

doi: 10. 20236/j. CJIAC. 2025. 03. 004

庞婷婷, 金紫依, 高家晖, 等. 基于电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)法的大棚和露天种植模式下典型叶类蔬菜重金属累积特征[J]. 中国无机分析化学, 2025, 15(3): 330-339.

PANG Tingting, JIN Ziyi, GAO Jiahui, et al. Study on Characteristics of Heavy Metal Accumulation in Typically Leafy Vegetables under Greenhouse and Open-field Cultivation Based on ICP-MS[J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2025, 15(3): 330-339.

基于电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)法的 大棚和露天种植模式下典型 叶类蔬菜重金属累积特征

庞婷婷¹ 金紫依¹ 高家晖¹ 潘钰¹ 肖彩玲¹ 陈路锋^{1*}
曹梦西¹ 刘艳伟² 阴永光² 梁勇^{1*}

(1. 江汉大学 持久性有毒污染物环境与健康危害湖北省重点实验室, 环境与健康学院,
武汉 430056;

2. 中国科学院 生态环境研究中心 环境纳米技术与健康效应实验室, 北京 100085)

摘要 随着人类膳食结构的改变, 因蔬菜摄入导致的重金属暴露越来越受到关注。而有关大棚和露天种植模式下叶类蔬菜重金属富集特征、影响因素及主要来源研究的缺乏, 限制了对蔬菜富集重金属的有效控制。通过电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)测定湖南攸县大棚和露天种植的白苋菜和空心菜中Cd、Pb、As和Cr的含量发现, 除白苋菜中As和空心菜中的Cd, 其余叶类蔬菜重金属浓度呈现大棚种植低于露天种植的趋势。大棚种植模式下土壤水溶态Cd与叶类蔬菜各部位Cd浓度呈现显著的正相关关系, 说明水溶态Cd可以更有效地预测土壤Cd的生物有效性, 也表明土壤可能是大棚种植叶类蔬菜Cd的主要来源; 而土壤及大气共同影响了露天叶类蔬菜Cd的富集。除了大棚种植的空心菜Cd外, 大棚种植的白苋菜和空心菜的其他单一重金属风险商(HQ)均低于露天种植, 且露天种植的白苋菜的危害指数(HI)显著高于大棚种植, 说明露天种植的叶类蔬菜存在较高的健康风险。研究结果丰富了对不同种植模式下蔬菜重金属富集及健康风险的认识, 并有望为蔬菜的安全种植及利用提供理论依据。

关键词 重金属; 叶类蔬菜; 富集; 大棚种植; 露天种植

要点

- 1) 叶类蔬菜重金属浓度及健康风险通常呈现露天种植高于大棚种植。
- 2) 水溶态Cd可以更有效地预测叶菜种植过程中土壤Cd的生物有效性。
- 3) 大棚叶菜Cd可能主要源于土壤, 露天叶菜Cd受土壤及大气共同影响。

中图分类号: O657. 63 文献标志码: A 文章编号: 2095-1035(2025)03-0330-10

随着工业化和城市化进程的加快, 采矿、工业加工、农药和化肥以及汽车尾气等人为活动产生的铅(Pb)、镉(Cd)、砷(As)和铬(Cr)等重金属被释放到环境中^[1-2], 造成了严重的重金属污染问题。环境中

的重金属具有迁移性强、难降解、高毒性、生物累积性等特点^[2], 可通过呼吸、摄食等途径进入人体, 严重威胁着人体健康^[3]。土壤作为重金属主要的“汇”之一, 更易造成较严重的污染。据调查, 我国耕地

收稿日期: 2024-12-02 修回日期: 2024-12-23

基金项目: 国家重点研发计划项目(2020YFA0907400)

作者简介: 庞婷婷, 女, 硕士研究生, 主要从事蔬菜重金属的富集特征及来源解析研究。E-mail: ttpang@stu. jhun. edu. cn

*通信作者: 梁勇, 男, 教授, 主要从事持久性有毒污染物环境行为与健康效应研究。E-mail: ly76@263. net

陈路锋, 男, 讲师, 主要从事典型水环境重金属关键迁移转化过程研究。E-mail: chenlufeng@jhun. edu. cn

土壤污染点位超标率达 19.4%, 其中 Cd、As 等无机污染物超标点位占全部超标点位的 82.8%^[4], 不仅对农业生产造成了巨大的经济损失, 也给居民带来了严重的健康威胁。除水稻、小麦等主食外^[5-6], 蔬菜作为人类日常饮食必不可少的膳食组成, 其摄食也是食物重金属摄入的主要来源(占摄入总量的 12%~43%^[7])。随着人类膳食结构的改变, 蔬菜摄入量逐渐增加, 因蔬菜摄入导致的重金属等污染物暴露也越来越受到关注。

由于露天种植模式已无法满足人类对蔬菜的需求, 大棚种植模式已广泛应用于蔬菜种植, 不仅增加了蔬菜产量, 也可实现蔬菜的反季种植。种植模式的不同会影响土壤理化性质、作物生长状况等因素^[8-10], 从而影响蔬菜中重金属的富集特征。然而, 目前仍然缺乏对大棚和露天种植模式下蔬菜重金属富集和人体摄入健康风险评估的系统性研究。蔬菜通过根系吸收养分和水分的同时从土壤中富集重金属^[11]; 此外, 叶类蔬菜因具有较大的表面积、相对较快的生长速度, 也会通过叶片等器官吸收大气重金属并累积在组织器官中^[12], 使得叶类蔬菜相比其他作物更容易受到重金属污染^[13-14]。大棚和露天种植模式下, 蔬菜内重金属的主要来源和影响富集的因素仍不明晰, 限制了对蔬菜富集重金属的有效控制。

本文以湖南攸县大棚和露天种植的白苋菜和空心菜为研究对象, 测定叶类蔬菜及其根际土中 Cd、Pb、As 和 Cr 的含量; 通过识别两种种植模式下叶类蔬菜重金属富集的影响因素, 分析露天种植叶类蔬菜重金属的主要来源; 评估可食用部分的人体摄入健康风险, 丰富了对不同种植模式下叶类蔬菜重金属富集及健康风险的认识。

