

DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20171221001

刘洋, 潘国浩, 赵永强, 等. 滨海滩涂不同围垦年代垦区农作物重金属累积特征及其与氮、磷的关系[J]. 生态毒理学报, 2018, 13(6): 186-201

Liu Y, Pan G H, Zhao Y Q, et al. Heavy metal accumulation in crops and its relationships with nitrogen and phosphorus in different-age reclaimed farmlands in tidal flat area [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2018, 13(6): 186-201 (in Chinese)

滨海滩涂不同围垦年代垦区农作物重金属累积特征及其与氮、磷的关系

刘洋¹, 潘国浩^{1,2}, 赵永强³, 付强^{1,*}, 高军⁴, 张莹莹^{1,#}, 曹亚乔¹, 姚猛¹, 崔立强¹, 严金龙¹

1. 盐城工学院环境科学与工程学院, 江苏省环境保护海涂生态与污染控制重点实验室, 盐城 224051

2. 常州大学环境与安全工程学院, 常州 213164

3. 盐城湿地珍禽国家级自然保护区, 盐城 224057

4. 生态环境部南京环境科学研究所, 南京 210042

收稿日期: 2017-12-21 录用日期: 2018-04-04

摘要: 为探明滨海滩涂围垦区农作物重金属累积特征及其与围垦年代、作物氮磷含量及化学计量比的关系, 采集盐城地区不同围垦年代(围垦 20、30、40、60 年)农田 4 种主要作物(大麦、小麦、油菜、蚕豆)样品 63 个, 测定了其根、茎叶和籽粒中 Cd、Cu、Zn、Pb、Hg、As 及全氮(N)、全磷(P)和粗蛋白(CP)含量, 分析了重金属累积特征及与围垦年代、N、P、CP 及 N/P 比的关系, 并采用单因子污染指数法和内梅罗综合污染指数法对重金属污染程度和安全水平进行了评价。结果表明, 1)围垦农田作物整株各指标含量分别为 Cd (0.52 ± 0.94)、Cu (12.98 ± 16.00)、Zn (34.93 ± 27.91)、Pb (3.50 ± 5.88)、Hg (0.0063 ± 0.0063)、As (1.94 ± 3.72) mg·kg⁻¹ 及 N (13.69 ± 8.27)、P (5.98 ± 2.24)、CP (79.55 ± 49.54) g·kg⁻¹; 籽粒中则分别为 (0.0059 ± 0.020)、(1.83 ± 1.48)、(11.13 ± 4.45)、(0.09 ± 0.30)、(0.0023 ± 0.0036)、(0.0021 ± 0.0048) mg·kg⁻¹ 及 (19.21 ± 7.68)、(6.04 ± 1.64)、(111.78 ± 47.81) g·kg⁻¹; 2)作物重金属均表现为根>茎叶>籽粒, N 和 CP 与之相反, 表现为根<茎叶<籽粒, 而 P 则表现为根>籽粒>茎叶; 3)不同围垦年代之间作物重金属、N、P、CP 含量、N/P 比及综合污染指数(P_z)均没有显著差异($P > 0.05$); 4)各作物籽粒 6 种重金属单因子污染指数均值均小于 1, 除个别样品 Pb 超标(超标率 11%)外, 其他重金属均未超标; 5)作物籽粒重金属 P_z 均值为 0.38, 表明该地区作物重金属总体处于安全级, 但大麦、小麦、油菜籽粒均有样品 Pb 含量超过警戒线, 个别样品甚至达到重度污染水平; 6)作物整株各重金属之间、重金属与 P 之间均存在显著正相关($P < 0.01$), 而重金属与 N、CP、N/P 存在显著负相关($P < 0.01$), 在籽粒中则相关性均不显著($P > 0.05$)。以上结果显示, 盐城滨海滩涂围垦区作物重金属累积与围垦时间关系不大, 其含量目前尚处于可接受范围内, 但 Pb 污染值得关注, 作物重金属与 P 之间存在一定的相互促进作用, 而与 N 存在一定的拮抗作用, 高氮低磷的机体养分状况有助于降低重金属含量。

关键词: 重金属; 农作物; 滩涂; 围垦; 盐城

文章编号: 1673-5897(2018)6-186-16 中图分类号: X171.5 文献标识码: A

Heavy Metal Accumulation in Crops and Its Relationships with Nitrogen and Phosphorus in Different-age Reclaimed Farmlands in Tidal Flat Area

Liu Yang¹, Pan Guohao^{1,2}, Zhao Yongqiang³, Fu Qiang^{1,*}, Gao Jun⁴, Zhang Yingying^{1,#},

基金项目: 国家自然科学基金项目(41301551); 江苏省自然科学基金项目(BK20130426; BK20131219)

作者简介: 刘洋(1982—), 女, 博士, 研究方向为滨海滩涂污染物生物地球化学, E-mail: ly2002wo20@126.com

* 通讯作者 (Corresponding author), E-mail: fuqiangaaa1@126.com;

共同通讯作者 (Co-corresponding author), E-mail: yy.zhang@126.com

Cao Yaqiao¹, Yao Meng¹, Cui Liqiang¹, Yan Jinlong¹

1. Key Laboratory for Ecology and Pollution Control of Coastal Wetlands (Environmental Protection Department of Jiangsu Province), School of Environmental Science and Engineering, Yancheng Institute of Technology, Yancheng 224051, China

2. School of Environmental and Safety Engineering, Changzhou University, Changzhou 213164, China

3. Jiangsu Yancheng Wetland National Nature Reserve, Rare Birds, Yancheng 224057, China

4. Nanjing Institute of Environmental Sciences, MEE, Nanjing 210042, China

Received 21 December 2017 accepted 4 April 2018

Abstract: To characterize heavy metal accumulation in crops in reclaimed farmlands of tidal flat and the relationships with reclamation ages (20, 30, 40, 60 years), nitrogen (N), phosphorus (P) and N/P, four crops including barley, wheat, rape, and broad bean were collected in the reclaimed farmlands in Yancheng City. Concentrations of Cd, Cu, Zn, Pb, Hg, As, N, P and crude protein (CP) and N/P stoichiometry in root, leaf, stem and grain were measured and then the relationships among heavy metals, reclamation ages, N, P, CP and N/P ratio were analyzed. Single factor pollution index and Nemerow comprehensive pollution index (P_z) were used to evaluate heavy metal pollution and safety in crops. The results showed that, 1) the concentrations of Cd, Cu, Zn, Pb, Hg, As, N, P, CP in whole plants were (0.52 ± 0.94) , (12.98 ± 16.00) , (34.93 ± 27.91) , (3.50 ± 5.88) , (0.0063 ± 0.0063) , (1.94 ± 3.72) mg·kg⁻¹ and (13.69 ± 8.27) , (5.98 ± 2.24) , (79.55 ± 49.54) g·kg⁻¹, respectively. Whereas, the concentrations of these indexes in grains were (0.0059 ± 0.020) , (1.83 ± 1.48) , (11.13 ± 4.45) , (0.09 ± 0.30) , (0.0023 ± 0.0036) , (0.0021 ± 0.0048) mg·kg⁻¹ and (19.21 ± 7.68) , (6.04 ± 1.64) , (111.78 ± 47.81) g·kg⁻¹, respectively. 2) The distributions of heavy metals, N and CP, and P in crops followed the order as root>stem and leaf>grain, root<stem and leaf<grain and root>grain>stem and leaf, respectively. 3) The reclamation ages did not alter the concentrations of heavy metals, N, P, and CP, and N/P ratios, and P_z significantly ($P > 0.05$). 4) The average values of single factor pollution index of heavy metals in grains, except for Pb in a few samples, were less than 1. 5) The average value of P_z was 0.38, which indicates the concentrations of heavy metals in crops in reclamation farmlands were generally safe. While, Pb concentrations in specific samples of barley, wheat and board bean exceeded the warning line. 6) In whole plants, significant positive correlations were observed among heavy metals, as well as between heavy metals and P ($P < 0.01$), and significant negative correlations between heavy metals and N, CP and N/P ratio ($P < 0.01$). In grains, the correlations were all not significant. Our results showed that reclamation ages rarely affected the heavy metal accumulation in crops in the reclaimed farmlands. The Pb pollution is urgently needed to be concerned and the risk of all other heavy metals are acceptable. In crops P likely promotes the accumulation of heavy metals, while nitrogen disables them, so high N with low P may reduce risk of heavy metals in crops.

