文章编号：1001-1749(2020)06-0794-11

姜湖贡米产地土壤—作物系统重金属元素分布、累积特征

于林松[1,2,3,4]，刘洪波[1,3,4]，万　方[1,3]，
邵丽娟[1,3]，康桂玲[1,3]，胡尊方[1,3]

（1.山东省物化探勘查院，济南　250013；2.成都理工大学　地球科学学院，成都　610059；
3.山东省土壤地球化学工程实验室，济南　250013；4. 山东省地质勘查工程技术研究中心，济南　250013）

摘　要：姜湖贡米是山东省名优特及国家地理标志农产品，通过全面采集该区土壤—作物系统样品，研究 Pb、Cd、Hg、As 元素在土壤—作物系统中的分布及累积特征。发现：①表层土壤及根系土、籽粒中重金属元素含量均低于相应限量标准值，土壤生态环境及食品安全风险低；②根系土相对表层土壤重金属元素发生了一定的富集，根系土重金属富集因子表明，As、Pb 与自然成土过程有关，Hg、Cd 可能受到人为来源影响；③水稻和小麦籽粒中重金属生物富集系数存在 Cd＞Hg＞As＞Pb 的规律，茎叶中存在 Cd＞Hg＞As、Pb 的规律，表明水稻和小麦对 Cd、Hg 的累积程度高于 As、Pb；④土壤—作物系统重金属元素富集系数由根系土—茎叶—籽实递减，Pb、As、Hg 的分异明显，而 Cd 在水稻和小麦不同部分间生物富集系数波动较大。此外，水稻和小麦重金属富集系数与部分根系土组份的相关性表明，土壤肥力的提升可能会促进水稻和小麦对重金属的吸收。

关键词：郯城县；姜湖贡米；土壤—作物系统；水稻和小麦；重金属元素
中图分类号：P 595　　**文献标志码**：A　　**DOI**：10.3969/j.issn.1001-1749.2020.06.14

0　引言

农作物产地土壤环境质量安全直接影响农产品质量，农产品重金属污染与产地土壤环境紧密相关[1]。因此，对农产品产地进行土壤—作物系统重金属元素分布、迁移转化及其影响因素研究，将有力支撑调查区重金属元素生态健康风险评估。相关研究表明[2-6]，在不同的作物种植区，由于区域地质及元素地球化学背景、土壤理化性质、土壤类型及地貌特征等多重因素的差异，重金属元素在不同作物系统中的分布及迁移积累呈现不同特征。

姜湖贡米是山东省临沂市郯城县特产，其米质晶莹剔透，软筋香甜，适口性强，营养丰富，加之特定的产地条件和丰富的人文历史，2012 年 8 月被确认为国家农产品地理标志产品。2011 年—2018 年间，前人在临沂地区开展了不同程度的农业地质调查评价工作[7-10]，主要涉及区域性土壤质量调查及农作物安全性评价等方面，而姜湖贡米产地土壤—作物系统中重金属相关研究尚未见报道。

笔者通过对姜湖贡米产地水稻及小麦土壤—作物系统中 Pb、Cd、Hg、As 等重金属元素分布特征的

收稿日期：2019-10-26
基金项目：山东省地质勘查基金项目（鲁勘字(2018)49）；山东省地矿局地质勘查项目（KC2018010）
第一作者：于林松(1980—)，男，博士，高级工程师，主要从事地质及地球化学相关工作，E-mail：sean_yls@163.com。

研究，主要探讨了土壤—作物系统重金属元素的分布、积累影响因素，以期为姜湖贡米产地生态环境保护、绿色农产品质量安全监测提供借鉴。

1　材料与方法

1.1　研究区概况

研究区位于山东省最南部（图 1），毗邻江苏省新沂市。姜湖贡米产地—郯城县归昌乡辖区面积为 60 km^2。地理坐标为：118°13′10″E～118°19′53″E，34°28′24″N～34°34′23″N。属东亚暖温带季风气候，四季分明，雨热同季；年平均气温 13.2℃，年平均降雨量为 843 mm（临沂气象站，1988 年－2017 年多年监测）。研究区位于沂沭河冲积平原中部，地势平坦，平均海拔为 38.0 m。成土母质主要为第四纪临沂组河流冲积相碎屑沉积（Qh*l*）和黑土湖组湖沼相沉积（Qh*h*），主要岩性分别为粘土质粉砂、含砾中粗砂和粉砂质粘土和粘土质粉砂[11]。根据多目标区域化探土壤地球化学区划[12]，研究区属“鲁中南－苏北略偏碱性土壤分布区”，土壤类型以水稻土为主，中部沿墨河有粘性潮土分布。耕地类型有水浇地、水田、旱地。粮食作物主要为水稻和小麦，一年两熟，稻麦轮作，其中，水稻种植历史悠久，素有“鲁南米仓、郯城归昌”之称。

1.2　样品采集、制备与分析

以全国第二次土地调查之土地利用现状图为底图，按乡镇级调查精度布设样点[13]，采集姜湖贡米产地表层土壤样品 1 279 件，采集密度为 21 点/km^2；根据研究目标—姜湖贡米，在满足调查精度的前提下，以水稻为主、小麦作为参考分别采集不同数量的样品，采集水稻籽粒样 61 件、小麦籽粒样 15 件，采集密度分别为 1 点/km^2、1 点/4 km^2（图 1）；采集水稻根系土样 31 件、小麦根系土样 15 件，采集密度分别为 1 点/2 km^2、1 点/4 km^2；另采集水稻、小麦茎叶样各 5 件。

表层土壤采样方法为：每个采样点均按“X”法 5 点等量取样，避开可能存在污染的土壤和人为搬运的堆积土，用竹铲连续采集 0 cm～20 cm 深度内的表层土壤，混合均匀后用四分法留取 1 500 g 原始鲜样；作物样采样方法为：在每个采样点附近的同一地块内选取 5 个 1 m×1 m 的样方、按均匀性原则选取每个样方内代表性植株 10 株～20 株，样品混匀后保留 500 g 籽实鲜样；根系土及茎叶样采样方法为：用干净毛刷轻刮作物近根系附近土壤，并在适当位置同步采集茎叶样。土壤样品经自然风干，过 20 目尼龙筛去除根系、残渣、石块等杂物，以备实验室分析测试；水稻和小麦作物样风干后送实验室分析测试。

