sb 的转移系数表现出相同的特征: $\text{TF}_{\text{土-根}}$ 大于 $\text{TF}_{\text{根-茎}}$ 、 $\text{TF}_{\text{根-叶}}$ 、 $\text{TF}_{\text{茎-糙米}}$ 、 $\text{TF}_{\text{叶-糙米}}$,并表现出显著差异性.由此可知,对 3 种水稻品种而言,土壤中的 Sb 均较易被根系吸收,而不易在根、茎、叶及糙米中转移.

目前,对于不同水稻品种中 Sb 的吸收、转运的研究较少,Cai 等研究发现,Sb 在梗稻中从根到茎的转移能力比在粳稻中更显著^[19].从表 3 可以看出,常规稻与杂交稻在土-根和叶-糙米之间的转移明显的不同,东联 5 号的 TF_{土-根}、TF_{叶-糙米} 高于宜优 673 和特优 009.由此可见,常规稻对土壤 Sb 的吸收能力强于杂交稻,常规稻根中的 Sb 较易进入叶片,而叶片中的 Sb 较易进入稻米.

表 3 Sb 在土壤-水稻体系中的转移系数
Table 3 Transfer factors of Sb in the soil-rice system

籼稻品种 Indica rice varieties	TF _{土-根}	TF _{根-茎}	TF _{根-叶}	TF _{茎-糙米}	TF _{叶-糙米}
宜优 673 (n=8)	0.966±0.388Aa	0.210±0.172Ab	0.277±0.125Ab	0.109±0.052Ab	0.070±0.045Ab
特优 009 (n=9)	0.926±0.324Aa	0.211±0.102Abc	0.375±0.200Ab	0.130±0.056Abc	0.073±0.037Ac
东联 5 号 (n=13)	1.714±0.809Ba	0.144±0.077Ab	0.114±0. 073Bb	0.200±0.103Ab	0.175±0.065Bb

注:数据以平均值±标准偏差显示;不同大写字母表示不同品种同一 TF 之间差异性显著($P<0.05$),不同小写字母表示同一品种不同 TF 之间差异性显著($P<0.05$).

Note: Values are given as mean±SD; capital letters indicate significant differences ($P<0.05$) between TF in one part of different rice varieties, and Lowercase letters indicate significant differences ($P<0.05$) between TF in different parts of one rice variety.

图 4 反应了 13 个籼稻品种对土壤 Sb 的平均富集系数.从图 4 可见,水稻对土壤 Sb 的平均富集能力表现出明显的品种差异,其中Ⅱ优 673 的平均富集系数最高(0.45±0.28),Ⅱ优 3301、甬优 9 和特优 627 的平均富集系数次之(分别为 0.30±0.17,0.29±0.11,0.29±0.16),其余水稻品种的平均富集系数较低(小于 0.09).由图 4 可知,常规稻(东联 5 号)和两系杂交稻(培泰泰丰、扬两优 6 号)对 Sb 的富集能力均处于中-低水平,而三系杂交稻对 Sb 的富集能力大部分高于常规稻和两系杂交稻,小部分低于常规稻和两系杂交稻.

2.4 稻米中 Sb 的健康风险

世界卫生组织(WHO)规定土壤可承受的最大 Sb 浓度为 36 mg·kg⁻¹^[39].我国《农用地土壤环境质量标准》(第三次征求意见稿)中规定农用地土壤 Sb 的限量为 3.0 mg·kg⁻¹.美国环境保护局(USEPA)规定了人体对 Sb 的暴露参考剂量为 0.4 μg·kg⁻¹^[40],WHO 规定人体 Sb 的日最大摄入量为 360 μg·d⁻¹^[41].Wu 等在对世界最大的镉矿区进行调查和 Sb 风险评估的基础上,提出大米中 Sb 浓度不应超过 305 μg·kg⁻¹^[18].每日通过食用大米 Sb 的摄入量的计算按照公式(4):

Sb 的摄入量(μg·d⁻¹)=糙米 Sb 含量(μg·kg⁻¹)×人均稻米摄入量(g·d⁻¹)/1000 (4)

式中,人均稻米摄入量为 390 g·d⁻¹^[19].

表 4 列出了每日通过食用大米 Sb 的摄入量.由表 4 可知,成人每日从不同水稻品种稻米中摄入的 Sb 含量介于 0.9—5.7 μg,远远低于 Sb 的日最大允许摄入量(360 μg·d⁻¹).本研究中稻米 Sb 的最高含量是 14.6 μg·kg⁻¹(Ⅱ优 673),也远远低于 Wu 等提出的稻米中 Sb 允许浓度 305 μg·kg⁻¹.由此看来,在本区域一般农田(即不是矿区、冶炼厂等重要 Sb 污染源附近的农田)上,籼稻稻米中累积的 Sb 不至于对人体健康构成危害.