Keywords: heavy metal; crop; tidal-flat; reclamation; Yancheng City

重金属是影响农作物产量和品质的重要因子,也是食品安全性的关键。近年来随着农产品重金属污染事件的连续发生,农作物重金属问题已引起人们的广泛关注,并成为政府、民众和环保工作者最为关心的核心环境问题之一。目前已有许多学者对不同地区不同环境下作物重金属含量及风险进行了分析和评价^[1-3],如王爽等^[4]分析了矿业活动频繁的潼关农田主要作物重金属含量,发现超过30%的作物重金属超标;杭小帅等^[5]评价了常熟高风险农田作物重金属污染程度及安全水平,发现稻米中Pb和Hg风险较高;李其林等^[6]对三峡库区主要作物中重

金属含量进行了分析,发现玉米、小麦中Pb、Cr超标严重;金亮等^[7]分析了苏北地区土壤-水稻重金属分布并评价了其安全风险,发现黄潮土上所产大米中Ni及砂礓黑土上所产大米中Ni、Pb含量超标。目前作物重金属的研究涉及方方面面,但总体来看主要工作仍集中在矿区及矿区周边,针对非污染区大面积基本农田农作物研究相对薄弱。

江苏省拥有全国最大的滨海淤泥质滩涂。滩涂通过围垦形成了大片农田,是我国东部最重要的后备耕地资源。据统计,自1950s以来,江苏省共经历了5次围垦高潮(约每10年1次),设立垦区170余

处,围垦面积达 $2\ 524\ km^2$ ^[8-10]。江苏沿海农业发达,其种植业主要依赖于围垦农田,尽管目前围垦农田在国家级自然保护区等影响下主要为非污染区,但随着沿海经济的快速发展,其同样面临巨大的重金属威胁^[11],研究滩涂围垦农田作物重金属含量、分布及潜在风险已迫在眉睫。

滩涂围垦后的农田土体发育不明显、理化性状差、肥力低下,其作物养分吸收分配、污染物累积分布等具有一定的特殊性^[12]。研究显示垦区不同耕作历史能够显著影响土壤重金属累积状况^[13-14],进而影响作物重金属的含量和分配^[6],但不同垦区之间作物重金属是否存在差异仍未可知。对于滩涂重金属的研究目前主要集中在原生滩涂、垦区土壤重金属含量、分布等^[11,15-17],而对垦区农田作物重金属的调查、分析和评价尚鲜有报道,国内仅有付红波等^[18]对珠三角滩涂围垦农田作物重金属污染特征进行了探讨,对面积

广大的苏北滩涂垦区尚未进行相关研究。

作物中的氮(N)、磷(P)等养分含量及其化学计量比(N/P)在一定程度上可以反映作物生理生化状况、土壤养分供给能力^[19],且可作为对植物营养化学过程进行初步诊断的指标^[20]。作物机体内重金属和N、P、蛋白质等可能存在一定的相互作用关系,但不同作物、不同重金属、不同环境中其相互关系可能明显不同^[21],此方面的研究目前尚不深入,对滩涂围垦农田这一特殊区域的作物养分供应与重金属的关系更未见报道。

鉴于此,本研究采集了盐城地区滨海滩涂不同围垦年代农田主要农作物,对其重金属含量、分配及污染现状进行了分析,同时探讨了作物重金属随围垦时间的变化以及与机体N、P营养状况的关系,研究结果将为进一步了解滩涂围垦的环境效应,保障垦区农产品安全提供一定的基础依据。

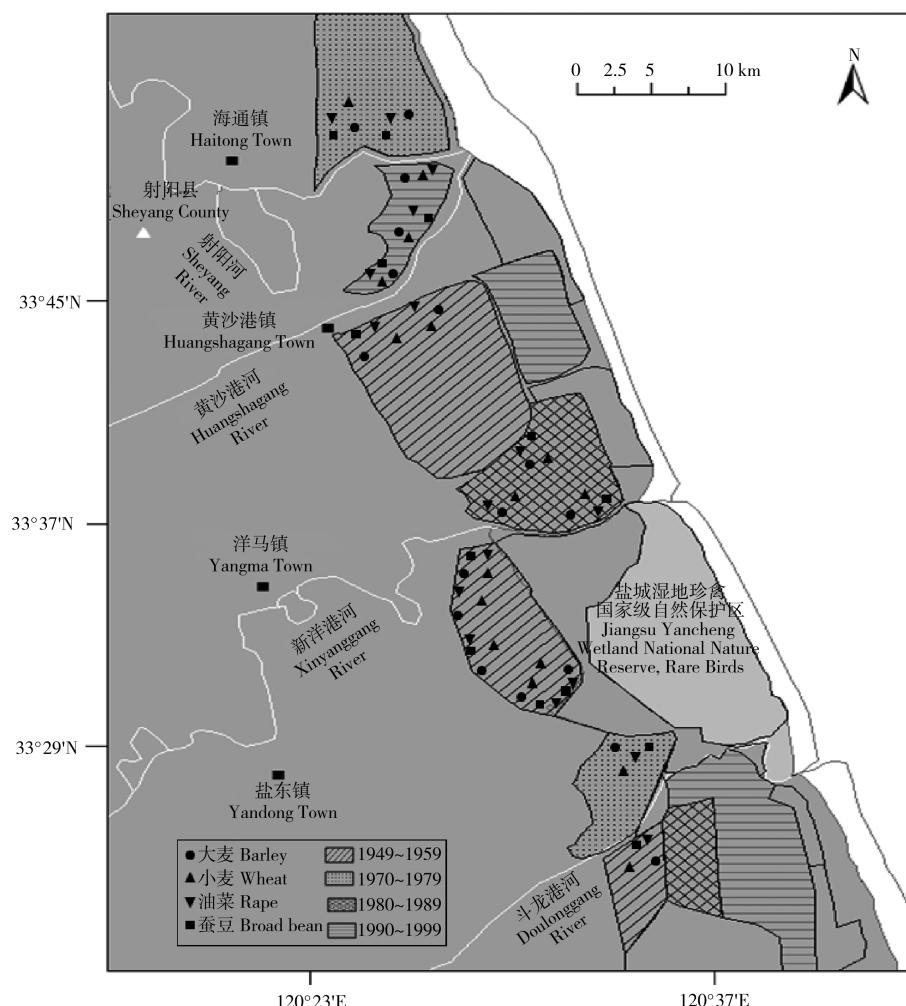


图1 农作物采样点示意图

Fig. 1 The study area and crop sampling sites

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 样品采集

于2012年5月底对盐城地区不同围垦年代农田主要农作物进行采集,样品包括大麦(*Hordeum vulgare*)、小麦(*Triticum aestivum*)、油菜(*Brassica napus*)、蚕豆(*Vicia faba*)4种。所采样品均为收获期整株作物,共63个。采样时进行充分的现场调研与鉴定,各采样点同种作物耕作方式、养分供应情况等基本相同。农作物均采集同类品种,大麦:苏啤3号;小麦:郑麦9023;油菜:秦油10号;蚕豆:启豆2号。根据现场踏查和文献[22]确定围垦年代,样点示意图见图1。各样点均处于盐城湿地珍禽国家级自然保护区缓冲区和实验区内,没有大型工矿业,属非污染区。在各样点随机采集足量样品,整株采集,根部采集范围约20 cm×20 cm×20 cm(长×宽×深)。将作物去掉枯枝落叶,纯净水洗净,滤纸充分吸干后分为籽粒、茎叶和根部3部分,风干,籽粒脱壳,采用FS-200植物粉碎机粉碎,分别放入密封袋中-20℃冷冻保存,待测。

1.2 分析方法

测定Cd、Cu、Zn、Pb、Hg、As共6种重金属,其中Cd、Cu、Zn、Pb采用HNO₃-HClO₄消解,原子吸收法测定,Hg、As采用王水消解,原子荧光法测定^[23],消解液测定相对误差<5%,回收率在95%~125%之间。全N采用H₂SO₄-H₂O₂消解,凯氏定氮法测定,全P采用H₂SO₄-H₂O₂消解,钒钼黄比色法测定。粗蛋白(CP)含量采用氮-蛋白质转换系数进行计算^[24],转换系数如下:蚕豆:6.25;大麦、小麦:5.83;油菜:5.30。氮磷化学计量比(N/P)采用质量浓度比。以植物标准物质GBW07603为参照,对分析过程进行质量控制。

1.3 评价标准与方法

以中华人民共和国农业行业标准(NY861—2004)^[25]为依据,采用单因子污染指数法和内梅罗综合污染指数法^[3,26-27]对作物重金属含量进行评价。超标情况、污染水平、安全等级等均按文献方法^[3,26]进行评价。

1.4 数据处理与统计分析

数据采用平均值±标准偏差($\bar{x} \pm SD$)表示。数据整理、绘图均采用Origin 9.0软件,统计分析采用SPSS 19.0软件。组间比较采用Mann-Whitney U非参数检验,秩次转换后,进行相关分析和多重比较,方差齐性时,采用LSD检验,方差不齐时,采用

Tamhane's检验,显著性水平 $\alpha=0.05$ 。

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 滩涂垦区农作物重金属、氮、磷、粗蛋白含量及氮磷化学计量比