1 实验部分

1.1 仪器及条件

本研究用到的前处理仪器主要有 MARS6 微波消解仪(CEM 公司, 美国)、ME204E 电子天平(Mettler Toledo 公司, 瑞士)、InLab Expert GO-ISM pH 计(Mettler Toledo 公司, 瑞士)和 GSN-40 石墨赶酸器(广州基创仪器有限公司, 中国)等。采用 iCAP TQ 电感耦合等离子体质谱仪 Thermo Scientific 公司(美国)测定重金属浓度, 主要仪器参数为: KED 模式下, 射频电压、冷却气、辅助气、雾化气流速及分析泵速分别为 1 550 W、14 L/min、1 L/min、1 L/min 和 40 r/min。

1.2 研究区域与样品采集

湖南省株洲市攸县(113.15°~113.86° E, 26.78°~27.44° N)位于湖南省东南部, 是我国重要的粮食和蔬菜种植基地, 同时也是全国 100 个重点产煤县之一。煤炭开采、燃料燃烧和地质因素等导致了全县约 90% 的农田土壤 Cd 含量超过了作物安全生产阈值(0.30 mg/kg)^[15], 严重威胁着农业生产及居民健康。为了探究大棚和露天种植模式下叶类蔬菜对 Cd 的富集差异, 选取攸县谭桥社区和网岭镇采集的典型叶类蔬菜(白苋菜、空心菜)及其根际土、灌溉水、干湿沉降样品。分别在谭桥社区和网岭镇选取了 3 个和 4 个采样点, 在每个采样点选取 1~4 个蔬菜种植大棚, 每个大棚内采用五点采样法采集 3 份叶类蔬菜, 共采集了 48 份白苋菜和 39 份空心菜及其根际土(0~20 cm)。在每个蔬菜大棚附近选取露天菜地的 3 个点位采集了 18 份白苋菜和空心菜及其根际土。采集蔬菜和根际土的同时采集了 6 个蔬菜种植区灌溉水样品、6 个湿沉降样品; 以 24 h 为一个采样周期, 使用大流量空气采样器(HV-CW, SIBATA 公司, 日本)采集了 6 份总悬浮颗粒物(Total Suspended Particulate, TSP)作为干沉降样品(网岭镇和谭桥社区各 3 份)。

1.3 样品前处理

叶类蔬菜老黄叶片摘除干净后分为根、茎、叶三部分, 使用自来水和超纯水(18.2 MΩ·cm)冲洗吹干后称量湿重, 105 °C 下杀青 0.5 h 后置于 60 °C 烘箱内干燥至恒重, 称量干重后研磨保存。土壤样品经自然风干至恒重后剔除枯枝、石子等杂物, 分别过孔径 2.00 mm(10 目)和孔径 0.149 mm(100 目)尼龙筛后保存。水样加入 HNO₃ 酸化(pH<2)保存; TSP 样品放置在恒温恒湿箱子 48 h 后, 置于干燥器中保存。

1.4 样品测定与质量控制

依据《食品安全国家标准食品中多元素的测定》(GB 5009.268—2016)处理叶类蔬菜样品。称取约 0.2 g(精确至 0.000 1 g)经干燥、研磨的样品于聚四氟乙烯消解管中, 加入 6 mL HNO₃(痕量金属级, Fisher 公司, 美国)预消解 3 h 以上, 加入 2 mL H₂O₂(优级纯, 国药公司, 中国)后按 120 °C 保持 15 min、160 °C 保持 20 min、190 °C 保持 25 min 的程序进行微波消解。消解完成后, 将消解液在 160 °C 下赶酸至剩余 0.5 mL, 用超纯水定容至 25 mL, 摇匀, 待测。土壤中重金属总量的前处理参照《土壤和沉积物 金属元素总量的消解 微波消解法》(HJ 832—2017)。称取约 0.1 g(精确至 0.000 1 g)干燥、过

筛的样品于消解管中,加入6 mL HNO₃、3 mL HCl(电子级,国药公司,中国)和2 mL HF(优级纯,麦克林公司,中国)后按照120 °C保持10 min、150 °C保持20 min、190 °C保持30 min的程序进行微波消解。消解液在140 °C下赶酸至剩余0.5 mL,用超纯水定容至25 mL,摇匀,待测。称取约2 g(精确至0.000 1 g)土壤于离心管中,加入8 mL超纯水后25 °C下振荡16 h,3 330g离心后(离心机高速旋转在转鼓内产生的离心加速度是重力加速度g的3 330倍,下同)使用0.45 μm聚醚砜滤膜过滤,用于测定水溶态Cd。称取约1 g(精确至0.000 1 g)土壤于离心管中,加入10 mL 0.05 mol/L Ca(NO₃)₂(优级纯,国药公司,中国)溶液后25 °C下振荡16 h,3 330g离心后经0.45 μm聚醚砜滤膜过滤,用于测定可交换态Cd浓度。土壤pH(土水比=1:2.5)的测定参照《土壤pH值的测定 电位法》(HJ 962—2018)。称取约10 g(精确至0.000 1 g)土壤样品,加入25 mL经煮沸去除了CO₂的超纯水,振荡2 min、静置30 min后使用pH计测定。参照《空气和废气颗粒物中铅等重金属元素的测定 电感耦合等离子体质谱法》(HJ 657—2013)处理TSP样品。截取1/8滤膜剪碎置于消解管,加入10 mL HNO₃-HCl(1:3)混合溶液后100 °C下加热回流2 h,样品冷却后加入10 mL超纯水淋洗、浸提30 min后定容至50 mL,待测。灌溉水和湿沉降样品经0.45 μm聚醚砜滤膜过滤后测定重金属浓度。

通过测定菠菜标准物质(GBW10231)、土壤标准物质GSS5(GBW07405)及大气空白滤膜加标的回收率和方法空白确保分析过程的准确度。菠菜标准物质、土壤标准物质和大气空白滤膜加标的回收率分别为84.0%~108%、95.0%~106%和91.0%~99%,叶类蔬菜样品Cd、Pb、Cr和As的方法空白分别为0.002、0.09、0.06和0.02 mg/kg,土壤样品Cd、Pb、As和Cr的方法空白为0.003、0.19、0.02和0.48 mg/kg,大气滤膜消解后Cd、Pb、As和Cr的方法空白分别为0.002、0.009、0.03和0.001 μg/L。测定重金属浓度过程中以20 μg/L Rh作为内标对ICP-MS分析条件进行校正。