考虑到 Pb、Cd、Hg 和 As 等重金属的综合效应，本次选取此四个典型重金属元素为研究对象。相关分析测试工作在山东省物化探勘查院岩矿测试中心完成。土壤样及作物样消解方法：称取0.200 0 g 样品于聚四氟乙烯坩埚中，加入混合酸（HF－$HClO_4$－HNO_3）进行标准化消解。重金属元素分

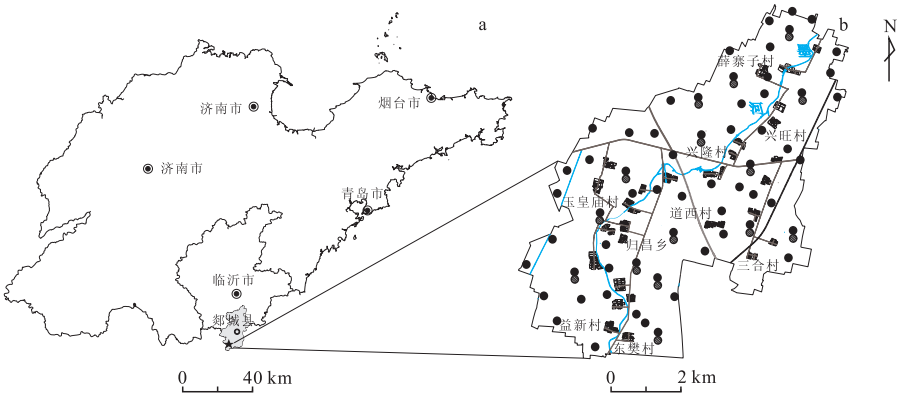


图 1　研究区位置范围及作物采样点位图

Fig. 1　Location map of research area and crop sampling points

(a)研究区位置；(b)作物采样点位

表 1 土壤环境地球化学等级划分标准

Tab. 1 Classification standard of soil environmental geochemistry

P_i	$P_i \leqslant 0.7$	$0.7 < P_i \leqslant 1.0$	$1.0 < P_i \leqslant 2.0$	$2.0 < P_i \leqslant 3.0$	$P_i > 3.0$
单项污染指数	一等 清洁	二等 轻微污染	三等 轻度污染	四等 中度污染	五等 重度污染

析方法为:①Pb 采用 X－射线荧光光谱法测定(Axios^{max}, PANalytical B. V);②Cd 采用石墨炉原子吸收光谱法测定(GF－AAS, PE600, thermo Elemental);③Hg、As 采用氢化物发生－原子荧光光谱法测定(AFS9750, 北京海光仪器)。试验所用玻璃器皿均用 10%硝酸溶液浸泡 24 h,所有试剂均为优级纯,分析用水均为超纯水。

土壤样品分析质量监控:分析数据质量采用国家一级土壤标准物质(GBW 系列)检验分析方法的准确度和精密度,每个批次插入 4 件标准物质进行分析,求得标准物质测量值与标准值的对数偏差($\Delta \lg \bar{C}$)和每个标准物质的多次测定相对标准偏差(RSD)均在允许限内,合格率为 100%。农作物样品分析质量监控:分析数据质量采用国家标准物质大米粉和小麦粉(GBW 系列)进行准确度控制,标准物质相对误差 $RE \leqslant 30\%$,合格率为 100%;同时,对所有送检样品进行重复分析,同一样品两次测定值 $RE \leqslant 30\%$,合格率为 100%,精密度符合《生态地球化学评价样品分析技术要求(DD2005－3)》中的规定。

1.3 评价方法

1.3.1 土壤环境质量评价方法[14]

土壤环境质量评价一般以土壤中单个重金属污染元素的污染指数评估为主,指数小污染轻,指数大污染则重,其计算公式为式(1)。

$$P_i = C_i / S_i \tag{1}$$

式中:P_i 为调查区耕地土壤重金属元素 i 的单项污染指数;C_i 为土壤样品中重金属元素 i 的实测含量;S_i 为 GB 15618－2018(试行)中规定的重金属元素 i 的"农用地土壤污染风险管控值"。

本文采用 DZ/T 0295－2016 中规定的"土壤环境地球化学等级划分标准"(表 1)。

1.3.2 富集因子

富集因子(EF)经常被用来判断重金属的来源[5, 15]。当 $EF < 0.5$,表明重金属主要来源于地壳;当 $0.5 \leqslant EF \leqslant 1.5$,表明重金属可能完全来自成土母岩或自然风化过程;$EF > 1.5$,表明重金属主要为人为来源。富集因子公式为式(2)。

$$EF = [(C_i/\mathrm{Fe})_{实测值}] / [(C_i/\mathrm{Fe})_{背景值}] \tag{2}$$

式中:$(C_i/\mathrm{Fe})_{实测值}$ 为调查区耕地土壤重金属元素 i 的实测值与 Fe 的比值;$(C_i/\mathrm{Fe})_{背景值}$ 为重金属元素 i 的山东省表层土壤地球化学背景值与 Fe 背景值的比值。

1.3.3 生物富集系数

生物富集系数(BCF)在环境学上又被称为生物浓缩系数,是一个无量纲的数值[16]。元素生物富集系数客观反映了农作物从土壤中吸收化学元素的能力,是表征土壤中元素含量分布对食物链影响程度的重要参数,是农业地球化学研究土壤元素行为的常用指标之一。水稻或小麦籽实的元素生物富集系数就是这些农产品中的元素含量同该元素在所对应的耕作层土壤中含量的比值,表示为式(3)。

$$BCF = C_i / C_0 \tag{3}$$

式中:C_i 为水稻或小麦籽实中的元素含量;C_0 为表层土壤中的元素含量。

2 结果与讨论

2.1 表层土壤中重金属含量特征

姜湖贡米产地表层土壤重金属含量统计结果列于表 2。从表层土壤重金属平均含量与背景值的对比来看,Pb、Hg 的平均含量均高于山东省[17]及临沂市[18]表层土壤背景值,分别为对应背景值的 1.15、1.04 和 1.19、1.32 倍,表明土壤中 Pb 和 Hg 呈现一定的富集趋势;而 Cd、As 的平均含量均略大于临沂市表层土壤背景值、小于山东省表层土壤背景值,说明土壤中 Cd、As 基本维持在背景水平;与我国农用地土壤污染风险筛选值[19]相比,四个重金属元素含量最大值均低于风险筛选值,土壤生态环境风险低。从重金属元素含量变化系数可以看出,Pb、As 变化系数≤20%,二者特异值数量占比均<3.0%,属弱至低等变异程度,表明数据总体离散度不大;Cd、Hg 变化系数分别为 33.9%、26.5%,二者特异值数量占比>3.0%,属低至中等变异程度,表明数据存在一定的弱起伏趋势。