滩涂垦区农作物重金属、N、P、CP含量及N/P比如表1所示。整株而言,各重金属平均含量分别为Cd(0.52±0.94)、Cu(12.98±16.00)、Zn(34.93±27.91)、Pb(3.50±5.88)、Hg(0.0063±0.0063)、As(1.94±3.72) mg·kg⁻¹,含量顺序表现为Zn>Cu>Pb>As>Cd>Hg;在籽粒中,各重金属平均含量则分别为Cd(0.0059±0.020)、Cu(1.83±1.48)、Zn(11.13±4.45)、Pb(0.09±0.30)、Hg(0.0023±0.0036)、As(0.0021±0.0048) mg·kg⁻¹,含量顺序为Zn>Cu>Pb>Cd>As≈Hg。Zn、Cu既是重金属也是植物必需元素,因此在作物体内含量通常远高于Pb、Cd、As、Hg等典型重金属^[28]。与其他地区相比^[4,18],滩涂垦区作物重金属含量普遍较低,显示出非污染区特性。土壤重金属是作物重金属的基础,研究显示,研究区围垦农田土壤除Cd相对较高外,Cu、Zn、Pb、Hg、As均处于自然背景(未发表数据),较低的土壤重金属含量是本地区作物重金属较低的主要原因。

从表1还可以看出,同一重金属变异性较大,显示不同作物之间、不同部位之间重金属含量可能存在较大差异。整株而言,Cd在油菜中相对较高,在大麦和小麦中相对较低;大麦中Cu含量相对较低,在蚕豆、油菜和小麦中差异不大($P>0.05$);Zn和As除在油菜中相对较低外,在其他3种作物中均无显著差异($P>0.05$);Pb在大麦和小麦中含量较高,在蚕豆和油菜中含量较低;Hg在大麦、小麦、蚕豆中相对较高,且没有显著差异($P>0.05$),而在油菜中含量较低。重金属在各作物籽粒中变异性较大(表2)。Cd在蚕豆籽粒中含量相对较高,在油菜籽粒中相对较低,在大麦和小麦籽粒中均未检出;Cu在蚕豆籽粒中含量较低,而在大麦、小麦、油菜籽粒中含量较高,且没有显著差异($P>0.05$);Zn和Pb在4种作物籽粒中含量均没有显著差异($P>0.05$);Hg在蚕豆籽粒中含量较高,其他3种作物籽粒Hg含量相对较低,且没有显著差异($P>0.05$)。重金属在作物植株及籽粒中含量的差异主要源于作物本身组织结构的不同以及对重金属亲和力的差异^[3,29]。

N、P是作物机体最重要的营养元素之一,其含量能够反映作物生长特点,并与作物产量、质量相关^[19],且可作为对植物营养化学初步诊断的指标^[20]。

表1 滩涂垦区农作物重金属、氮、磷、粗蛋白(CP)含量及氮磷化学计量比
Table 1 The contents of heavy metals, nitrogen, phosphorus, crude protein (CP), and N/P ratios in crops in reclaimed farmlands

Crops	统计值 Statistics	Cd	Cu	Zn	Pb	Hg	As	N	P	CP	N/P ratio
作物总体 Whole plants (n=63)	最小值 Minimum	ND (ND)	ND (ND)	2.19 (2.19)	ND (ND)	ND (ND)	ND (ND)	2.20 (9.60)	1.50 (3.00)	11.66 (55.97)	0.27 (1.49)
	最大值 Maximum	6.48 (0.090)	91.84 (4.69)	145.12 (20.83)	26.57 (1.80)	0.026 (0.012)	17.38 (0.021)	36.50 (36.50)	12.20 (9.30)	228.13 (228.13)	8.59 (6.00)
	均值 Average	0.52 (0.0059)	12.98 (1.83)	34.93 (11.13)	3.50 (0.09)	0.0063 (0.0023)	1.94 (0.0021)	13.69 (19.21)	5.98 (6.04)	79.55 (111.78)	2.70 (3.20)
	标准差 Standard deviation	0.94 (0.020)	16.00 (1.48)	27.91 (4.45)	5.88 (0.30)	0.0063 (0.0036)	3.72 (0.0048)	8.27 (7.68)	2.24 (7.68)	49.54 (1.64)	1.85 (47.81)
	变异系数 Coefficient of variation	1.79 (3.45)	1.23 (0.81)	0.80 (0.40)	1.68 (3.25)	1.00 (1.53)	1.92 (2.30)	0.60 (0.40)	0.37 (0.27)	0.62 (0.43)	0.68 (0.35)
	最小值 Minimum	ND (ND)	ND (ND)	5.84 (5.84)	ND (ND)	ND (ND)	ND (ND)	2.70 (9.60)	1.50 (3.10)	15.74 (55.97)	0.40 (1.71)
	最大值 Maximum	6.48 (ND)	91.84 (4.33)	113.00 (16.85)	26.57 (0.48)	0.026 (0.009)	17.38 (0.021)	28.70 (28.70)	9.70 (6.30)	167.32 (167.32)	7.12 (6.00)
	均值 Average	0.52 (—)	9.89 (1.86)	36.71 (11.19)	6.27 (0.028)	0.0085 (0.0017)	2.44 (0.0051)	11.17 (15.48)	5.17 (5.03)	65.14 (90.23)	2.87 (3.20)
	标准差 Standard deviation	1.07 (—)	14.90 (1.49)	25.70 (3.14)	8.66 (0.12)	0.0073 (0.0030)	3.95 (0.0072)	5.14 (4.68)	2.21 (4.68)	29.96 (0.89)	1.98 (27.29)
	变异系数 Coefficient of variation	2.08 (—)	1.51 (0.80)	0.70 (0.28)	1.38 (4.12)	0.86 (1.79)	1.62 (1.40)	0.46 (0.30)	0.43 (0.18)	0.46 (0.30)	0.69 (0.36)
大麦 Barley (n=17)	最小值 Minimum	ND (ND)	ND (ND)	2.97 (2.97)	ND (ND)	ND (ND)	ND (ND)	2.60 (10.00)	2.60 (3.90)	15.16 (58.30)	0.27 (1.49)
	最大值 Maximum	3.98 (ND)	48.36 (3.66)	108.31 (20.18)	21.07 (1.80)	0.018 (0.007)	17.04 (ND)	19.20 (19.20)	11.10 (7.10)	111.94 (111.94)	4.23 (4.23)
	均值 Average	0.48 (—)	13.58 (2.22)	36.68 (11.43)	4.54 (0.26)	0.0062 (0.001)	2.51 (—)	8.82 (14.16)	6.17 (5.67)	51.64 (82.92)	1.70 (2.57)
	标准差 Standard deviation	0.77 (—)	13.72 (1.10)	29.27 (4.86)	5.77 (0.53)	0.0054 (0.0021)	5.20 (—)	4.87 (3.23)	2.41 (0.90)	28.53 (18.57)	1.08 (0.74)
	变异系数 Coefficient of variation	1.61 (—)	1.01 (0.49)	0.80 (0.43)	1.27 (2.06)	0.88 (2.77)	2.07 (—)	0.55 (0.23)	0.39 (0.16)	0.55 (0.22)	0.63 (0.29)

续表1

农作物 Crops	统计值 Statistics	N P CP							N/P ratio
		Cd	Cu	Zn	Pb	Hg	As	N	
油菜 Rape (n=17)	最小值 Minimum	ND (ND)	ND (ND)	2.19 (2.19)	ND (ND)	ND (ND)	ND (ND)	2.20 (10.70)	2.50 (4.40)
	最大值 Maximum	4.07 (0.09)	61.05 (4.69)	103.12 (20.83)	8.17 (0.57)	0.011 (0.005)	6.36 (0.008)	34.30 (34.30)	12.20 (9.30)
	均值 Average	0.91 (0.0087)	14.13 (2.47)	29.72 (10.56)	1.66 (0.07)	0.0028 (0.0059)	0.64 (0.00076)	15.05 (20.06)	6.27 (6.96)
	标准差 Standard deviation	1.13 (0.023)	15.88 (1.68)	21.96 (4.58)	2.18 (0.19)	0.0035 (0.0014)	1.17 (0.0022)	8.45 (7.18)	2.25 (1.33)
	变异系数 Coefficient of variation	1.24 (2.67)	1.12 (0.68)	0.74 (0.43)	1.31 (2.82)	1.26 (2.41)	1.84 (2.90)	0.56 (0.36)	0.56 (0.19)
蚕豆 Broad bean (n=13)	最小值 Minimum	ND (ND)	ND (ND)	3.30 (3.30)	ND (ND)	ND (ND)	ND (ND)	7.00 (16.60)	3.00 (3.00)
	最大值 Maximum	1.09 (0.09)	81.10 (1.39)	145.12 (19.05)	5.00 (0.10)	0.021 (0.012)	13.06 (0.016)	36.50 (36.50)	9.60 (9.30)
	均值 Average	0.09 (0.017)	14.77 (0.48)	37.28 (11.45)	1.00 (0.0089)	0.0083 (0.0073)	2.29 (0.0023)	21.19 (29.22)	7.08 (7.08)
	标准差 Standard deviation	0.23 (0.035)	19.81 (0.51)	35.23 (5.55)	1.53 (0.027)	0.0068 (0.0032)	3.12 (0.0048)	9.02 (5.57)	1.81 (1.62)
	变异系数 Coefficient of variation	2.55 (2.00)	1.34 (1.08)	0.95 (0.48)	1.53 (3.09)	0.82 (0.44)	1.37 (2.10)	0.43 (0.19)	0.28 (0.23)

注:重金属含量单位均为 mg·kg⁻¹, N、P、CP含量单位均为 g·kg⁻¹;括号内数字为籽粒数据;ND 表示未检出;—表示因未检出而无法计算。

Notes: Units of the heavy metal concentration are mg·kg⁻¹, and units of N, P and CP contents are g·kg⁻¹; data of grain are shown in the parentheses; ND represents not detected; — represents unable to calculate.