1.5 数据处理

利用Excel 2022进行原始数据处理,运用SPSS 26.0软件分析参数间相关性(皮尔逊分析, Pearson Analysis),采用 t 检验分析大棚和露天样品之间浓度、健康风险等的差异性。采用健康风险评估模型评估蔬菜可食用部分中Cd、Pb、As和Cr经口摄入的非致

癌风险。重金属风险商(Hazard Quotient, HQ)和危害指数(Hazard Index, HI),常用于评价单个和多种重金属联合作用的潜在健康风险^[16]。 HQ 和 HI 大于1,说明长期摄入该蔬菜导致的人体重金属暴露风险较高。 HQ 和 HI 计算公式见式(1)和(2):

$$HQ = \frac{ADD}{RfD} = \frac{C \times IR \times EF \times ED}{RfD \times BW \times AT} \quad (1)$$

$$HI = \sum HQ \quad (2)$$

式中, RfD 为参考剂量,mg/(kg·d),Cd、Pb、As和Cr的 RfD 值分别为0.001、0.003 5、0.000 3和0.003 mg/(kg·d)^[17];ADD为日均暴露量,mg/(kg·d); C 为测定的叶类蔬菜可食部分重金属浓度,mg/kg; IR 为叶类蔬菜的日摄入量,kg/d,根据《2023年湖南省统计年鉴》本文 IR 取值为0.287 kg/d; EF 为暴露频率,d/a,根据白苋菜和空心菜种植和收获期, EF 取180 d/a; ED 为暴露持续时间,70 a; BW 为体重,kg,根据《湖南省第五次国民体质监测公报》取成人体重均值58.9 kg; AT 为平均时间, $ED \times 365$ d。

2 结果与讨论

2.1 不同种植模式下叶类蔬菜根际土重金属含量

大棚种植模式下,白苋菜根际土Cd、Pb、As和Cr的平均浓度分别为(0.54±0.05)、(48.79±3.25)、(37.36±13.78)和(41.07±8.82) mg/kg;空心菜根际土Cd、Pb、As和Cr的平均浓度分别为(0.54±0.17)、(45.05±6.42)、(23.99±12.83)和(50.24±12.07) mg/kg。露天种植模式下,白苋菜根际土Cd、Pb、As和Cr的平均浓度分别为(0.83±0.43)、(47.96±11.89)、(24.00±3.84)和(54.78±12.83) mg/kg;空心菜根际土Cd、Pb、As和Cr的平均浓度分别为(0.90±0.47)、(50.02±13.39)、(26.75±9.96)和(55.16±12.94) mg/kg。结果表明,大棚种植和露天种植模式下,叶类蔬菜根际土中的重金属总量无显著性差异(t 检验, $p > 0.05$) (图1)。研究表明土壤的pH值、有机质含量、土壤质地和其他营养元素等可通过改变重金属的形态和生物有效性影响作物对重金属的吸收和累积^[18]。此外,大棚种植模式下频繁灌溉、高温、高湿和高蒸发量也会影响土壤重金属的迁移转化和作物的累积^[19]。施用化学肥料和缺少自然降水浸出,大棚内的表层土壤通常会出现酸化情况,pH值的降低改变了土壤重金属的形态进而增加了金属的迁移率,可能导致作物对重金属的富集量增加^[20-22]。攸县的大棚属于季节性塑料温室,春季叶菜收获后种植模式将转换为露

天种植,测定结果也发现大棚和露天种植在白苋菜根际土 pH 值分别为 5.78 ± 0.52 和 5.93 ± 1.11 , 空心菜根际土 pH 值分别为 5.02 ± 0.65 和 6.08 ± 1.17 , 未呈现明显的差异(t 检验, $p > 0.05$)。这些原因可能导致了研究区域内大棚和露天种植模式下叶类蔬菜根际土重金属含量未呈现明显的差异。进一步分析发现,采集的叶类蔬菜根际土 Cd、Pb 和 As 的浓度分别为湖南省土壤背景值 [$\omega(\text{Cd})=0.08 \text{ mg/kg}$ 、

$\omega(\text{Pb})=27.30 \text{ mg/kg}$ 、 $\omega(\text{As})=13.60 \text{ mg/kg}$ 、 $\omega(\text{Cr})=64.90 \text{ mg/kg}$]^[23] 的 7~11 倍、2 倍和 2~3 倍。其中,所有的根际土 Cd 含量、大棚种植下 30% 的白苋菜和 14% 的空心菜根际土 As 含量高于《土壤环境质量农用地土壤风险管控标准》(GB 15618—2018)规定的风险筛选值 [$\omega(\text{Cd})=0.3 \text{ mg/kg}$ 、 $\omega(\text{As})=40 \text{ mg/kg}$], 表明攸县大棚和露天种植模式下叶类蔬菜可能面临着较高的 Cd 和 As 生态风险。