3 结论(Conclusion)

(1)调查区土壤 Sb 全量介于 0.12—1.02 mg·kg⁻¹,平均含量为 0.47 mg·kg⁻¹,其中超过福建土壤 Sb 背景值的占供试土壤的 39.5%,主要分布在南安市和龙海市.土壤 Sb 全量均低于农用地土壤污染物中

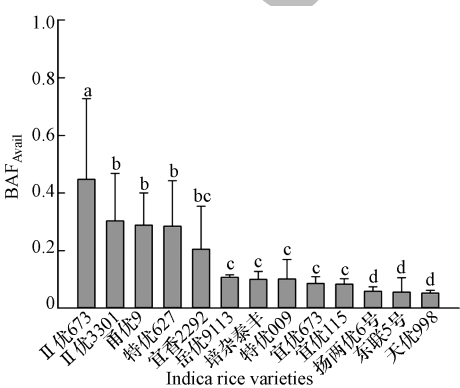


图 4 水稻糙米对土壤 Sb 富集系数
Fig.4 Thebioaccumulation factors based on available soil Sb for each rice variety

总锑的含量限值($3.0\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$).土壤全量 Sb 与 pH 值呈显著负相关,与 CEC 和有机质均呈显著正相关.土壤 Sb 的有效度与 pH 值呈显著负相关,与 CEC 呈显著正相关.

表 4 不同水稻品种 Sb 的摄入量
Table 4 Estimated Daily intake of Sb from brown rice consumption

籼稻品种 Indica rice varieties	Sb 的摄入量 Daily intake of Sb/ ($\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)	籼稻品种 Indica rice varieties	Sb 的摄入量 Daily intake of Sb/ ($\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)
岳优 113($n=7$)	$3.9\pm0.3\text{c}$	培杂泰丰($n=6$)	$5.1\pm0.8\text{d}$
甬优 9($n=10$)	$4.0\pm0.5\text{c}$	特优 627($n=6$)	$3.9\pm0.6\text{c}$
扬两优 6 号($n=15$)	$3.9\pm0.3\text{c}$	宜优 673($n=8$)	$0.9\pm0.5\text{a}$
Ⅱ优 673($n=5$)	$5.7\pm2.5\text{d}$	特优 009($n=19$)	$3.5\pm2.6\text{c}$
宜香 2292($n=13$)	$3.8\pm0.2\text{c}$	宜优 115($n=5$)	$4.1\pm0.7\text{c}$
Ⅱ优 3301($n=11$)	$3.9\pm0.6\text{c}$	天优 998($n=12$)	$3.7\pm0.36\text{c}$
东联 5 号($n=21$)	$3.0\pm2.2\text{b}$	—	—

(2)水稻不同部位 Sb 含量表现出根>>叶>茎>糙米的规律,糙米中 Sb 的含量介于 $2.2\text{—}14.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,最高的是Ⅱ优 673($14.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$),最低的是宜优 673($2.2\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$).不同水稻品种的糙米对土壤有效 Sb 的富集系数最高的是Ⅱ优 673(0.45 ± 0.28),最低的是天优 998(0.05 ± 0.01),相差 9 倍.常规稻(东联 5 号)和两系杂交稻(培杂泰丰、扬两优 6 号)对 Sb 的富集能力均处于中-低水平.

(3)估算出成人每日通过食用各品种稻米而摄入的 Sb 介于 $0.9\text{—}5.7\text{ }\mu\text{g}$ 之间,远低于人体 Sb 的日最大摄入量,因此在一般农田上生产的稻米中的 Sb 不会对人体健康构成危害.

参考文献 (References)

[1] KABATAPENDIAS A, PENDIAS H K.Trace elements in soils and plants[M].4th Edition.CRC Press,1984:951-974.

[2] 国家环保总局,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,1990:466-467.
State Environmental Protection Administration,China National Environmental Monitoring Center. Background value of soil element in China [M].Beijing: China Environmental Science Press,1990:466-467 (in Chinese).

[3] TELFORD K,MAHER W,KRIKOWA F,et al.Bioaccumulation of antimony and arsenic in a highly contaminated stream adjacent to the Hillgrove Mine, NSW, Australia[J].Environmental Chemistry, 2009, 6(2):95-99.

[4] FILELLA M,BELZILE N,CHEN Y W.Antimony in the environment: A review focused onnatural waters: I.Occurrence[J]. Earth Science Reviews,2002,57(1-2):125-176.

[5] QI C,LIU G,CHOU C L,et al.Environmental geochemistry of antimony in Chinese coals[J].Science of the Total Environment, 2008, 389 (2-3):225-234.