作物机体 N、P 含量与作物品种、土壤质量、养分供应、耕作方式等密切相关^[30-31]。由表 2 可见,滩涂垦区作物整株 N 含量为 $(13.69 \pm 8.27) \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$, CP 含量为 $(79.55 \pm 49.54) \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 耘粒中则分别在 $(19.21 \pm 7.68) \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $(111.78 \pm 47.81) \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。N 和 CP 在整株和籽粒中的含量顺序基本一致,均表现为蚕豆>油菜>大麦≈小麦,油料作物显著高于粮食作物,而粮食作物之间差异不显著。作物整株 P 平均含量为 $(5.98 \pm 2.24) \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 籽粒中为 $(6.04 \pm 1.64) \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 整株和籽粒均为蚕豆含量最高,而大麦最低,顺序表现为蚕豆≈油菜>小麦≈大麦,同样显示油料作物高于粮食作物。一般而言,作物 N 含量通常在 0.3% ~ 5.0% 之间,P 含量通常在 0.05% ~ 0.5% 之间,因作物种类、部位、生长期、施肥管理水平而异^[23]。与以往研究相比,滩涂围垦区农作物 N 含量相对偏低,而 P 含量略高,这可能与滨海滩涂土壤低氮高磷的特性有关^[32-34]。研究显示,研究区围垦农田土壤平均 N/P 摩尔比仅为 2.8 ± 0.9 , 远低于我国土壤平均 N/P 比(5.2),垦区土壤总体表现为 N 限制^①,低氮高磷的土壤特性是作物机体 N 低 P 高的原因之一。

作物组织中的 N/P 比是养分供应状况的指标,可以反映作物对 N、P 的相对利用率,进而预测 N、P 亏缺状况^[35]。垦区作物整株 N/P 比在 0.27 ~ 8.59 之间,籽粒中则在 1.49 ~ 6.00 之间,均表现为蚕豆最高而小麦最低。与其他研究相比^[36-37],滩涂垦区作物 N/P 比相对较低,显示出本地区作物主要受到 N 限制。有研究指出,苏北滩涂垦区土壤氮含量较为缺乏,建议适当补充氮肥^[38],这与本研究结果基本一致。不同作物间 N/P 比的差异体现出不同作物对 N、P 亲和力的不同,相比而言,豆科作物更容易累积、固定 N。

2.2 农作物根、茎叶、籽粒中重金属、氮、磷、粗蛋白及 N/P 比的分布

重金属、N、P、CP 及 N/P 比在垦区作物机体中的分布如表 2 所示。重金属在作物中的分布规律基本一致,均表现为根>茎叶>籽粒,而 N 和 CP 与之相反,表现为根<茎叶<籽粒,P 则表现为根>籽粒>茎叶,而 N/P 比与 P 分布相反,主要表现为根<籽粒<茎叶。

作物吸收、转移途径决定了重金属在作物不同器官中分布的差异,此外不同器官的蓄积能力、生理机制也起到重要作用^[28]。研究显示,重金属主要由

植物根部吸收进入机体,再进一步转移到其他器官,根部通常也是新陈代谢最旺盛的器官之一,因此对重金属的蓄积能力通常最大^[39]。重金属在根部的大量蓄积,限制了其向地上部的转移,避免了植株受到伤害。在向籽粒转移过程中重金属受到多种细胞、组织屏障的阻碍,从而导致籽粒中含量相对较低,这也是植物自我保护的一种方式。

N、P 的吸收与累积是作物形成产量、提高质量的重要基础。作物在生长过程中,根系吸收的氮素和磷素在满足自身生长需求的同时,将其大部分运输至地上部还原同化,用于器官建成和产量形成^[40]。在盐城滩涂垦区,不同作物各器官 N、P 分布与文献结果基本一致^[41-42]。N/P 比的分布表明作物在将氮素和磷素运输至地上部还原同化时,累积速率并不相同,向茎叶累积过程中,N 累积明显超过 P,而再向籽粒累积过程中,P 明显高于 N。

2.3 不同围垦年代垦区农作物重金属、氮、磷、粗蛋白含量及氮磷化学计量比

不同围垦年代垦区农作物重金属、N、P、CP 含量及 N/P 比如图 2 所示。统计分析显示,不同围垦年代垦区中,同种作物重金属、N、P、CP 及 N/P 比均无显著差异;随着围垦年代的增加,作物重金属、N、P、CP 及 N/P 比也没有呈现明显的规律性变化。

土壤空间异质性是植被异质性的基础,作物生理因子的变化主要源于其所在土壤的变化,同时受到管理、灌溉、气候等多方面的影响^[6]。作为非污染区的滩涂地区,其土壤重金属主要为自然源,受人为影响较轻^[43],各垦区作物及土壤重金属来源基本一致。研究显示,滩涂围垦时间对土壤重金属含量有一定影响,不同重金属随滩涂围垦时间呈现不同的土壤累积趋势,Cd、Cu、Zn 逐渐降低,Hg、Pb、As 则没有显著规律性变化(未发表数据),总体而言,尽管土壤重金属有一定变化,但变化幅度不大^[44]。从作物来看并没有发现明显的规律性变化,这一方面可能因为土壤重金属随滩涂围垦的这种变化幅度尚不足以反映到作物机体内;另一方面也可能因为重金属总量虽然受滩涂围垦时间的影响,但不同形态受到的影响不同,而对作物起作用的主

^① 潘国浩, 刘洋, 张莹莹, 等. 滨海滩涂原生草滩及围垦农田土壤碳氮磷化学计量学特征及其随盐度的变化[J]. 江苏农业科学, 2019, (待刊)

表2 重金属、氯、磷、粗蛋白及氯磷化物化学计量比在滩涂垦区作物根、茎叶、籽粒中的分布
Table 2 Distribution of heavy metals, nitrogen, phosphorus, crude protein and N/P ratios in the grain, stem, leaf and root of crops in reclaimed farmlands