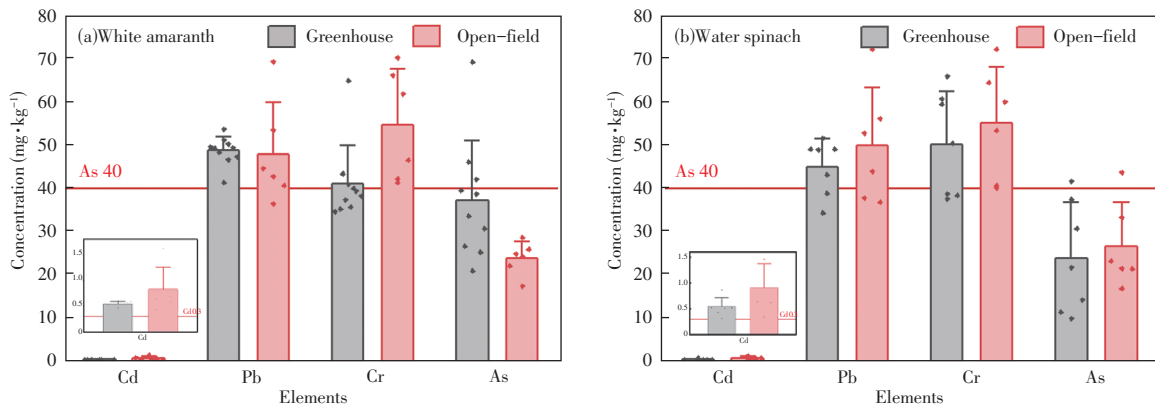


图 1 湖南攸县大棚和露天种植模式下叶类蔬菜根际土重金属含量

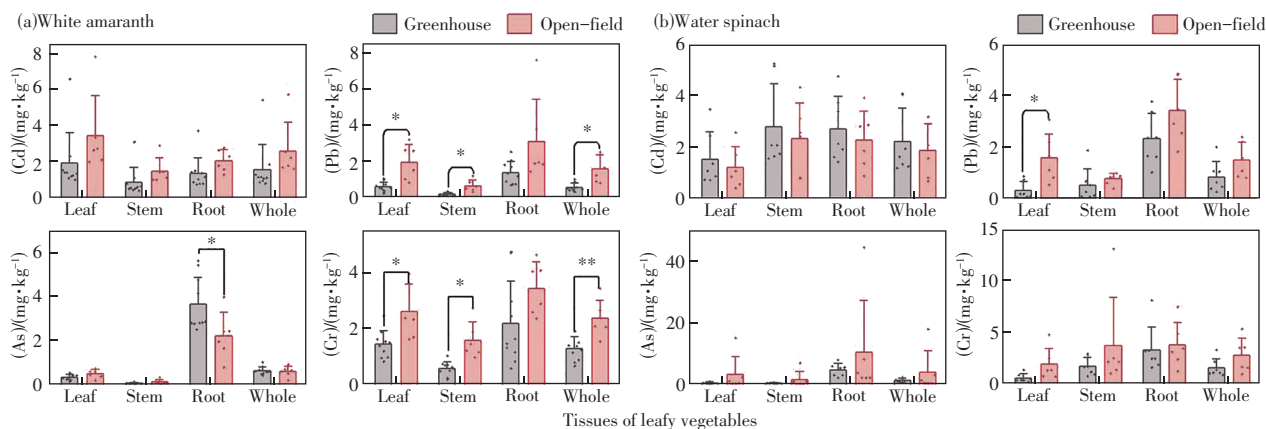
Figure 1 Concentrations of heavy metals in rhizosphere soil of leafy vegetables sampling from greenhouse and open-field cultivation of Youxian county, Hunan province.

2.2 大棚和露天种植模式下叶类蔬菜重金属分布

根据《食品安全国家标准 食品中污染物限量》(GB 2762—2022)规定的新鲜叶菜可食用部分 Cd (0.2 mg/kg)、Pb (0.3 mg/kg)、As (0.5 mg/kg) 和 Cr (0.5 mg/kg) 的限量,采集的白苋菜样品中可食用部分 Pb、As 和 Cr 和空心菜可食用部分 Pb 均低于限量标准;10% 的大棚白苋菜、17% 的露天白苋菜、29% 的大棚空心菜和 17% 的露天空心菜样品可食用部分存在 Cd 超标;露天空心菜可食用部分存在 17% 的 As 和 Cr 超标现象(根据含水率折算成鲜重浓度比较)。不同叶类蔬菜组织中重金属的累积分布存在差异性,白苋菜叶片 Cd 浓度高于茎和根, Pb、As 和 Cr 各部位浓度呈现根 > 叶 > 茎的趋势(图 2a);空心菜根中 Cd、Pb、As 和 Cr 浓度高于其他组织(图 2b)。重金属可以被根^[24]或叶面^[12, 25]吸收,再经由木质部和韧皮部^[26]进行再分配,导致不同组织间重金属的累积差异。对比大棚和露天两种种植模式发现,除白苋菜中的 As 和空心菜中的 Cd,其余叶类蔬菜重金属浓度通常呈现大棚种植模式低于露天种植(图 2),且大棚种植的白苋菜 Pb 和 Cr 以及空心菜叶片中的 Pb 显著低于露天种植(t 检验, $p < 0.05$)。

2.3 不同种植模式下叶类蔬菜 Cd 富集的影响因素

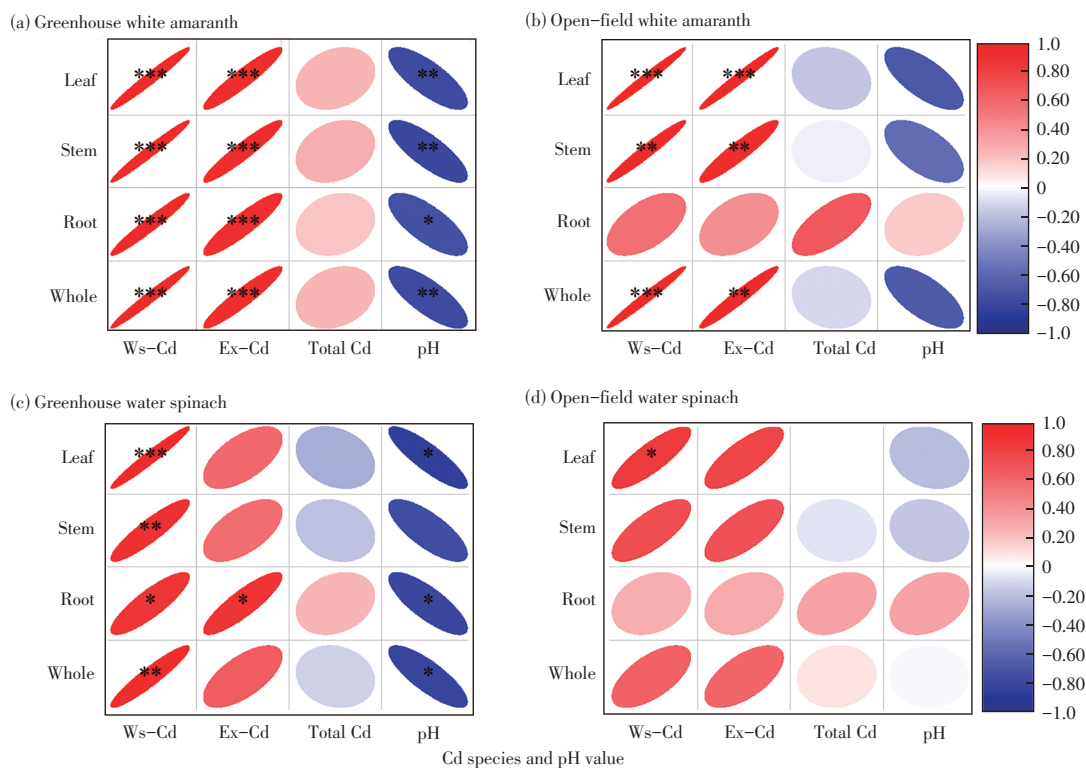
鉴于较高的土壤及叶类蔬菜 Cd 浓度,以 Cd 为例分析了两种种植模式下影响叶类蔬菜重金属富集的因素。结果表明,大棚种植模式下土壤水溶态 Cd 与叶类蔬菜各部位 Cd 浓度呈现显著的正相关关系 ($r=0.85 \sim 0.98$, $p < 0.05$),土壤可交换态 Cd 浓度与叶类蔬菜 Cd 浓度的相关性次之 ($r=0.58 \sim 0.94$),土壤 Cd 总量与叶类蔬菜 Cd 浓度无相关性 ($r=-0.26 \sim 0.26$, $p > 0.05$)。露天种植模式下,各形态 Cd 浓度与叶类蔬菜 Cd 浓度的相关性也呈现类似规律(图 3)。水溶态 Cd 一般以离子或可溶性络合物的形式存在于水溶液,具有较高的生物有效性和迁移性;而可交换态 Cd 易被土壤中其他阳离子取代而溶解,是土壤中较为活跃的 Cd 库^[27];而土壤总 Cd 中包含大量不能被生物利用的残渣态 Cd,因此土壤总 Cd 浓度不能很好地反映土壤 Cd 的生物有效性^[28-29]。例如,在干湿交替的土壤-水稻体系中, Cd 稳定同位素组成结果表明水溶态 Cd 是水稻 Cd 的直接来源^[30];在旱地土壤-小麦体系下,水溶态 Cd 可以作为评估小麦 Cd 累积的重要指标^[31]。以上土壤水溶态 Cd 含量与叶类蔬菜 Cd 浓度的显著相关性结果进一步证明,水溶态 Cd 可以更有效地预测土壤 Cd 的生物有效性。