表 2　表层土壤重金属元素含量特征($N=1279$)

Tab. 2　Content of heavy metal elements in the topsoil

元素	中位数	最大值	最小值	均值±离差	变化系数/%	特异值数量/个	特异值比例/%	山东省土壤地球化学背景值[17]	临沂市土壤地球化学背景值[18]	农用地土壤污染风险筛选值[19]
Pb/mg·kg^{-1}	26.240	109.23	14.88	27.042±6.775	15.0	30	2.3	23.6	26.1	140
Cd/mg·kg^{-1}	0.120	0.59	0.03	0.128±0.049	33.9	41	3.2	0.132	0.125	0.6
Hg/μg·kg^{-1}	35.690	548.20	10.84	36.962±9.798	26.5	64	5.0	31	28	600
As/mg·kg^{-1}	7.120	18.74	2.93	7.144±1.488	20.0	34	2.7	8.6	6.5	25

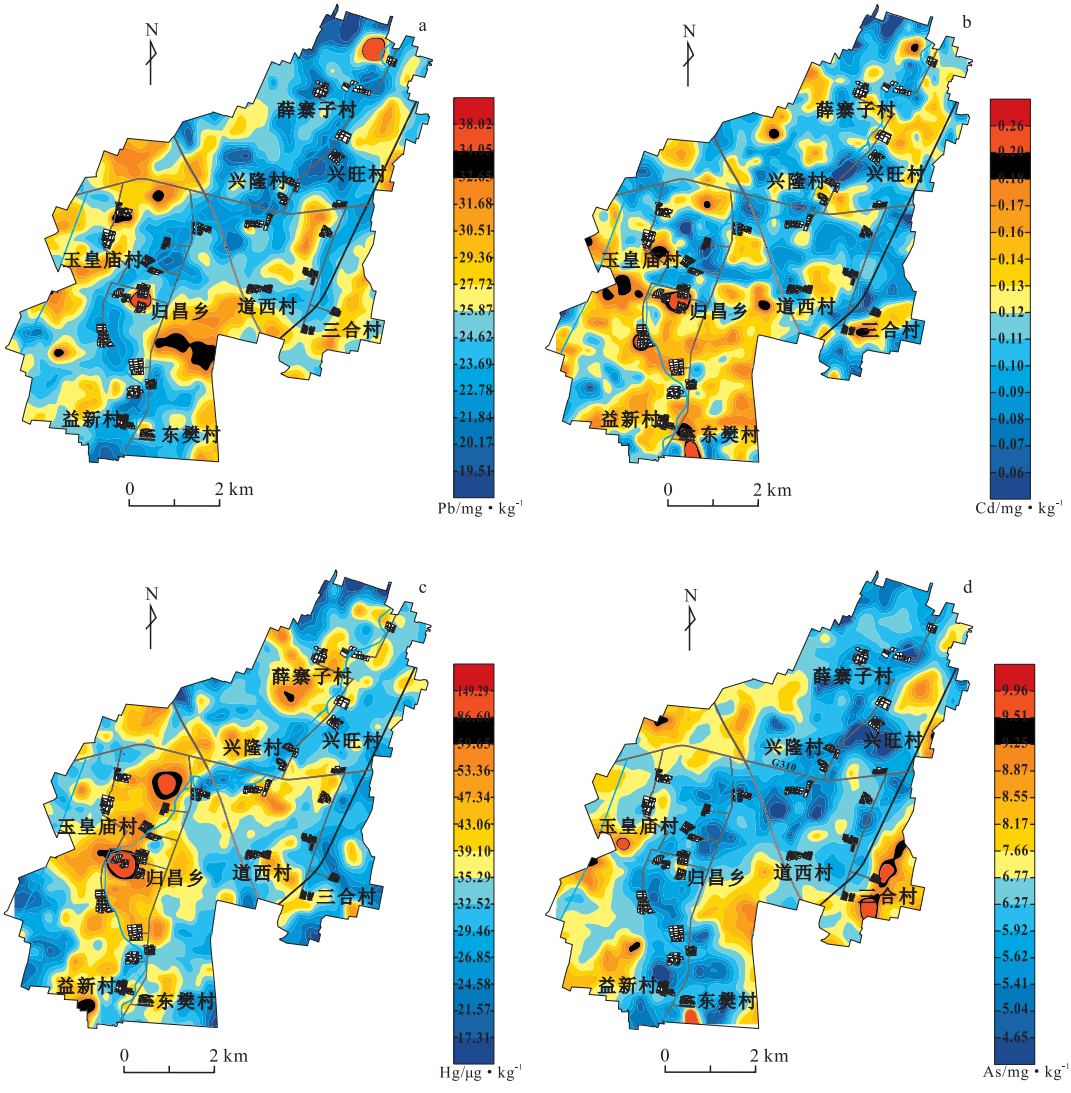


图 2　表层土壤 Pb、Cd、Hg、As 空间分布特征

Fig. 2　Spatial Distribution of Pb, Cd, Hg and As in the Topsoil

(a)Pb;(b)Cd;(c)Hg;(d)As

重金属元素含量的空间分布特征(图 2)，也从一定程度上印证了元素含量变异程度的差异。Pb、As 分布有一定规律性，沿墨河主流河道附近呈现中低背景分布区，可能与墨河附近 Pb、As 的缓慢水解或淋失有关；而在墨河两侧为中高值域分布区，可能与Pb、As被粘土矿物吸附存在于土壤中有关。Cd

表 3 小麦及水稻根系土重金属元素含量及其污染指数

Tab. 3 Content of heavy metal elements and their pollution index in root soil of the wheat and rice

样品	元素	最小值	最大值	均值±离差	变化系数/%	P_i		
						范围	均值	土壤环境地球化学等级
小麦根系土	Pb/mg·kg^{-1}	23.1	35.8	27.74±3.91	14.1	0.208～0.420	0.290	清洁($Pi\leqslant1$)
	Cd/mg·kg^{-1}	0.096	0.274	0.14±0.05	34.3	0.319～0.914	0.451	清洁($Pi\leqslant1$)
	Hg/μg·kg^{-1}	15.84	65.26	45.24±12.28	27.0	0.026～0.109	0.075	清洁($Pi\leqslant1$)
	As/mg·kg^{-1}	5.20	10.49	7.26±1.82	25.2	0.192～0.298	0.231	清洁($Pi\leqslant1$)
水稻根系土	Pb/mg·kg^{-1}	21.4	37.8	28.43±4.43	16.6	0.098～0.351	0.239	清洁($Pi\leqslant1$)
	Cd/mg·kg^{-1}	0.072	0.230	0.14±0.03	21.1	0.241～0.765	0.474	清洁($Pi\leqslant1$)
	Hg/μg·kg^{-1}	20.31	70.10	35.24±11.27	32.5	0.034～0.116	0.059	清洁($Pi\leqslant1$)
	As/mg·kg^{-1}	2.44	8.77	6.00±1.67	28.1	0.178～0.314	0.237	清洁($Pi\leqslant1$)