作物 Crops	Cd (mg·kg ⁻¹)	Cu (mg·kg ⁻¹)	Zn (mg·kg ⁻¹)	Pb (mg·kg ⁻¹)	Hg (mg·kg ⁻¹)	As (mg·kg ⁻¹)	N (g·kg ⁻¹)	P (g·kg ⁻¹)	CP (g·kg ⁻¹)	N/P ratio
作物总体 Whole plants (n=63)										
籽粒 Grain	0.006±0.02 ^a	1.83±1.48 ^a	11.13±4.45 ^a	0.092±0.30 ^a	0.0023±0.0036 ^a	0.0021±0.0048 ^a	19.21±7.68 ^a	6.04±1.64 ^a	11.78±4.78 ^a	3.20±1.13 ^a
茎叶 Stem and leaf	0.24±0.33 ^b	5.87±2.89 ^b	29.14±13.66 ^b	1.12±1.66 ^b	0.0041±0.0033 ^a	0.63±1.73 ^b	14.13±7.88 ^b	3.94±1.35 ^b	82.40±47.71 ^b	3.87±2.05 ^b
根 Root	1.32±1.25 ^c	31.23±15.83 ^c	64.53±25.61 ^c	9.29±7.10 ^c	0.013±0.0060 ^b	5.18±4.78 ^c	7.72±4.33 ^c	7.86±1.85 ^c	44.47±23.78 ^c	1.03±0.59 ^b
大麦 Barley (n=17)										
籽粒 Grain	ND ^a	1.86±1.49 ^a	11.19±2.14 ^a	0.028±0.115 ^a	0.0017±0.0030 ^a	0.0051±0.0072 ^a	15.48±4.68 ^a	4.75±1.46 ^a	90.23±27.29 ^a	3.20±1.16 ^a
茎叶 Stem and leaf	0.26±0.39 ^b	5.71±3.81 ^b	37.47±16.83 ^b	1.34±2.21 ^b	0.0066±0.0017 ^b	1.67±3.06 ^b	11.79±3.16 ^b	2.98±1.34 ^b	68.74±18.45 ^b	4.57±1.82 ^b
根 Root	1.28±1.57 ^c	22.03±20.18 ^c	61.66±20.07 ^c	17.19±5.40 ^c	0.017±0.0044 ^c	5.32±4.70 ^c	6.05±2.29 ^c	7.63±1.36 ^c	35.27±13.36 ^c	0.82±0.34 ^c
小麦 Wheat (n=16)										
籽粒 Grain	ND ^a	2.22±1.10 ^a	11.43±4.86 ^a	0.26±0.53 ^a	0.0010±0.0021 ^a	ND ^a	14.16±3.23 ^a	5.67±0.90 ^a	82.92±18.57 ^a	2.57±0.74 ^a
茎叶 Stem and leaf	0.18±0.23 ^b	7.50±2.48 ^b	27.36±12.21 ^b	1.77±1.60 ^b	0.0069±0.0021 ^b	0.0013±0.0038 ^a	7.23±3.70 ^b	3.74±0.77 ^b	42.48±21.91 ^b	1.98±0.89 ^a
根 Root	1.24±0.90 ^c	31.02±9.02 ^c	71.25±21.52 ^c	11.60±4.55 ^c	0.011±0.0051 ^c	7.53±6.66 ^b	5.06±1.45 ^b	9.10±1.07 ^c	29.53±8.42 ^b	0.57±0.18 ^b
油菜 Rape (n=17)										
籽粒 Grain	0.0037±0.023 ^a	2.47±1.68 ^a	10.56±4.58 ^a	0.067±0.19 ^a	0.0006±0.0014 ^a	0.0008±0.0022 ^a	20.06±7.18 ^a	6.96±1.33 ^a	106.33±38.03 ^a	2.97±1.09 ^a
茎叶 Stem and leaf	0.46±0.36 ^b	5.56±1.83 ^b	26.39±11.46 ^b	0.96±1.43 ^b	0.0014±0.0022 ^a	ND ^a	15.10±8.53 ^{ab}	4.48±1.56 ^b	80.03±45.20 ^{ab}	3.87±2.44 ^a
根 Root	2.26±0.91 ^c	34.36±11.16 ^b	52.21±20.38 ^c	3.96±1.97 ^c	0.0062±0.0033 ^b	1.91±1.31 ^b	9.98±6.70 ^b	7.36±2.54 ^a	52.92±35.53 ^b	1.37±0.82 ^b
蚕豆 Broad bean (n=13)										
籽粒 Grain	0.017±0.035 ^a	0.48±0.51 ^a	11.45±5.55 ^a	0.009±0.027 ^a	0.0073±0.0032 ^a	0.0023±0.0048 ^a	29.22±5.57 ^a	7.08±1.62 ^a	182.61±34.78 ^a	4.26±0.82 ^a
茎叶 Stem and leaf	ND ^a	4.50±2.40 ^b	24.02±9.15 ^b	0.22±0.44 ^a	0.0012±0.0015 ^b	0.86±0.57 ^b	24.40±2.61 ^b	4.74±0.78 ^b	152.48±16.33 ^b	5.28±0.94 ^b
根 Root	0.26±0.36 ^b	39.34±15.70 ^c	76.38±35.31 ^c	2.77±1.46 ^b	0.016±0.0026 ^c	5.99±2.80 ^b	9.96±1.59 ^c	7.42±1.60 ^a	62.27±9.95 ^c	1.38±0.29 ^c

注: ND表示未检出。不同小写字母表示该指标在籽粒、茎叶、根中存在显著差异($P<0.05$)。

Notes: ND represents not detected. Different lowercase letters mean the significant differences ($P<0.05$) of a certain index among root, leaf & stem, and grain.

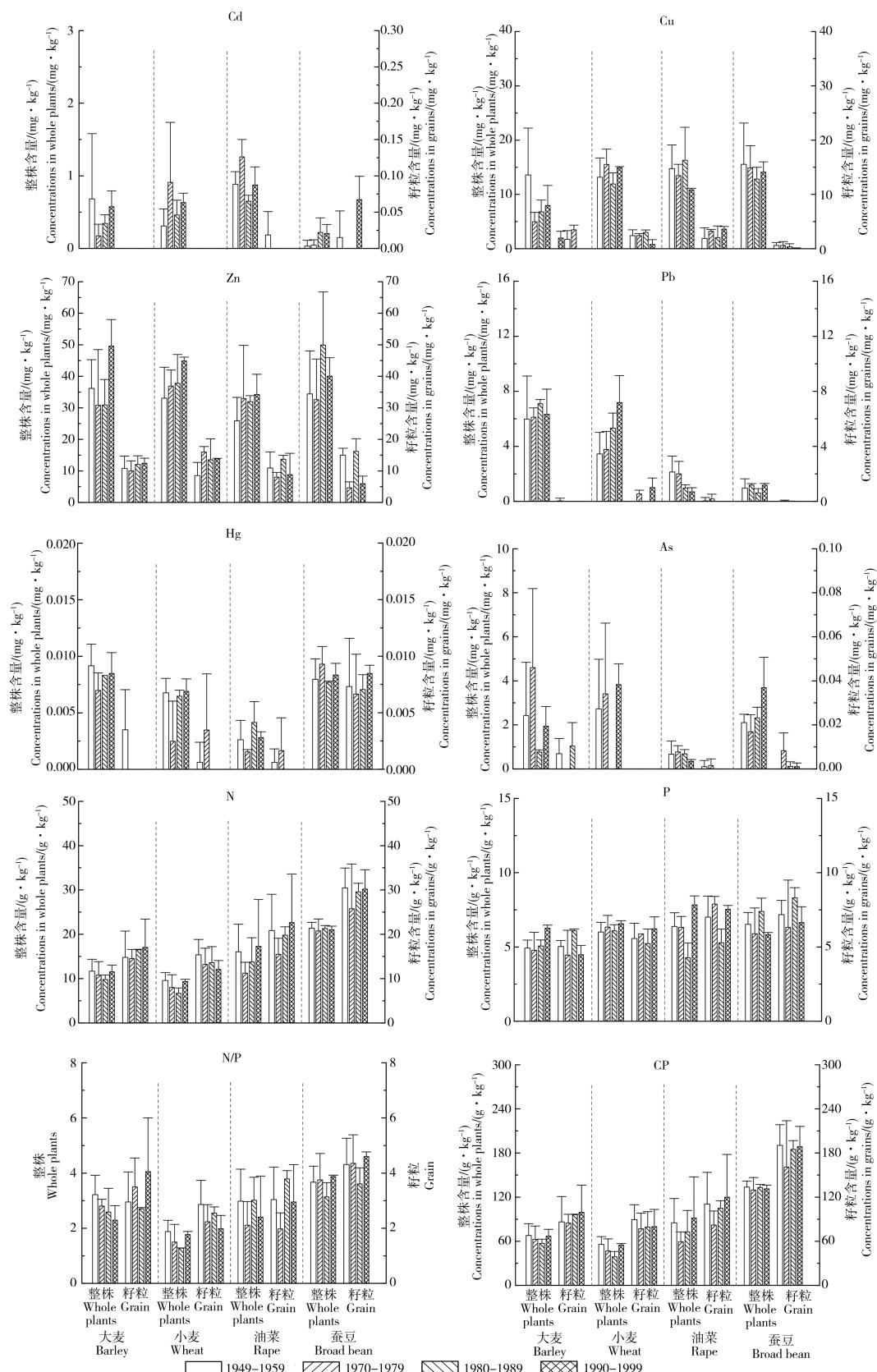


图2 滩涂垦区农作物重金属、氮、磷、粗蛋白含量及氮磷化学计量比随围垦年代的变化

Fig. 2 Variation of the contents of heavy metals, nitrogen, phosphorus, crude protein and N/P ratios in crops with reclamation ages

要是重金属的生物可利用形态。重金属生物可利用态是否受滩涂围垦时间的影响,目前尚未得到可靠的研究结果。

经过不同年代的滩涂围垦和耕作,其土壤性质可能会发生明显变化,在施肥等人为影响下,通常表现为随围垦时间延长P含量增加,由于N存在反硝化等作用,N含量随围垦时间的变化较为复杂,虽然也呈一定增加趋势,但通常低于P增加幅度^[45],在盐城滩涂垦区也发现了类似的变化趋势,但这种变化幅度可能也不足以影响到作物机体内N、P含量和N/P比,在多种因素共同影响下,作物N、P含量和N/P比并未随围垦时间呈现规律性变化。