[6] PIERATT A,SHAHID M,SEJALON D N,et al. Antimony bioavailability: Knowledge and research perspectives for sustainable agricultures [J]. Journal of Hazardous Materials,2015,289:219-234.

[7] 罗英杰,王小烈,柳群义,等.中国锑资源产业发展形势及对策建议[J].资源与产业,2016,18(1):75-81.
LUO Y J,WANG X L,LIU Q Y,etal.Development actuality and suggestion of China's antimony industry[J].Resources and Industries,2016, 18(1):75-81 (in Chinese).

[8] 何孟常,季海冰,赵承易,等.锑矿区土壤和植物中重金属污染初探[J].北京师范大学学报(自然科学版),2002,38(3):417-420.
HE M C,JI H B,ZHAO C Y,et al.Preliminary study of heavy metal pollution in soil and plant near antimony mine area[J].Journal of Beijing Normal University Natural Sciences,2002,38(3):417-420 (in Chinese).

[9] 项萌,张国平,李玲,等.广西铅锑矿冶炼区土壤剖面及孔隙水中重金属污染分布规律[J].环境科学,2012,33(1):266-272.
XIANG M,ZHANG G P,LI L et al.Characteristics of heavy metals in soil profile and pore water around Hechiantimony-lead smelter, Guangxi, China[J].Environmental Science,2012,33(1):266-272 (in Chinese).

[10] 郎春燕,王登菊,黄军.成都燃煤电厂周围土壤中砷、锑、铅、锌分布特征及污染评价[J].环境化学,2011, 30(8):1439-1444.
LANG C Y,WANG D J,HUANG J.Distribution characteristics and pollution evaluation of As,Sb,Pb and Zn in soil around the coal-fired power plant in Chengdu[J].Environmental Chemistry,2011, 30(8):1439-1444 (in Chinese).

[11] WHO. Guidelines for drinking-water quality, Volume 2:Health criteria and other supporting information[M].2th Edition. Geneva: World Health Organization,1996.

[12] AINSWORTH N, COOKE J A, JOHNSON M S. Distribution of antimony in contaminated grassland: 1-vegetation and soils [J]. Environmental Pollution, 1990, 65(1):65-77.

[13] HAMMEL W,DEBUS R, STEUBING L. Mobility of antimony in soil and its availability to plants [J].Chemosphere, 2000,41(11): 1791-1798.

[14] OKKENHAUG G,ZHU Y G,LUO L,et al.Distribution, speciation and availability of antimony (Sb) in soils and terrestrial plants from an active Sb mining area[J].Environmental Pollution,2011,159(10), 2427-2434.