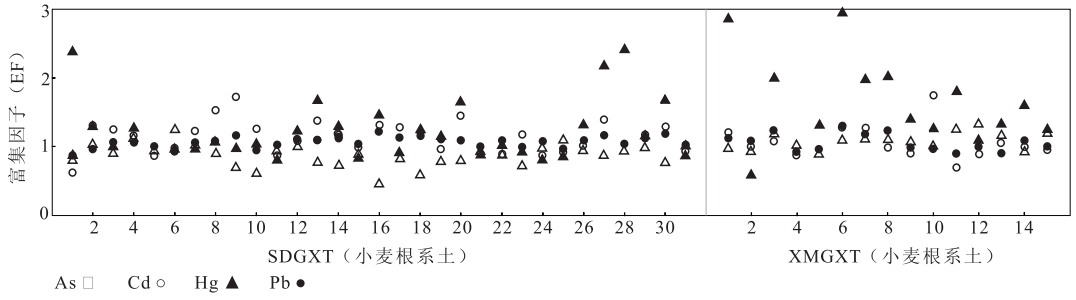


图 3 水稻(左)及小麦根系土(右)重金属元素富集因子趋势图

Fig. 3 Trend chart of enrichment factors of heavy metal elements in root soil of the wheat and rice

在表生条件下具有较强的主极化能力，其迁移的量有限，所以能被土壤的胶体溶液强烈吸附[20]。从 Cd 的空间分布来看，其南部面状中高值域分布明显，北部呈点状异常散布在面状中低背景区之上，南北差异较为显著，可能反映南部随着归昌乡人为生产活动的加剧 Cd 含量增加显著，而北部以自然背景影响为主，反映了 Cd 的表生地球化学特征。Hg 的电负性为 1.8～2.0，一般认为含汞的矿物(主要为辰砂)是一种稳定矿物，其迁移的数量并不多[21]。从 Hg 的空间分布来看，其在墨河周边的村镇呈现明显的中高值域分布区。这一特征显然不是汞在自然背景下表生地球化学特征的体现，更多与人类聚集区农业及生产生活过程中引起的汞含量增加密切相关。

2.2 根系土中重金属含量及其影响因素

从作物根系土中重金属元素含量及其污染指数表(表 3)可以看出，根系土中 Pb、Cd 平均含量高于表层土壤(表 2)，表明 Pb、Cd 在根系土中相对于表层土壤中发生了一定的富集，而 Hg、As 平均含量均存在小麦根系土＞表层土壤＞水稻根系土的趋势，这表明小麦根系土相对水稻根系土相对富集 Hg、As；根系土中元素含量变异系数显示，Pb 变化系数均≤20%，而 Cd、Hg、As 变化系数均＞20%，表明根系土中 Pb 的数据分布相对稳定，这可能与 Pb 在土壤中的迁移性相对偏弱有关[22]，而 Pb 的这一特征与表层土壤中 Pb 含量的变化系数反映的特征相一致；从小麦、水稻根系土中重金属单项污染指数来看，其最高值均低于 1，表明姜湖贡米产地土壤环境地球化学等级为清洁，进一步对比小麦、水稻根系土单项污染指数发现，小麦根系土中 Pb、Hg 的 P_i 均值高于水稻根系土；水稻根系土中 Cd、As 的 P_i 均值高于小麦根系土。这可能表明不同作物利用类型，对土壤重金属的富集能力有所不同[23]。

根系土不同重金属元素富集因子(EF)趋势图见图 3。由图 3 可知，研究区 As、Pb 富集因子集中分布于 0.5～1.5 之间，认为主要与沂沭河冲积平原的自然叠加成土过程有关；而 Hg、Cd 均存在不同程度＞1.5 的情况，认为其除自然成土过程外，还受到

人为来源的影响，这可能与作物施肥及农药喷洒相关。此外，从根系土重金属元素富集因子强度和超标点数来看，不同重金属元素间存在 Hg＞Cd＞Pb、As 的趋势，不同作物间存在小麦根系土＞水稻根系土的总体趋势。

2.3　作物中重金属含量及其累积特征

对归昌乡姜湖贡米产地不同作物中重金属元素含量特征进行了统计（表4）。从小麦、水稻籽粒中

表 4　小麦、水稻籽粒和茎叶中重金属元素含量特征

Tab. 4　Content of heavy metals in grains, stems and leaves of the wheat and rice

类别	元素	中位数	最小值	最大值	均值±离差	变化系数/%	标准值*
小麦籽粒（N=15）	Pb/mg·kg^{-1}	0.12	0.09	0.17	0.126±0.022	18.14	≤0.2
	Cd/mg·kg^{-1}	0.046	0.032	0.086	0.0488±0.013	28.37	≤0.1
	Hg/μg·kg^{-1}	1.87	1.39	2.57	1.872±0.287	15.35	/
	As/mg·kg^{-1}	0.032	0.028	0.065	0.036±0.010	26.43	≤0.4
小麦茎叶（N=5）	Pb/mg·kg^{-1}		1.55	2.02	1.91	10.63	
	Cd/mg·kg^{-1}		0.067	0.089	0.077	12.03	
	Hg/μg·kg^{-1}		13.73	35.50	20.86	40.96	
	As/mg·kg^{-1}		0.81	1.25	0.99	16.2	
水稻籽粒（N=61）	Pb/mg·kg^{-1}	0.09	0.06	0.17	0.097±0.024	25.23	≤0.2
	Cd/mg·kg^{-1}	0.031	0.006	0.091	0.036±0.0215	59.13	≤0.2
	Hg/μg·kg^{-1}	3.2	0.88	5.58	3.132±1.058	33.76	≤10
	As/mg·kg^{-1}	0.051	0.016	0.101	0.054±0.020	37.31	≤0.4
水稻茎叶（N=5）	Pb(mg/kg)		0.70	1.79	1.22	36.42	
	Cd/mg·kg^{-1}		0.077	0.088	0.082	5.30	
	Hg/μg·kg^{-1}		9.00	15.08	12.33	17.79	
	As/mg·kg^{-1}		1.65	3.072	2.17	26.3	