2.4 滩涂垦区农作物籽粒重金属污染评价

2.4.1 单因子污染指数与超标率

滩涂垦区作物籽粒重金属单因子污染指数如表3所示。总体而言,各作物籽粒重金属单因子污染指数均小于1,表明总体上各重金属均未超标。单因子污染指数均值大小顺序为Pb>Zn>Cu>Hg>Cd>As,Pb和Zn相对较高,均达到轻污染水平,其中部分样品Pb单因子污染指数超过1,超标率为11%,主要为小麦籽粒,表明部分地区可能存在Pb污染,Cd、Cu、Hg、As在该地区作物籽粒中总体上处于正常背景水平。

各重金属在不同作物籽粒中的单因子污染指数均值有一定差异。Cd和As均为正常背景水平,表明Cd和As在滩涂垦区作物中污染相对较轻;Cu在小麦和油菜籽粒中达到轻污染水平,在大麦和蚕豆籽粒中均为正常背景水平;Zn在大麦、小麦和油菜籽粒中均达到轻污染水平,而在蚕豆籽粒中为正常背景水平;Hg和Zn相反,在蚕豆籽粒中达到轻污染水平,而在大麦、小麦和油菜中均为正常背景水平;Pb在大麦和蚕豆籽粒中为正常背景水平,而在油菜籽粒中为轻污染水平,在小麦籽粒中达到中度污染水平。相对而言,Pb污染较重,在大麦、小麦和油菜中均有一定数量的超标,而其他重金属尽管有些达到轻污染水平,但均未超标。

作为开发利用程度较低且没有大型工矿企业存在的地区,江苏滨海滩涂垦区土壤总体上重金属累积较低^[7,46],从而导致作物籽粒超标情况并不严重。Pb有一定程度的超标,可能与该地区日益增长的汽车尾气排放和轮胎磨损以及当地河网行船油污(抽水灌溉)有关。陈京都等^[46]研究发现江苏省典型区

农田中小麦Pb污染最为严重,这与本研究结果一致。总体而言,滩涂垦区作物Pb,尤其是小麦籽粒中的Pb累积需要引起重视。

2.4.2 综合污染指数与污染等级

滩涂垦区作物籽粒重金属综合污染指数(P_z)和污染等级如表4所示。作物籽粒 P_z 均值为0.38,表明该地区重金属整体上在安全范围以内。从污染等级来看,87%的样点处于安全范围之内,但有2%达到重度污染,值得关注。从表3、表4可以看出重度污染主要由Pb造成。

从作物类型来看,各作物籽粒的平均 P_z 均小于0.7,表明总体上4种作物籽粒也均处于安全范围之内,相对而言小麦和油菜籽粒重金属污染略重于蚕豆和大麦。从污染等级来看,蚕豆籽粒均在安全范围之内,油菜籽粒有88%在安全范围之内,有12%达到轻度污染;大麦籽粒94%在安全范围之内,6%达到警戒线;而小麦籽粒仅有69%在安全范围之内,有6%达到重度污染,相对而言小麦籽粒的重金属污染等级较高。不同作物的重金属风险差异源于其对重金属的富集和转移能力的差异,这主要与作物的生理特性、生长期长短以及对污染物敏感程度等因素有关。滩涂垦区小麦是最主要的作物,产量远高于其他作物,而相比其他作物,小麦重金属风险相对较高,今后更应引起重视。

2.4.3 不同围垦年代垦区农作物籽粒重金属综合污染指数

如图3所示,除1990—1999年代(围垦20年)垦区 P_z 均值达到警戒线(0.7)外,其他各年代垦区均在安全范围之内。统计分析表明,不同围垦年代之间 P_z 均无显著差异,且随着围垦年代的增加, P_z 没有呈现明显的规律性变化。各作物中,除1970—1979、1990—1999年代小麦Pb达到轻度污染外,其他作物 P_z 均在安全范围内,每种作物 P_z 随围垦年代也未发现规律性的变化,滩涂围垦时间对作物籽粒重金属累积及其风险的影响不大。

2.5 滩涂垦区农作物重金属、氮、磷、粗蛋白间的相关分析

农作物重金属、N、P、CP及N/P比间的Spearman相关系数如表5所示。整株作物中,各重金属之间均存在显著正相关关系($P<0.01$),显示作物对各重金属的吸收具有一定的同步性,滩涂垦区作物对重金属的富集以协同作用为主,这与其他地区有一定的相似性^[3,6,47]。

表3 滩涂垦区农作物籽粒重金属单因子污染指数与超标率

Table 3 Single factor pollution indices and over-limit rates of heavy metals in crop grains in reclaimed farmlands

农作物 Crops	统计值 Statistics	单因子污染指数 Single factor pollution indices					
		Cd	Cu	Zn	Pb	Hg	As
作物总体 Whole plants	最小值 Minimum	NA	NA	0.033	NA	NA	NA
	最大值 Maximum	0.90	0.47	0.42	4.49	0.60	0.032
	均值 Average	0.041	0.18	0.20	0.24	0.12	0.003
	污染水平 Pollution level	正常背景 Background	正常背景 Background	轻污染 Light pollution	轻污染 Light pollution	正常背景 Background	正常背景 Background
	超标率 Over-standard	0%	0%	0%	11%	0%	0%
	最小值 Minimum	NA	NA	0.12	NA	NA	NA
大麦 Barley	最大值 Maximum	NA	0.43	0.34	1.19	0.45	0.03
	均值 Average	NA	0.19	0.22	0.070	0.085	0.007
	污染水平 Pollution level	正常背景 Background	正常背景 Background	轻污染 Light pollution	正常背景 Background	正常背景 Background	正常背景 Background
	超标率 Over-standard	0%	0%	0%	6%	0%	0%
	最小值 Minimum	NA	NA	0.06	NA	NA	NA
	最大值 Maximum	NA	0.37	0.40	4.49	0.35	NA
小麦 Wheat	均值 Average	NA	0.22	0.23	0.67	0.04	NA
	污染水平 Pollution level	正常背景 Background	轻污染 Light pollution	轻污染 Light pollution	中污染 Middle pollution	正常背景 Background	正常背景 Background
	超标率 Over-standard	0%	0%	0%	25%	0%	0%
	最小值 Minimum	NA	NA	0.04	NA	NA	NA
	最大值 Maximum	0.90	0.47	0.42	1.44	0.25	0.011
	均值 Average	0.087	0.25	0.21	0.17	0.030	0.001
油菜 Rape	污染水平 Pollution level	正常背景 Background	轻污染 Light pollution	轻污染 Light pollution	轻污染 Light pollution	正常背景 Background	正常背景 Background
	超标率 Over-standard	0%	0%	0%	12%	0%	0%
	最小值 Minimum	NA	NA	0.033	NA	NA	NA
	最大值 Maximum	0.45	0.07	0.19	0.12	0.60	0.032
	均值 Average	0.087	0.024	0.11	0.011	0.37	0.005
	污染水平 Pollution level	正常背景 Background	正常背景 Background	正常背景 Background	正常背景 Background	轻污染 Light pollution	正常背景 Background
蚕豆 Broad bean	超标率 Over-standard	0%	0%	0%	0%	0%	0%

注:以中华人民共和国农业行业标准(NY861—2004)为依据;单因子污染指数<0.2 为正常背景,0.2~0.6 为轻污染水平,0.6~1 为中污染水平,>1 为重污染水平,并判定为超标;NA 表示无法计算。

Notes: The criterion of judgment is the standard (NY861-2004) established by The Ministry of Agriculture of the People's Republic of China; the single factor pollution indices <0.2 is considered to be normal background values; 0.2-0.6 is light pollution level, 0.6-1 is middle pollution level; >1 is heavy pollution level, and judged to be over-standard; NA represents unable to calculate.