- [15] 袁程,张红振,池婷,等.中南某锑矿及其周边农田土壤与植物重金属污染研究[J].土壤,2015,47(5):960-964.
YUAN C,ZHANG H Z,CHI T,et al.Heavymetal and metalloid pollution of soils and plants in typical antimony mining area of central-south China[J].Soils,2015,47(5):960-964(in Chinese).
- [16] 陈秋平,胥思勤,陈洁薇,等.锑矿区土壤重金属污染及植物累积特征[J].环境科技,2014,27(2):1-4.
CHEN Q P,XU S Q,CHEN J W,et al.The Pollution of heavymetals in soils and characteristics of plants accumulation in antimony mining Area[J].Environmental Science and Technology,2014,27(2):1-4(in Chinese).
- [17] REN J H,MA L Q,SUN H J,et al. Antimony uptake, translocation and speciation in rice plants exposed to antimonite and antimonate[J]. Science of the Total Environment, 2014, 475:83-89.
- [18] WU F, FU Z, LIU B, et al. Health risk associated with dietary co-exposure to high levels of antimony and arsenic in the world's largest antimony mine area[J].Science of the Total Environment, 2011, 409(18):3344-3351.
- [19] CAI F,REN J,TAO S,et al.Uptake,translocation and transformation of antimony in rice (*Oryza sativa* L.) seedlings[J]. Environmental Pollution, 2015,209:169-176.
- [20] NING Z,XIAO T,XIAO E.Antimony in the soil-plant system in an sb mining/smelter area of southwest China[J].International Journal of Phytoremediation,2015,17(11):1081-1089.
- [21] 冯信平,田家金.ICP-MS法测定土壤中有效钼不确定度的研究[J].安徽农业科学,2010,38(36):20698-20700.
FENG X P,TIAN J J.Uncertainty evaluation available Mo in soil by ICP-MS[J].Journal of Anhui Agricultural Science,2010,38(36):20698-20700(in Chinese).
- [22] CORRALES I,BAECEOLO J, BECH J,et al.Antimony accumulation and toxicity tolerance mechanisms in Trifolium species [J].Journal of Geochemical Exploration,2014,147:167-172.
- [23] 鲁如坤.土壤农业化学分析方法[M].北京:中国农业科技出版社,2000:146-195.
LU R K.Soil agricultural chemical analysis method[M].Beijing:China Agricultural university Press,2000:146-195(in Chinese).
- [24] QIAN Y,GALLAGHER FJ,FENG H,et al.Vanadium uptake and translocation in dominant plant species on an urban coastal brownfield site [J].Science of the Total Environment, 2014, 476-477:696-704.
- [25] 齐文启,曹文山.锑(Sb)的土壤环境背景值研究[J].土壤通报,1991,22(5):209-210.
QI W Q,CAO W S.Study of soil environmental background value of antimony (Sb)[J].Chinese Journal of Soil Science,1991,22(5):209-210(in Chinese).
- [26] HE M C. Distribution and phytoavailability of antimony at an antimony mining and smelting area, Hunan, China[J]. Environmental Geochemistry and Health,2007,29(3):209-219.
- [27] HE M C,WANG X Q,WU F C,etal.Antimony pollution in China[J].Science of the Total Environment,2012,421-422(3):41-50.
- [28] THANABALASINGAM P, PICKERING W F. Specific sorption of antimony (III) by the hydrous oxides of Mn, Fe and Al[J]. Water, Air and Soil Pollution,1990,49,175-185.
- [29] XI J H, HE MC,LIN C Y.Adsorption of antimony(V) on kaolinite as a function of pH, ionic strength and humic acid[J].Environmental Earth Sciences, 2010, 60(4):715-722.
- [30] 何孟常,云影.锑矿区土壤中锑的形态及生物有效性[J].环境化学,2003,22(2):126—130.
HE M C,YUN Y.The speciation and bioavailability of antimony in the soils near antimony mine area[J].Environmental Chemistry,2003,22(2):126—130(in Chinese).
- [31] WILSON S C,LOCKWOOD P V, ASHLEY P M, et al. The chemistry and behaviour of antimony in the soil environment with comparisons to arsenic: A critical review[J].Environmental Pollution, 2010,158(5):1169-1181.
- [32] ETTLER V, MIHALJEVIC M, SEBEK O, et al. Antimony availability in highly polluted soils and sediments - A comparison of single extractions[J]. Chemosphere, 2007, 68(3):455-463.
- [33] TIGHE M, ASHLEY P, LOCKWOOD P, et al. Soil, water, and pasture enrichment of antimony and arsenic within a coastal flood plain system[J]. Science of the Total Environment, 2005, 347(1-3):175-186.
- [34] CHEN B,KRACHLER M,SHOTYK W.Determination of antimony in plant and peat samples by hydride generation-atomic fluorescence spectrometry (HGAFS)[J].Journal of Analytical Atomic Spectrometry,2003,18:1256-1262.
- [35] 李玲,张国平,刘虹,等.广西大厂矿区土壤-植物系统中Sb、As的迁移转化特征[J].环境科学学报,2010,30(11):2305-2313.
LI L,ZHANG G P,LIU H,et al.Distribution and mobility of Sb and As in topsoils and plants in the Dachang multi-metalliferous mine area, Guangxi, China[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2010,30(11):2305-2313(in Chinese).
- [36] HUANG Y, CHEN Z, LIU W. Influence of iron plaque and cultivars on antimony uptake by and translocation in rice (*Oryza sativa* L.) seedlings exposed to Sb(III) or Sb(V)[J]. Plant & Soil, 2012, 352(1-2):41-49.
- [37] 何孟常,谢南去,余维德,等.土壤锑对水稻生长的影响及残留积累规律研究[J].农业环境保护,1994,13(1):18-22.
HE M C,XIE N Q,YU W D,et al.The influence of soil antimony on the growth of rice and the study of residual accumulation[J]. Agricultural Environmental Protection,1994,13(1):18-22(in Chinese).
- [38] 向猛,黄益宗,蔡立群,等.水稻吸收积累硅和锑的相互影响水培试验研究[J].农业环境科学学报,2014,33(11):2090-2097.
XIANG M, HUANG Y Z, CAI L Q, et al.Interactive effects of antimony and silicon on their uptake and accumulation by rice seedling in solution culture[J].Journal of Agro-Environment Science, 2014, 1(11):2090-2097(in Chinese).
- [39] CHANG A, PAN G, PAGE AL, et al. Developing human health-related chemical guidelines for reclaimed water and sewage sludge applications in agriculture[R].World Health Organization; Division of Environmental Health,2002:77-78.
- [40] USEPA. CASRN 7440-36-0Antimony [S]. Integrated risk information system,1991.
- [41] WHO.Guidelines for drinking-water quality, third edition, incorporating first and second addenda[M].Geneva: World Health Organization; 2008.a