类别	中位数	最大值	最小值	均值±离差
小麦籽粒 BCF/%	0.43	0.63	0.32	0.47±0.08
	33.05	46.46	20.69	33.44±7.16
	5.31	6.25	3.38	4.55±0.82
	0.53	0.918	0.39	0.51±0.16
小麦籽叶 BCF/%		7.46	5.73	7.07
		70.00	52.34	60.09
		86.27	33.36	50.69
		3.10	1.42	2.29
水稻籽粒 BCF/%	0.32	0.60	0.21	0.34±0.087
	22.27	64.82	4.45	25.95±15.35
	9.07	15.83	2.49	8.87±3.01
	0.86	1.68	0.27	0.91±0.33
水稻籽叶 BCF/%		6.63	2.58	4.52
		69.23	60.53	64.29
		36.66	21.88	29.96
		43.00	23.10	26.30

“标准值”据中华人民共和国农业行业标准：绿色食品稻米（NY/T419－2014）和小麦及小麦粉（NY/T421－2012）

重金属含量特征可以看出，二者籽粒中重金属元素最大值含量均未超过绿色食品标准限量值，农产品质量安全可靠。从小麦、水稻籽粒中重金属元素含量变化系数（表 4）来看，小麦中 Cd、As 含量变化系数＞20%，属中等变异程度，数据存在一定离散度，而 Pb、Hg 含量变化系数≤20%，属弱至低等变异程度，数据离散度不大；水稻籽粒中重金属含量变化系数均＞20%，表明元素含量数据离散度相对较大；小麦与水稻籽粒重金属元素生物富集系数（表 4、图 6）均反映了 Cd＞Hg＞As＞Pb 的规律，且小麦籽粒中 Pb、Cd 含量均值高于水稻，Hg、As 含量均值低于水稻，这表明稻麦轮作情况下，小麦可能比水稻更易于吸收累积 Pb、Cd[23]。从小麦、水稻茎叶中重金属含量特征（表 4）可以看出，小麦茎叶中 Pb、Hg 含量均值高于水稻，Cd、As 低于水稻，与籽粒中含量均值对比，Hg、Cd 发生了一定变化；小麦、水稻茎叶中重金属元素含量变化系数排序分别为：Hg＞As＞Cd＞Pb、Pb＞As＞Hg＞Cd，参照变化系数值可知，小麦茎叶中的 Hg 与水稻茎叶中的 Pb、As 含量有较大分异。通过不同作物籽粒中重金属含量及其生物富集系数的对比表明，Cd 是姜湖贡米产地作物可食部分累积水平较高的元素；此外，通过茎叶中 Cd、Hg 含量及其富集系数的综合比较认为，小麦茎叶中 Cd、Hg 累积水平相对高于水稻。

为进一步探讨作物籽粒与表层土壤重金属元素分布的相关性，以样品量较多的水稻籽粒中 Cd、Hg 的分布为例说明。从水稻籽粒中 Cd、Hg 含量空间分布图（图 4）可以看出，Cd 元素在研究区南部及墨河主流河道两侧略偏高、中部偏低，与表层土壤中 Cd 的分布趋势相近；Hg 元素含量在研究区中南部沿墨河主流河道呈带状中高值分布，同时在兴隆村和胶新铁路附近出现高值，与表层土壤中 Hg 的分