表4 滩涂垦区农作物籽粒重金属综合污染指数和污染等级

Table 4 Pollution levels and comprehensive pollution indices of heavy metals of crop grains in reclaimed farmlands

农作物 Crops	统计值 Statistics	综合污染指数 Comprehensive pollution indices (P_z)	污染等级 Pollution level				
			安全 Safety ($P_z < 0.7$)	警戒线 Warning line ($0.7 < P_z \leq 1.0$)	轻度污染 Light pollution ($1.0 < P_z \leq 2.0$)	中度污染 Middle pollution ($2.0 < P_z \leq 3.0$)	重度污染 Heavy pollution ($P_z > 3.0$)
			0.05	87%	3%	8%	0%
作物总体 Whole plants	最小值 Minimum	0.05					
	最大值 Maximum	3.22	87%	3%	8%	0%	2%
	均值 Average	0.38					
大麦 Barley	最小值 Minimum	0.10					
	最大值 Maximum	0.85	94%	6%	0%	0%	0%
	均值 Average	0.26					
小麦 Wheat	最小值 Minimum	0.15					
	最大值 Maximum	3.22	69%	6%	19%	0%	6%
	均值 Average	0.63					
油菜 Rape	最小值 Minimum	0.05					
	最大值 Maximum	1.04	88%	0%	12%	0%	0%
	均值 Average	0.36					
蚕豆 Broad bean	最小值 Minimum	0.09					
	最大值 Maximum	0.43	100%	0%	0%	0%	0%
	均值 Average	0.28					

表5 滩涂垦区农作物重金属、氮、磷、粗蛋白及N/P比的 Spearman 相关分析

Table 5 Spearman correlation analysis among heavy metals, nitrogen, phosphorus, crude protein and N/P ratios in crops in reclaimed farmlands

	Cd	Cu	Zn	Pb	Hg	As	N	P	N/P	CP
Cd	1									
Cu	0.67*** (-0.23)	1								
Zn	0.65*** (-0.07)	0.79*** (-0.13)	1							
Pb	0.71*** (-0.13)	0.72*** (-0.10)	0.76*** (0.09)	1						
Hg	0.43*** (0.18)	0.56*** (-0.26*)	0.63*** (0.10)	0.62*** (-0.05)	1					
As	0.47*** (-0.06)	0.66*** (0.14)	0.64*** (-0.05)	0.62*** (0.09)	0.55*** (0.28*)	1				
N	-0.48*** (0.15)	-0.57*** (-0.10)	-0.53*** (0.11)	-0.58*** (-0.10)	-0.42*** (0.44***)	-0.41*** (-0.01)	1			
P	0.33*** (0.22)	0.33*** (0.11)	0.24** (-0.05)	0.41*** (0.19)	0.29*** (0.15)	0.41*** (-0.06)	-0.12 (0.39**)	1		
N/P	-0.51*** (0.05)	-0.59*** (-0.21)	-0.50*** (0.08)	-0.63*** (-0.17)	-0.42*** (0.44***)	-0.45*** (-0.03)	0.84*** (0.79***)	-0.59*** (-0.19)	1	
CP	-0.50*** (0.10)	-0.57*** (-0.11)	-0.52*** (0.12)	-0.58*** (-0.10)	-0.40*** (0.48***)	-0.40*** (0.03)	—	-0.12 (0.35**)	0.84*** (0.81***)	1

注:括号内为籽粒相关性数据;—存在自相关;整株 $n=186$,籽粒 $n=63$ 。*、**、***表示在0.05、0.01和0.001水平上存在显著相关性。

Notes: Correlation coefficients in parentheses are data of grains; — represents autocorrelation; whole plants, $n=186$; grains, $n=63$. * , ** , *** represent significant correlations at the 0.05, 0.01, and 0.001 levels, respectively.

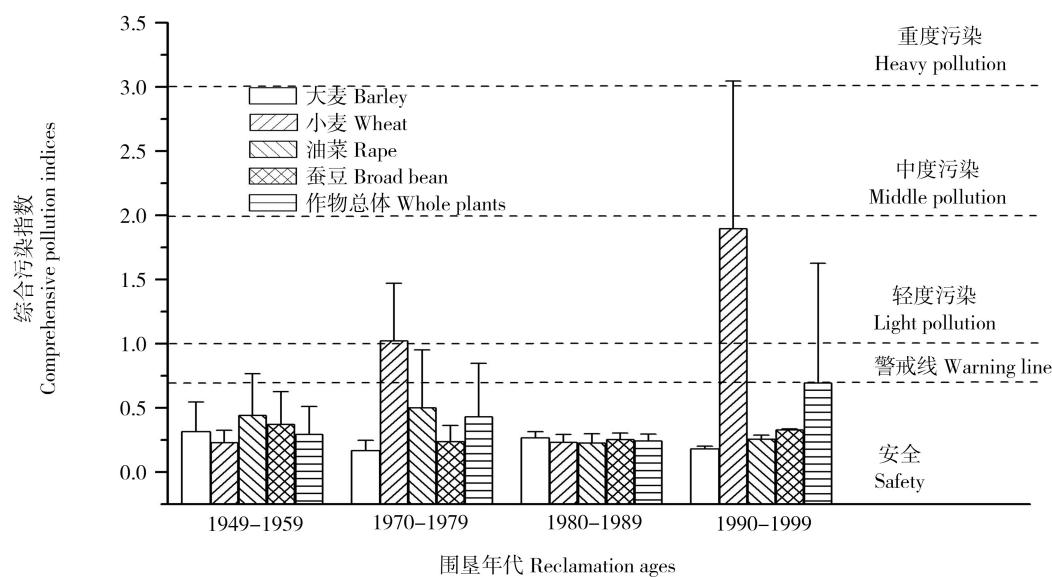


图3 不同围垦年代垦区农作物籽粒重金属综合污染指数

Fig. 3 Comprehensive pollution indices of heavy metals of crop grains in reclaimed farmlands with different reclamation ages

重金属与 N 和 CP 均存在显著负相关关系($P<0.01$)，而与 P 存在显著正相关关系($P<0.01$)，显示作物在生长过程中机体吸收重金属和氮磷累积可能存在相互的影响关系，重金属和 P 之间存在一定的相互促进作用，而和 N、蛋白质之间则存在一定的拮抗作用。整株中，各重金属与作物 N/P 比也存在显著负相关关系($P<0.01$)，显示高氮低磷的机体养分供应状况有助于降低重金属含量，而低氮高磷则可能提高重金属的累积。

研究显示植物体内氮磷含量、营养状况与重金属含量有一定关系^[48]，但这种元素之间的交互关系目前尚没有统一的规律。陈世宝等^[21]指出，植物体内 P 与重金属间的交互作用较为复杂，大多数情况下表现为拮抗，也有的表现为协同。在铜尾矿区植物中，N、P 与重金属均表现为相互促进作用^[2]。张圆圆等的^[49]研究显示，N 营养的提高能够提高植物重金属富集能力，具有一定协同性。氮磷是组成植物体的关键元素，参与植物体内核酸、蛋白质、糖、有机酸等的组成和代谢，代谢物质量的变化势必影响重金属的吸收与结合状态，而重金属的吸收与结合状态又与其在植物体内的运输及生理功能有关。鉴于生物体内元素生理过程的复杂性，重金属与 N、P 及 N/P 比的关系可能随不同地区、不同作物而异。在滩涂垦区，重金属和 P 正相关，而和 N、N/P 比负相关，滩涂垦区土壤、作物的特点(低氮高磷)有助于重金属的富集，因此在今后的滩涂围垦及作物种植过程中

要注意提高氮素含量以降低重金属富集的风险。

籽粒中，除 Hg 外，各重金属之间、重金属与 N、P、N/P 比、CP 之间均没有发现显著相关性，显示在向籽粒的转移过程中，重金属和 N、P 及蛋白质可能并不同步。由根到籽粒，N/P 比升高(表 2)，N 比 P 累积更快，受到 N、重金属拮抗作用的影响，重金属向籽粒的转移受到抑制。

通讯作者简介：付强(1975—)，男，副教授，主要从事滨海滩涂污染物生物地球化学方面的研究。

共同通讯作者：张莹莹(1976—)，女，副教授，主要从事河口、海岸带污染生态学方面的研究。

参考文献(References)：

- [1] 赵金璇, 李玉峰, 梁佳, 等. 贵阳和万山地区部分蔬菜中的重金属含量及其健康风险[J]. 生态毒理学报, 2009, 4(3): 392-398
Zhao J X, Li Y F, Liang J, et al. Contents of heavy metals in some vegetables and their potential risks to human health in Guiyang and Wanshan areas [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2009, 4(3): 392-398 (in Chinese)
- [2] 张宏, 沈章军, 陈政, 等. 铜尾矿区 9 种优势植物体内重金属和氮磷含量研究[J]. 生态环境学报, 2011, 20(10): 1478-1484
Zhang H, Shen Z J, Chen Z, et al. An investigation of heavy-metal, nitrogen and phosphorus concentration in nine dominant plant species in a copper mine tailings area