Note: *, $p < 0.05$; **, $p < 0.01$; ***, $p < 0.001$. The same below.

图2 湖南攸县大棚和露天种植模式下叶类蔬菜各组织重金属含量

Figure 2 Concentrations of heavy metals in tissues of leafy vegetables sampling from greenhouse and open-field cultivation of Youxian county, Hunan province.



Note: Ws-Cd, water-soluble Cd; Ex-Cd, exchangeable Cd.

图3 湖南攸县大棚和露天种植模式下叶类蔬菜各组织Cd浓度与土壤不同形态Cd浓度和pH值的相关性

Figure 3 Correlations of Cd in leafy vegetable tissues and Cd species and pH value in rhizosphere soil sampling from greenhouse and open-field cultivation of Youxian County, Hunan Province.

对比大棚和露天两种种植模式(图3),发现大棚种植模式下叶类蔬菜Cd浓度与土壤不同形态Cd含量相关性优于露天种植模式;此外,大棚种植模式下土壤pH值与叶类蔬菜各组织Cd浓度呈显著的负相关关系,而露天种植的土壤pH值和叶类蔬菜Cd浓度无相关性。以上结果表明,对于封闭的大棚种植模式,

几乎没有大气沉降输入的干扰^[32-33],叶类蔬菜Cd主要来源于土壤;而露天种植模式下除了土壤来源外,还受到其他来源的影响。如表1所示,采集的两种种植模式下灌溉水中Cd、Pb、Cr和As的浓度远低于《农田灌溉水质标准》(GB 5084—2021)规定的重金属含量限值(10、200、100和50 $\mu\text{g/L}$);湿沉降中重金

属浓度也较低,说明灌溉水和湿沉降对露天叶类蔬菜Cd富集的影响较小。而采集的TSP样品中Cd和As的浓度明显高于我国大气干沉降Cd和As的平均浓度^[34],与湖南采矿区室内灰尘Cd(65.4 mg/kg)和As(453 mg/kg)^[35]的含量相当。已有研究报道,露

天种植的叶类蔬菜暴露于重金属大气沉降物时,叶片会吸收Cd、Pb、Cr等金属^[25, 36-39]。露天种植属于开放系统,叶类蔬菜生长过程不仅可以透过根系吸收土壤中的Cd,大气沉降也可能是影响叶类蔬菜Cd富集的重要因素。

表 1 灌溉水、湿沉降和 TSP 中重金属含量

Table 1 Concentrations of heavy metals in irrigation water, wet deposition, and TSP

Input source	Cd	Pb	Cr	As
Irrigation water/($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)	0.05±0.03(0.03-0.12)	0.62±0.42(0.30-1.35)	2.67±5.07(0.13-14.03)	0.57±0.46(0.09-1.33)
Wet deposition/($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)	0.19±0.09(0.08-0.29)	0.60±0.51(0.06-0.98)	0.11±0.05(0.07-0.18)	1.75±0.84(0.80-2.46)
TSP ^① /($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)	51.99±37.89 (30.04-151.35)	739.79±317.16 (307.41-1282.22)	43.32±7.28 (32.75-52.90)	436.98±364.64 (85.97-1245.95)

Note: ^①, the average mass of TSP samples ($n=6$) was (0.07 ± 0.01) mg/m^3 .

2.4 不同种植模式下叶类蔬菜重金属人体摄入健康风险

采集的大部分叶类蔬菜可食用部分的单一重金属风险商 $HQ < 1$, 约 10% 的样品 Cd 风险商 $HQ_{Cd} > 1$, 且呈现 $HQ_{Cd} > HQ_{As} > HQ_{Cr} > HQ_{Pb}$ 的趋势(图 4a、4b), 表明叶类蔬菜存在较高的 Cd 健康风险。多元素联合风险结果显示, 大棚和露天白苋菜的 HI 分别为 0.75 ± 0.36 和 1.23 ± 0.32 , 大棚和露天空心菜的 HI 分别为 0.57 ± 0.32 和 0.63 ± 0.26 。进一步分析发现, 大棚种植的空心菜和空心菜 Cd 健康风险占联合风险的贡献率分别为 48% 和 87%, 露