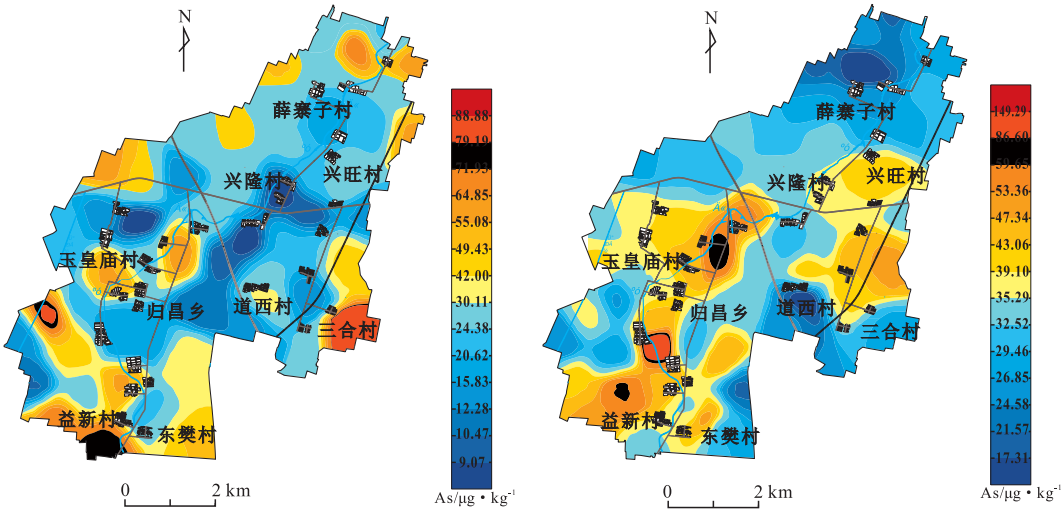


图 4 水稻籽粒中 Cd（左）、Hg（右）含量空间分布图

Fig. 4 Spatial distribution of Cd and Hg contents of the rice grains

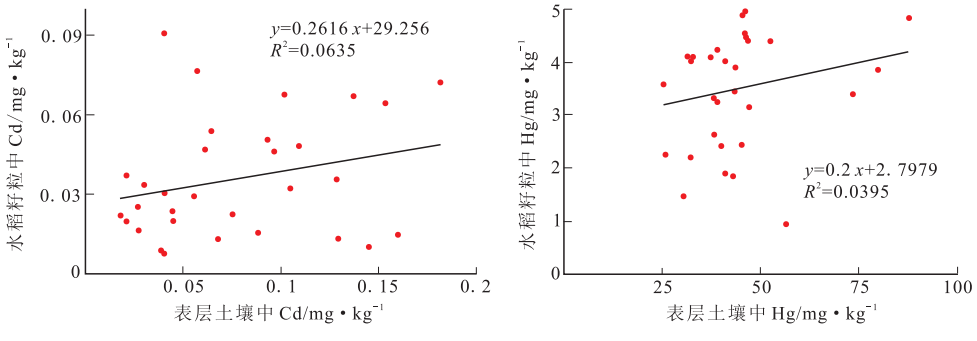


图 5 表层土壤与水稻籽粒中 Cd、Hg 相关性图解

Fig. 5 Correlation diagram of Cd and Hg in the tosoil and rice grains

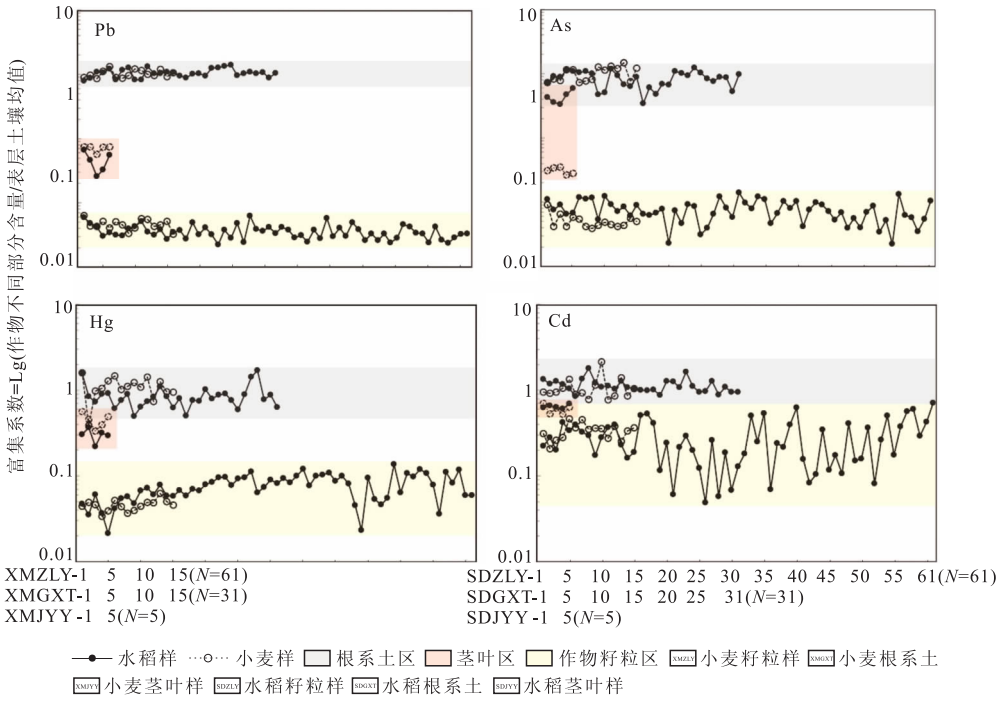


图 6　根系土及作物不同部位中重金属元素富集系数特征曲线

Fig. 6　Characteristic curve of bioaccumulation factor (BCF) of heavy metals in root soil and different parts of the crops

表 5　根系土组分与作物籽粒生物富集系数的相关性

Tab. 5　Correlation between components of root soil and BCF of rice and wheat

根系土组份 / 籽粒 重金属 BCF		Al_2O_3/%	CaO/%	Fe_2O_3/%	MgO/%	水解氮 /mg·kg^{-1}	阳离子交换量 /cmol(+)/kg^{-1}	pH
水稻 BCF	Pb	0.856**	−0.029	0.903**	0.873**	0.716**	0.881**	−0.146
	Cd	0.383*	0.342	0.419*	0.612**	0.524**	0.455**	0.188
	Hg	−0.01	−0.137	0.053	−0.113	0.203	0.033	−0.038
	As	0.634**	−0.165	0.789**	0.496**	0.273	0.628**	−0.104
小麦 BCF	Pb	0.929**	−0.200	0.951**	0.883**	0.637*	0.945**	−0.064
	Cd	0.591*	0.189	0.630*	0.665**	0.620*	0.720**	−0.110
	Hg	0.201	0.022	0.101	0.197	−0.071	0.043	−0.236
	As	0.799**	−0.213	0.870**	0.761**	0.482	0.801**	−0.354

**. 在 0.01 水平(双侧)上极显著相关；*. 在 0.05 水平(双侧)上显著相关

布趋势相近。提取研究区中南部 Cd、Hg 中高值分布区表层土壤与水稻籽粒对应点位($N=30$)，制作了重金属含量相关图解(图 5)。水稻籽粒中 Cd、Hg 含量特征与表层土壤含量的相关性表明，人为生产活动对土壤污染的同时，可能引起少量农产品可食部分重金属含量的同步增加。

2.4　土壤—作物系统中重金属元素累积特征

在水稻和小麦土壤—作物系统中，Pb、Cd、Hg、As 四个重金属元素的富集系数总体存在由根系土—茎叶—籽实的递减趋势(图 6)，这与前人研究结论一致[24−25]；作物不同部位 Pb、As、Hg 的富集系数分布区间差异较为显著，说明其土壤—作物系统元素含量变化差异较大，Pb、As、Hg 的累积程度相对较低，而作物不同部位 Cd 的富集系数分布区间差异不甚显著，这表明 Cd 含量在作物不同部分间差异不大，其累积程度相对高，这与表 4、图 6 中 Cd

元素较高的生物富集系数相对应。具体来看：Pb 不同部位生物富集系数分异特征较为典型，且各部位变化较为稳定，这与 Pb 在各部位含量变化系数相对较稳定的的变化区间相关(10.63%～36.42%)；As 在小麦、水稻茎叶中生物富集系数出现较大的分异，可能表明了不同植物茎叶选择性吸收的差异；Hg、Cd 相比，虽然二者生物富集系数波动均较大，但 Hg 在作物各部分间富集系数变化的分异程度要高于 Cd。这表明作物不同部分间 Hg 的含量特征总体差异显著，其中水稻、小麦根系土中 Hg 含量相比籽实中 Hg 含量高 10 倍～15 倍，茎叶中 Hg 含量相比籽实中 Hg 含量高 5 倍～10 倍。而水稻、小麦根系土中 Cd 含量相比籽实中 Cd 含量高 2.5 倍～4 倍，作物籽粒中 Cd 的富集系数表现了较大的波动范围，小麦籽实中 Cd 的生物富集系数高于水稻，而水稻籽粒中 Cd 幅值变化显著，这表明在水稻中 Cd 元素随向上的蒸腾流“流动”过程中影响因素可能相对较多[26－27]。

对作物根系土部分主要组份与作物籽实重金属元素生物富集系数相关性统计表明(表 5)：① 作物根系土中 Al_2O_3、Fe_2O_3 和 MgO、阳离子交换量(CEC)与籽粒中 Pb、Cd、As 的生物富集系数存在显著相关关系，且总体存在 Pb＞As＞Cd 的趋势(水稻籽粒 BCF 与 MgO 关系为 Pb＞Cd＞As)。由于 Al_2O_3、Fe_2O_3 为粘土矿物的骨架成分，表明作物中 Pb、As、Cd 等元素随着粘土矿物成分的增加而趋于富集，可能导致作物中累积程度的增加，CEC 与部分土壤重金属容量也有密切关系[27]，同时也可直接影响到植物体对重金属的吸收；② 根系土中水解氮与籽粒中 Pb、Cd 的生物富集系数存在显著相关关系，表明 MgO、水解氮等肥力组份可能有助于作物对重金属的吸附；③ 作物根系土中 CaO、pH 与籽粒生物富集系数关系不明显，可能表明根系土环境 pH 总体变化不大，根系附近理化性质趋于稳定；④ 作物中 Hg 的生物富集系数与根系土各组份间关系不明显，表明土壤环境对作物 Hg 含量的影响不大，而可能表明其来源主要与人为生产活动相关。

3 结 论

1)姜湖贡米产地表层土壤及根系土中 Pb、Cd、Hg、As 等重金属含量均低于农用地土壤污染风险筛选值，土壤生态环境风险低；水稻和小麦籽粒中重金属元素含量均低于相关绿色食品限量值，产品质量安全风险低。

2)根系土中 Pb、Cd 含量相对于表层土壤发生了一定的富集，而单项污染指数与含量相对富集程度的不一致，表明不同作物利用类型对土壤重金属的富集能力有所不同。根系土富集因子趋势表明，As、Pb 含量特征反映了沂沭冲积平原自然叠加成土过程，Hg、Cd 含量可能受到人为来源的影响，且 Hg、Cd 重金属含量有小麦根系土＞水稻根系土的趋势。

3)水稻和小麦籽粒中 Cd、Hg 含量特征，与表层土壤重金属元素含量空间分布特征存在相关性，表明人为生产活动对土壤污染的同时，可引起少量作物中相应重金属含量的同步增加；水稻和小麦籽粒中重金属元素生物富集系数均反映出 Cd＞Hg＞As＞Pb 的规律，而小麦、水稻茎叶中重金属元素生物富集系数排序则分别为 Cd＞Hg＞Pb＞As、Cd＞Hg＞As＞Pb，这表明不同作物对 Cd、Hg 的总体累积程度要高于 As、Pb。

4)土壤－作物系统中重金属元素富集系数总体存在由根系土－茎叶－籽实的递减趋势，其中 Pb、As、Hg 的分异特征较为明显，表明了不同作物对重金属的选择性吸收与累积程度的差异；而 Cd 在作物不同部位间含量差异不大，但其累积程度相对较高。

此外，作物籽粒中重金属元素生物富集系数与根系土主要组份多存在显著相关性，这可能表明土壤肥力提升的同时，可能也会促进作物对部分重金属的吸收。

参考文献：

[1] 师荣光，郑向群，龚琼，等. 农产品产地土壤重金属外源污染来源解析及防控策略研究[J]. 环境监测管理与技术，2017，29(4)：9－13.
SHI R G，ZHOU Q W，GONG Q，et al. Heavy metal pollution source analysis and control strategy in soil of agricultural producing area[J]. Environmental Monitoring Management and Technology，2017，29(4)：9－13.(In Chinese)

[2] JANSSEN C R，HEJIERCK G G，SCHAMPHELAERE K A C D，et al. Environmental risk assessment of metal：tools for in－corporating bioavailability[J]. Environment International，2003，28：793－800.

[3] CHEN H，YUAN X，LI T，et al. Characteristics of heavy metal transfer and their influencing factors in different soil－crop systems of the industrialization region，China[J].

Ecotoxicology and Environmental Safety，2016，126：193－201.

[4] 陈红燕，袁旭音，李天元，等. 不同污染源对水稻土及水稻籽粒的重金属污染研究[J]. 农业环境科学学报，2016，35(4)：684－6 90.
CHEN H Y，YUAN X Y，LI T Y，et al. Heavy metal pollution in paddy soil and rice grains from different pollution sources[J]. Journal of Agro－Environment Science，2016，35(4)：684－690.（In Chinese）

[5] 李杰，朱立新，康志强. 南宁市郊周边农田土壤－农作物系统重金属元素迁移特征及其影响因素[J]. 中国岩溶，2018，37(1)：43－52.
LI J，ZHU L X，KANG Z Q. Characteristics of transfer and their influencing soil－crop system of peri－urban agricultural soils factors of heavy metals in of Nanning，South China[J]. Carsologica Sinica，2018，37(1)：43－52.（In Chinese）

[6] BHATTACHARYA P，SAMAL A C，MAJUMDAR J，et al. Accumulation of arsenic and its distribution in rice plant（Oryza sativa L.）in Gangetic West Bengal[J]. India Plant and Soil，2010，8(1)：63－70.

[7] 姚静，闫童，李文波，等. 临沂市农业生态系统土壤酸化趋势研究[J]. 山东农业科学，2011，(11)：60－62.
YAO J，YAN T，LI W B，et al. Study on soil acidification tendency of agroecosystem in Linyi city[J]. Shandong Agricultural Sciences，2011(11)：60－62.（In Chinese）

[8] 庞绪贵，崔元俊，王晓梅，等. 山东省生态地球化学调查与评价综述[J]. 山东国土资源，2013，29(9)：10－15.
PANG X G，CUI Y J，WANG X M，et al. Survey and evaluation on eco－geochemistry in Shandong province[J]. Shandong Land and Resources，2013，29(9)：10－15.（In Chinese）

[9] 山东省地质调查院. 临沂市农业生态地球化学调查与评价报告[R]. 2016.
Shandong Geological Survey Institute. Investigation and evaluation of Agroecological geochemistry in Linyi City，China[R]. 2016.（In Chinese）

[10] 刘延刚，张永涛，冷鹏，等. 姜湖贡米地理标志及独特生产技术[J]. 安徽农业科学，2018，46(24)：34－36.
LIU Y G，ZHANG Y T，LENG P，et al. Geographical Indications and Unique Production Techniques of JianghuGongmi[J]. Anhui Agric. Sci.，2018，46(24)：34－36.（In Chinese）

[11] 山东省第四地质矿产勘查院. 山东省区域地质[M]. 济南：山东省地图出版社，2003.
Shandong Provincial Fourth Exploration Institute of Geology and Mineral Resources. Study on regional geology in shandong province[M]. Jinan：Shandong Cartographic Publishing House，2003.（In Chinese）