天种植分别为 50% 和 70%; 其次是 As, 贡献率为 11%~33%(图 4c、4d), 与其他研究结果相似^[17, 40]。种植土壤中 Cd 浓度较高, 且 Cd 从土壤转移到叶类蔬菜的能力更强^[13-14, 41], 这可能是导致叶类蔬菜 Cd 健康风险贡献率最大的原因。两种种植模式下, 除了大棚种植的空心菜 Cd 风险商高于露天种植外, 大棚种植的空心菜和空心菜的其他单一重金属风险商均低于露天种植; 露天种植的空心菜的 HI 大于 1, 且露天种植的空心菜的 HI 显著高于大棚种植, 说明露天种植的叶类蔬菜存在较高的健康风险。

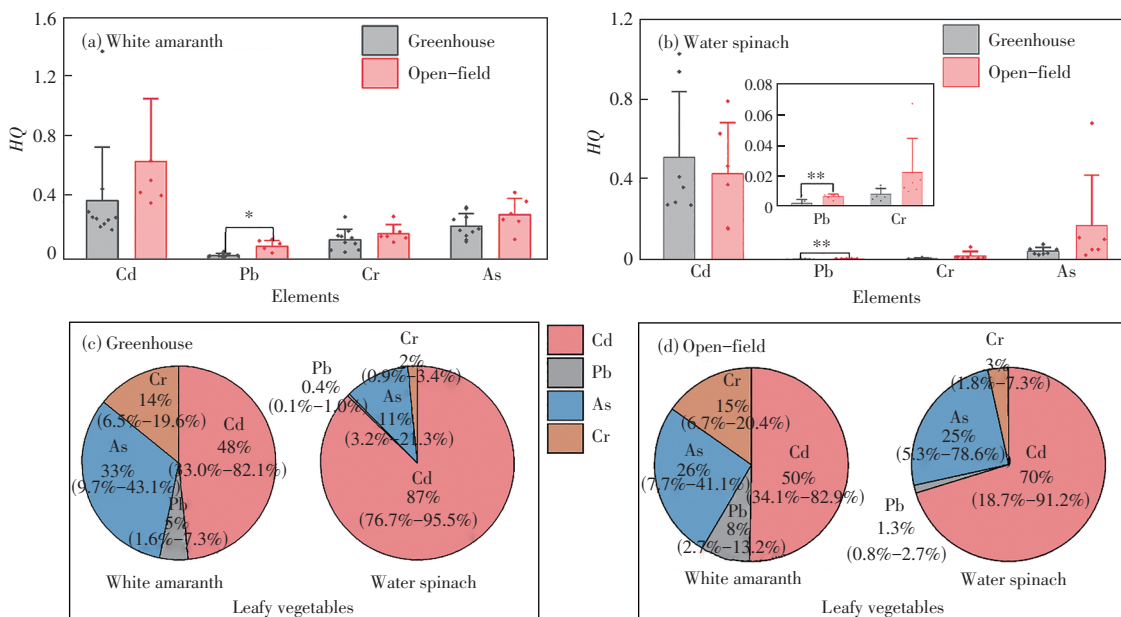


图 4 湖南攸县大棚和露天种植模式下叶类蔬菜可食用部分重金属健康风险评估

Figure 4 Health risk assessment of heavy metals in edible parts of leafy vegetables sampling from greenhouse and open-field cultivation of Youxian county, Hunan province.

3 结论

1) 湖南攸县大棚和露天叶菜种植土壤重金属含量无显著差异。其中白苋菜和空心菜种植土壤Cd含量均高于风险筛选值;大棚种植模式下,白苋菜和空心菜种植土壤分别存在30%和14%的As超标。叶菜中金属含量显示,10%的大棚白苋菜、17%的露天白苋菜、29%的大棚空心菜和17%的露天空心菜样品存在Cd超标;露天空心菜存在17%的As和Cr超标。

2) 大棚种植模式下,叶类蔬菜各组织Cd与土壤水溶态Cd显著正相关,说明水溶态Cd可以更有效地预测土壤Cd的生物有效性。大棚种植叶菜重金属可能主要来源于土壤,而露天种植叶菜还存在大气干沉降重金属输入。

3) 大部分叶类蔬菜可食用部分的单一重金属风险商 $HQ < 1$,约10%的样品 $HQ_{Cd} > 1$,且Cd贡献了联合风险的48%~87%,As贡献了11%~33%;除了大棚种植的空心菜Cd外,大棚种植的白苋菜和空心菜的其他单一重金属风险商均低于露天种植,且露天种植的白苋菜危害指数 HI 显著高于大棚种植,说明露天种植的叶菜存在较高的健康风险。

参考文献

- [1] BRIFFA J, SINAGRA E, BLUNDELL R. Heavy metal pollution in the environment and their toxicological effects on humans[J]. Heliyon, 2020, 6(9): e04691. DOI: 10.1016/j.heliyon.2020.e04691.
- [2] EDO G I, SAMUEL P O, OLONI G O, et al. Environmental persistence, bioaccumulation, and ecotoxicology of heavy metals[J]. Chemistry and Ecology, 2024, 40(3): 322-349.
- [3] ZHAO D, WANG P, ZHAO F J. Dietary cadmium exposure, risks to human health and mitigation strategies[J]. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 2022, 53(8): 939-963.
- [4] 全国土壤污染状况调查公报[J]. 中国环保产业, 2014(5): 10-11.
National soil pollution survey bulletin[J]. China Environmental Protection Industry, 2014(5): 10-11.
- [5] BHULLAR N K, GRUISSEM W. Nutritional enhancement of rice for human health: the contribution of biotechnology[J]. Biotechnology Advances, 2013, 31(1): 50-57.
- [6] SHEWRY P R, HEY S J. The contribution of wheat to human diet and health[J]. Food and Energy Security, 2015, 4(3): 178-202.
- [7] 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.
- [8] LI F L, SHI W, JIN Z F, et al. Excessive uptake of heavy metals by greenhouse vegetables[J]. Journal of Geochemical Exploration, 2017, 173: 76-84.
- [9] 曹春,任丹,吕贞英,等. 温室与大田种植方式对胡萝卜生长过程中重金属吸收的影响[J]. 环境科学, 2022, 43(2): 1004-1014.
CAO Chun, REN Dan, LYU Zhenying, et al. Effects of greenhouse and open-field cultivation on heavy metal uptake during carrot growth[J]. Environmental Science, 2022, 43(2): 1004-1014.
- [10] 杨合法,韩卉,闫勇,等. 温室蔬菜不同种植模式土壤重金属累积及风险评价[J]. 中国农学通报, 2023, 39(17): 17-25.
YANG Hefa, HAN Hui, YAN Yong, et al. Heavy metal accumulation and risk assessment of greenhouse vegetable soil under different planting patterns[J]. Chinese Agricultural Science Bulletin, 2023, 39(17): 17-25.
- [11] MENDOZA-CÓZATL D G, JOBE T O, HAUSER F, et al. Long-distance transport, vacuolar sequestration, tolerance, and transcriptional responses induced by cadmium and arsenic[J]. Current Opinion in Plant Biology, 2011, 14(5): 554-562.
- [12] 万建明,祁俊生,李廷真,等. 叶片大气重金属吸收对植物的影响研究进展[J]. 植物科学学报, 2023, 41(5): 694-704.
WAN Jianming, QI Junsheng, LI Tingzhen, et al. Impact of leaf absorption of atmospheric heavy metals on plants: a review[J]. Plant Science Journal, 2023, 41(5): 694-704.
- [13] 祁浩,庄坚,庄重,等. 不同种类蔬菜重金属富集特征及健康风险[J]. 环境科学, 2023, 44(6): 3600-3608.
QI Hao, ZHUANG Jian, ZHUANG Zhong, et al. Enrichment characteristics of heavy metals and health risk in different vegetables[J]. Environmental Science, 2023, 44(6): 3600-3608.
- [14] 赵云青,周怡,黄兴洁,等. 重金属在矿区土壤—蔬菜系统的吸收与迁移特性研究[J]. 土壤通报, 2019, 50(5): 1233-1238.
ZHAO Yunqing, ZHOU Yi, HUANG Xingjie, et al. Absorption and migration of heavy metals in soil-vegetable system in mining area[J]. Chinese Journal of