[12] 廖启林，刘聪，金洋，等. 江苏土壤地球化学分区[J]. 地质学刊，2011，35(3)：225－235.
LIAO Q L，LIU C，JIN Y，et al. On geochemical regionalization of soils in Jiangsu[J]. Jiangsu Geology，2011，35(3)：225－235.（In Chinese）

[13] 中国人民共和国国土资源部地质矿产行业标准：土地质量地球化学评价规范（DZ/T 0295－2016）[S]. 2016.6.12.
Geological and mineral industry standard of the Ministry of land and resources of the people's Republic of China：Standard for geochemical evaluation of land quality(DZ/T 0295－2016)[S]. 2016.6.12.（In Chinese）

[14] 中国人民共和国环境保护总局环境保护行业标准：土壤环境监测技术规范（HJ/T 166－2004）[S]. 2004.12.9.
Environmental protection industry standard of environmental protection administration of the people's Republic of China：Technical specification for soil environmental monitoring(HJ/T 166－2004)[S]. 2004.12.9.（In Chinese）

[15] ZHANG L，YE X，FENG H，et al. Heavy metal contamination in western Xiamen Bay sediments and its vicinity，China[J]. Marine Pollution Bulletin，2007，54(7)：974－982.

[16] 方如康. 环境学词典[M]. 北京：科学出版社，2003.
FANG R K. Dictionary of Environmental Science[M]. Beijing：Science Press，2003.（In Chinese）

[17] 庞绪贵，代杰瑞，胡雪平，等. 山东省土壤地球化学背景值[J]. 山东国土资源，2018，34(1)：39－43.
PANG X G，DAI J R，HU X P，et al. Background values of soil geochemistry in Shandong Province[J]. Shandong Land and Resources，2018，34(1)：39－43.（In Chinese）

[18] 庞绪贵，代杰瑞，陈磊，等. 山东省17市土壤地球化学背景值[J]. 山东国土资源，2019，35(1)：46－56.
PANG X G，DAI J R，CHEN L，et al. Soil Geochemical background value of 17 cities in Shandong Province[J]. Shandong Land and Resources，2019，35(1)：46－56.（In Chinese）

[19] 中国人民共和国国家标准：土壤环境质量农用地土壤污染风险管控标准（试行，GB15618－2018）[S]. 2018.6.22.

National standard of the people's Republic of China: Soil environmental quality control standard for soil pollution risk of agricultural land(GB15618－2018)[S]. 2018.6.22. (In Chinese)

[20] 李学垣. 土壤化学[M]. 北京：高等教育出版社，2001.
LI X H. Soil Chemistry[M]. Beijing: Higher Education Press, 2001. (In Chinese)

[21] 刘英俊，曹厉明. 元素地球化学导论[M]. 北京：地质出版社，1985.
LIU Y J, CAO L M. Introduction to element geochemistry[M]. Beijing: Geological Press, 1985. (In Chinese)

[22] 景秀，杨胜科，胡安焱. 土壤化学与环境[M]. 北京：化学工业出版社，2008.
JING X, YANG S K, HU A Y. Soil chemistry and environment[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2008. (In Chinese)

[23] 王昌全，代天飞，李冰，等. 稻麦轮作下水稻土重金属形态特征及其生物有效性[J]. 生态学报，2007，27(3)：889－897.
WANG C Q, DAI T F, LI B, et al. The speciation and bioavailability of heavy metals in Paddy soils under the rice－wheat cultivation rotation[J]. Acta Ecologica Sinica, 2007, 27(3): 889－897. (In Chinese)

[24] 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 metal pollution in soil－plant system[M]. Beijing: Science Press, 1996. (In Chinese)

[25] 周志波，易亚科，陈光辉. 水稻 Cd 吸收、转运机理研究进展[J]. 作物杂志，2017(1)：14－19.
ZHOU Z B, Yi Y K, CHEN G H. Advances in Cd Uptake and Transport in Rice[J]. Crops, 2017(1): 14－19. (In Chinese)

[26] VLIET V L, PETERSON C, HALE B. Cd accumulation in roots and shoots of Durum wheat: the roles of transpiration rate and apoplastic bypass[J]. Journal of Experimental Botany, 2007, 58(11): 2939－2947.

[27] 蔡祖聪，马毅杰. 土壤有机质与土壤阳离子交换量的关系[J]. 土壤学进展，1988：10－15.
CAI Z C, MA Y J. Relationship between soil organic matter and cation exchange capacity[J]. Progress in Soil Science, 1988:10－15. (In Chinese)

Distribution and accumulation of heavy metal elements in soil－crop system of Jianghugongmi producing area in Linyi, south of Shandong province

YU Linsong[1,2,3,4], LIU Hongbo[1,3,4], WAN Fang[1,3], SHAO Lijuan[1,3], KANG Guiling[1,3], HU Zunfang[1,3]

(1. Shandong Institute of Geophysical and Geochemical Exploration, Jinan 250013, China;
2. College of Earth Sciences, Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China;
3. Shandong Provincial Engineering Laboratory for Soil Geochemistry, Jinan 250013, China;
4. Shandong Provincial Engineering Research Center for Geological Prospecting, Jinan 250013, China)

Abstract: Jianghugongmi is a famous, special and national geographical indication agricultural product of Shandong province. Based on soil－crop sampling systematically from Jianghugongmi producing area, the distribution and accumulation characteristics of Pb, Cd, Hg, and As in different soil crop systems were studied. The results showed that: (1) the contents of heavy metals in the top soil, root soil and grains were lower than the corresponding limit values, and the risk of soil ecological environment and food safety was low; (2) the heavy metals in the root soil were enriched relatively to the top soil, and its accumulation factors in the root soil showed that As and Pb were related to the natural soil formation process, and Hg and Cd might be affected by human sources; (3) the BCF of heavy metals in wheat and rice grain was Cd＞Hg＞As＞Pb, and that in stem and leaf was Cd＞Hg＞As and Pb, which showed that the accumulation of Cd and Hg in wheat and rice is higher than that of As and Pb; and (4) the BCFs of heavy metal elements in soil－crop system decreased from root soil, stem and leaf to grains, and the differential characteristics of Pb, As and Hg were significant, while Cd BCF fluctuated greatly among different parts of wheat and rice. In addition, the correlation between the BCFs of heavy metal and some components of root soil showed that the increase of soil fertility might promote the uptake of heavy metals by wheat and rice.

Keywords: Tancheng; Jianghugongmi producing area; soil－crop system; rice and wheat; heavy metals