- Soil Science, 2019, 50(5): 1233-1238.
- [15] 戴雅婷. 基于GIS的稻田镉空间分布与演变趋势研究[D]. 昆明: 云南大学, 2021.
DAI Yating. Spatial distribution and change trend of cadmium in paddy field based on GIS: a case study of Youxian county[D]. Kunming: Yunnan University, 2021.
- [16] 李晓敏, 严俊霞, 杜自强, 等. 太原市蔬菜中重金属污染特征及健康风险评估[J]. 生态毒理学报, 2022, 17(2): 327-336.
LI Xiaomin, YAN Junxia, DU Ziqiang, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals in vegetables in Taiyuan city[J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2022, 17(2): 327-336.
- [17] 董俊文, 高培培, 孙洪欣, 等. 设施叶菜类蔬菜重金属镉、铅和砷累积特征及健康风险评估[J]. 环境科学, 2022, 43(1): 481-489.
DONG Junwen, GAO Peipei, SUN Hongxin, et al. Characteristics and health risk assessment of cadmium, lead, and arsenic accumulation in leafy vegetables planted in a greenhouse[J]. Environmental Science, 2022, 43(1): 481-489.
- [18] ANTONIADIS V, LEVIZOU E, SHAHEEN S M, et al. Trace elements in the soil-plant interface: phytoavailability, translocation, and phytoremediation-a review[J]. Earth-Science Reviews, 2017, 171: 621-645.
- [19] SUNGUR A, SOYLAK M, ÖZCAN H. Chemical fractionation, mobility and environmental impacts of heavy metals in greenhouse soils from Çanakkale, Turkey[J]. Environmental Earth Sciences, 2016, 75(4): 334. DOI: org/10.1007/s12665-016-5268-3.
- [20] LIU J, WANG Y N, LIU X M, et al. Occurrence and health risks of heavy metals in plastic-shed soils and vegetables across China[J]. Agriculture, Ecosystems & Environment, 2021, 321: 107632. DOI: 10.1016/j.agee.2021.107632.
- [21] LI J G, WAN X, LIU X X, et al. Changes in soil physical and chemical characteristics in intensively cultivated greenhouse vegetable fields in North China[J]. Soil and Tillage Research, 2019, 195: 104366. DOI: 10.1016/j.still.2019.104366.
- [22] HAN J P, LUO Y H, YANG L P, et al. Acidification and salinization of soils with different initial pH under greenhouse vegetable cultivation[J]. Journal of Soils and Sediments, 2014, 14(10): 1683-1692.
- [23] WANG L X, GUO Z H, XIAO X Y, et al. Heavy metal pollution of soils and vegetables in the midstream and downstream of the Xiangjiang river, Hunan province[J]. Journal of Geographical Sciences, 2008, 18(3): 353-362.
- [24] LIN L H, WU X Y, DENG X Y, et al. Mechanisms of low cadmium accumulation in crops: a comprehensive overview from rhizosphere soil to edible parts[J]. Environmental Research, 2024, 245: 118054. DOI: 10.1016/j.envres.2023.118054.
- [25] OUYANG X X, MA J, ZHANG R, et al. Uptake of atmospherically deposited cadmium by leaves of vegetables: subcellular localization by NanoSIMS and potential risks[J]. Journal of Hazardous Materials, 2022, 431: 128624. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2022.128624.
- [26] SHAHID M, DUMAT C, KHALID S, et al. Foliar heavy metal uptake, toxicity and detoxification in plants: a comparison of foliar and root metal uptake[J]. Journal of Hazardous Materials, 2017, 325: 36-58.
- [27] CHENG S W, LIU G J, ZHOU C C, et al. Chemical speciation and risk assessment of cadmium in soils around a typical coal mining area of China[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2018, 160: 67-74.
- [28] YANG Y, CHEN W P, WANG M E, et al. Regional accumulation characteristics of cadmium in vegetables: influencing factors, transfer model and indication of soil threshold content[J]. Environmental Pollution, 2016, 219: 1036-1043.
- [29] BALDANTONI D, MORRA L, ZACCARDELLI M, et al. Cadmium accumulation in leaves of leafy vegetables[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2016, 123: 89-94.
- [30] DONG Q, XIAO C L, CHENG W H, et al. Revealing the sources of cadmium in rice plants under pot and field conditions from its isotopic fractionation[J]. ACS Environmental Au, 2024, 4(3): 162-172.
- [31] LIU Y W, WANG Z D, TANG W Y, et al. Water-extractable metals as indicators of wheat metal accumulation: insights from Cd, Pb, Mn, Cu, and Zn[J]. Journal of Hazardous Materials, 2024, 479: 135745. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2024.135745.
- [32] 陈玉鹏, 梁东丽, 刘中华, 等. 大棚蔬菜土壤重金属污染及其控制的研究进展与展望[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(1): 9-17.
CHEN Yupeng, LIANG Dongli, LIU Zhonghua, et al. Analysis of present situation and control of heavy metal pollution in vegetable greenhouse soils[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2018, 37(1): 9-17.
- [33] 周泉潇, 毕春娟, 汪萌, 等. 大气沉降对叶菜重金属的污染效应及其健康风险[J]. 华东师范大学学报(自然科学版), 2018(2): 141-150.
ZHOU Xiaoxiao, BI Chunjuan, WANG Meng, et al. Pollution effects of atmospheric deposition on heavy metals in leafy vegetables and its health risks[J]. Journal of East China Normal University(Natural Science),

- 2018(2): 141-50.
- [34] 王梦梦, 原梦云, 苏德纯. 我国大气重金属干湿沉降特征及时空变化规律[J]. 中国环境科学, 2017, 37(11): 4085-4096.
WANG Mengmeng, YUAN Mengyun, SU Dechun. Characteristics and spatial-temporal variation of heavy metals in atmospheric dry and wet deposition of China[J]. China Environmental Science, 2017, 37(11): 4085-4096.
- [35] ZHAO D, WANG J Y, TANG N, et al. Coupling bioavailability and stable isotope ratio to discern dietary and non-dietary contribution of metal exposure to residents in mining-impacted areas[J]. Environment International, 2018, 120: 563-571.
- [36] XIONG T T, LEVEQUE T, AUSTRUY A, et al. Foliar uptake and metal(loid) bioaccessibility in vegetables exposed to particulate matter[J]. Environmental Geochemistry and Health, 2014, 36(5): 897-909.
- [37] XU Z Q, PENG J W, ZHU Z, et al. Screening of leafy vegetable varieties with low lead and cadmium accumulation based on foliar uptake [J]. Life, 2022, 12(3): 339. DOI: 10.3390/life12030339.
- [38] 查燕, 汤婕, 牛天新. 叶菜类蔬菜对重金属富集特征研究[J]. 江西农业大学学报, 2022, 44(3): 773-782.
CHA Yan, TANG Jie, NIU Tianxin. Study on enrichment characteristics of heavy metals in leafy vegetables[J]. Acta Agriculturae Universitatis Jiangxiensis, 2022, 44(3): 773-782.
- [39] XIONG T T, LEVEQUE T, SHAHID M, et al. Lead and cadmium phytoavailability and human bioaccessibility for vegetables exposed to soil or atmospheric pollution by process ultrafine particles[J]. Journal of Environmental Quality, 2014, 43(5): 1593-1600.
- [40] 王雪力, 潘涛, 李富. 土壤和蔬菜重金属污染及健康风险评估—以佳木斯城郊菜地为例[J]. 现代农业研究, 2023, 29(11): 112-119.
WANG Xueli, PAN Tao, LI Fu. Heavy metal pollution and health risk assessment of soil and vegetables: a case study of vegetable fields in suburban Jiamusi city[J]. Modern Agriculture Research, 2023, 29(11): 112-119.
- [41] CHANG C Y, YU H Y, CHEN J J, et al. Accumulation of heavy metals in leaf vegetables from agricultural soils and associated potential health risks in the Pearl River delta, South China[J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2014, 186(3): 1547-1560.

Study on Characteristics of Heavy Metal Accumulation in Typically Leafy Vegetables under Greenhouse and Open-field Cultivation Based on ICP-MS

PANG Tingting¹, JIN Ziyi¹, GAO Jiahui¹, PAN Yu¹, XIAO Cailing¹, CHEN Lufeng^{1*}, CAO Mengxi¹,
LIU Yanwei², YIN Yongguang², LIANG Yong^{1*}

(1. Hubei Key Laboratory of Environmental and Health Effects of Persistent Toxic Substances, School of Environment and Health, Jiangnan University, Wuhan, Hubei 430056, China;

2. Laboratory of Environmental Nanotechnology and Health Effects, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China)

Abstract With the changes in human dietary structure, exposure of heavy metals posed by consumption of vegetables has drawn more and more attention. However, the lack of study on the characteristics of heavy metal accumulation, influencing factors, and sources in leafy vegetables grown in greenhouse and open-field cultivation limited the effective control of heavy metal accumulation in vegetables. Herein, inductively coupled plasma mass spectrometer (ICP-MS) was utilized to determine the concentrations of Cd, Pb, As and Cr in white amaranth and water spinach sampling from greenhouse and open-field cultivation in Youxian county, Hunan province. The results showed that the concentrations of heavy metals in leafy vegetables grown in greenhouse were generally lower than those in open field, except for As in white amaranth and Cd in water spinach. The significantly positive relationship between concentrations of water-soluble Cd in soils and Cd in vegetables grown in greenhouse suggested that the water-soluble Cd could be used for more effectively predicting plant availability of Cd in soil. The soil was identified to be dominant source of Cd in leafy vegetables grown in greenhouse. while, both soil and atmospheric

deposition affected Cd accumulation in leafy vegetables grown in open field. The hazard quotient (HQ) of each heavy metal in white amaranth and water spinach grown in greenhouse was lower than those in open field, except for Cd in water spinach grown in greenhouse. Moreover, the hazard index (HI) in white amaranth grown in open field was significantly higher than that in greenhouse, indicating the higher health risk posed by heavy metals in leafy vegetables grown in open field. The outcomes of this study are expected to shed new light on an improved understanding of heavy metal accumulation and health risk in vegetables under greenhouse and open-field cultivation, and provide scientific basis for safe cultivation and utilization of vegetables.

Keywords heavy metals; leafy vegetables; accumulation; greenhouse cultivation; open-field cultivation

HIGHLIGHTS

- 1) Concentrations and health risks of heavy metals in leafy vegetables grown in open field were generally higher than those in greenhouse.
- 2) Water-soluble Cd can be used for more effectively predicting plant availability of Cd in soil.
- 3) Soil was identified to be dominant source of Cd in leafy vegetables grown in greenhouse, both soil and atmospheric deposition affected Cd accumulation in leafy vegetables grown in open field.