- [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2011, 20(10): 1478-1484 (in Chinese)
- [3] 麻冰涓, 王海邻, 李小超, 等. 豫北典型农田作物中重金属污染状况及健康风险评价[J]. *生态环境学报*, 2014, 23(8): 1351-1358
Ma B J, Wang H L, Li X C, et al. Pollution of heavy metals in typical crops of northern Henan Province and health risk assessment [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2014, 23(8): 1351-1358 (in Chinese)
- [4] 王爽, 李荣华, 张增强, 等. 陕西潼关农田土壤及农作物重金属污染及潜在风险[J]. *中国环境科学*, 2014, 34(9): 2313-2320
Wang S, Li R H, Zhang Z Q, et al. Assessment of the heavy metal pollution and potential ecological hazardous in agricultural soils and crops of Tongguan, Shaanxi Province [J]. *China Environmental Science*, 2014, 34(9): 2313-2320 (in Chinese)
- [5] 杭小帅, 周健民, 王火焰. 常熟市高风险区水稻籽粒重金属污染特征及评价[J]. *中国环境科学*, 2009, 29(2): 130-135
Hang X S, Zhou J M, Wang H Y. Heavy metal pollution characteristics and assessment of rice grain from a typical high risk area of Changshu City, Jiangsu Province [J]. *China Environmental Science*, 2009, 29(2): 130-135 (in Chinese)
- [6] 李其林, 黄昀, 王萍, 等. 三峡库区主要粮食作物和土壤中重金属的相关性及富积特征分析[J]. *生态环境学报*, 2012, 21(4): 764-769
Li Q L, Huang Y, Wang P, et al. Character of heavy metals of main foodstuff crop and soil in Three Gorges Reservoir [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2012, 21(4): 764-769 (in Chinese)
- [7] 金亮, 李恋卿, 潘根兴, 等. 苏北地区土壤-水稻系统重金属分布及其食物安全风险评价[J]. *生态与农村环境学报*, 2007, 23(1): 33-39
Jin L, Li L Q, Pan G X, et al. Distribution of heavy metals in the soil-rice system and food exposure risk assessment of North Jiangsu, China [J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2007, 23(1): 33-39 (in Chinese)
- [8] 姚荣江, 杨劲松, 陈小兵, 等. 苏北海涂围垦区表层土壤体积质量的空间异质性研究[J]. *土壤*, 2009, 41(4): 659-663
Yao R J, Yang J S, Chen X B, et al. Spatial heterogeneity of surface soil bulk density in coastal region of north Jiangsu Province [J]. *Soils*, 2009, 41(4): 659-663 (in Chinese)
- [9] 沈永明, 冯年华, 周勤, 等. 江苏沿海滩涂围垦现状及其对环境的影响[J]. *海洋科学*, 2006, 30(10): 39-43
Shen Y M, Feng N H, Zhou Q, et al. The status and its influence of reclamation on Jiangsu coast [J]. *Marine Sciences*, 2006, 30(10): 39-43 (in Chinese)
- [10] 严长清, 孙伟, 陆效平, 等. 江苏省沿海滩涂土地利用与生态保护研究[J]. *生态科学*, 2007, 26(3): 263-268
Yan C Q, Sun W, Lu X P, et al. Study on coastal wetlands use and its ecological protection of Jiangsu Province [J]. *Ecological Science*, 2007, 26(3): 263-268 (in Chinese)
- [11] 吕建树. 江苏典型海岸带土壤及沉积物重金属环境地球化学研究[D]. 南京: 南京大学, 2015: 15-35
Lv J S. The environmental geochemistry of heavy metals in soils and sediments in typical regions of Jiangsu coastal zone, Eastern China [D]. Nanjing: Nanjing University, 2015: 15-35 (in Chinese)
- [12] 金雯晖, 杨劲松, 王相平. 滩涂土壤有机碳空间分布与围垦年限相关性分析[J]. *农业工程学报*, 2013, 29(5): 89-94, 294
Jin W H, Yang J S, Wang X P. Spatial distribution of organic carbon in coastal saline soil and its correlation with reclamation age [J]. *Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering*, 2013, 29(5): 89-94, 294 (in Chinese)
- [13] Bai J H, Xiao R, Cui B S, et al. Assessment of heavy metal pollution in wetland soils from the young and old reclaimed regions in the Pearl River Estuary, South China [J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159: 817-824
- [14] Bai J, Cui B, Yang Z, et al. Heavy metal contamination of cultivated wetland soils along a typical plateau lake from southwest China [J]. *Environmental Earth Science*, 2010, 59(8): 1781-1788
- [15] Quan W M, Han J D, Shen A L, et al. Uptake and distribution of N, P and heavy metals in three dominant salt marsh macrophytes from Yangtze River Estuary, China [J]. *Marine Environmental Research*, 2007, 64: 21-37
- [16] 姚荣江, 杨劲松, 谢文萍, 等. 苏北滨海滩涂区土壤重金属含量及其时空变异研究[J]. *中国环境科学*, 2016, 36(6): 1810-1820
Yao R J, Yang J S, Xie W P, et al. Contents and spatio-temporal variability of soil heavy metals in the coastal mud-flat area of north Jiangsu Province [J]. *China Environmental Science*, 2016, 36(6): 1810-1820 (in Chinese)
- [17] 孟庆峰, 杨劲松, 姚荣江, 等. 滩涂围垦区土壤重金属调查及生态风险评价—以盐城市弶港镇为例[J]. *农业环境科学学报*, 2011, 30(11): 2249-2257
Meng Q F, Yang J S, Yao R J, et al. Investigation and ecological risk assessment of heavy metals pollution in reclaimed tidal flat soil: A case study of Jianggang County, China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2011, 30

- (11): 2249-2257 (in Chinese)
- [18] 付红波, 李取生, 骆承程, 等. 珠三角滩涂围垦农田土壤和农作物重金属污染[J]. 农业环境科学学报, 2009, 28(6): 1142-1146
Fu H B, Li Q S, Luo C C, et al. Heavy metals pollution in the reclaimed tidal flat soils and crops in the Pearl River Delta [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2009, 28 (6): 1142-1146 (in Chinese)
- [19] Leigh R A, Johnson A E. Nitrogen concentration in field grown spring barley: An examination of the usefulness of expressing concentration on the basis of tissue [J]. Water Journal of Agricultural Science, 1985, 105(10): 397-406
- [20] Oemlson C M. Plant Analysis as an Aid in Fertilizing Vegetable Crop [M]. Wisconsin, USA: Soil Science Society of America, 1990: 365-379
- [21] 陈世宝, 朱永官, 杨俊诚. 土壤-植物系统中磷对重金属生物有效性的影响机制[J]. 环境污染治理技术与设备, 2003, 4(8): 1-6
Chen S B, Zhu Y G, Yang J C. Mechanism of the effect of phosphorus on bioavailability of heavy metals in soil-plant systems [J]. Techniques and Equipment for Environmental Pollution Control, 2003, 4(8): 1-6 (in Chinese)
- [22] 张晓祥, 严长清, 徐盼, 等. 近代以来江苏沿海滩涂围垦历史演变研究[J]. 地理学报, 2013, 68(11): 1549-1558
Zhang X X, Yan C Q, Xu P, et al. Historical evolution of tidal flat reclamation in the Jiangsu coastal areas [J]. Acta Geographica Sinica, 2013, 68(11): 1549-1558 (in Chinese)
- [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, 1999: 308-314
Lu R K. Analysis Methods of Soil Agricultural Chemistry [M]. Beijing: China Agricultural Science and Technology Press, 1999: 308-314 (in Chinese)
- [24] 中华人民共和国卫生部. 食品中蛋白质的测定(GB 5009.5—2010)[S]. 北京: 中国标准出版社, 2010
Ministry of Health of the People's Republic of China. Determination of protein in foods (GB 5009.5-2010) [S]. Beijing: China Standard Press, 2010 (in Chinese)
- [25] 中华人民共和国农业部. 粮食(含谷物、豆类、薯类)及制品中铅、铬、镉、汞、硒、砷、铜、锌等八种元素限量(NY861—2004)[S]. 北京: 中国标准出版社, 2004
Ministry of Agriculture of the People's Republic of China. Limited contents of Pb, Cr, Cd, Hg, Se, As, Cu, Zn in grain and produce (NY861-2004) [S]. Beijing: China Standard Press, 2004 (in Chinese)
- [26] 杨国义, 罗薇, 高家俊, 等. 广东省典型区域蔬菜重金属含量特征与污染评价[J]. 土壤通报, 2008, 39(1): 133-136
Yang G Y, Luo W, Gao J J, et al. Heavy metal contents and pollution evaluation in vegetables in Guangdong Province [J]. Chinese Journal of Soil Science, 2008, 39 (1): 133-136 (in Chinese)
- [27] 张家春, 林绍霞, 张清海, 等. 贵州草海湿地周边耕地土壤与农作物重金属污染特征[J]. 水土保持研究, 2014, 21(3): 273-278
Zhang J C, Lin S X, Zhang Q H, et al. Characteristics of heavy metal pollution in crops and soil around Caohai wetland in Guizhou Province [J]. Research of Soil and Water Conservation, 2014, 21(3): 273-278 (in Chinese)
- [28] 纪玉琨, 李广贺. 作物对重金属吸收能力的研究[J]. 农业环境科学学报, 2006, 25(增刊): 104-108
Ji Y K, Li G H. Adsorption of wheat and maize on heavy metals in soils [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2006, 25(Suppl.): 104-108 (in Chinese)
- [29] 周建昌, 周丽燕, 卢春霞, 等. 不同蔬菜对污染土壤重金属的积累规律[J]. 浙江农业科学, 2018, 59(1): 11-13
Zhou J C, Zhou L Y, Lu C X, et al. Accumulating rules of different vegetables for heavy metals in polluted soils [J]. Zhejiang Agricultural Science, 2018, 59(1): 11-13 (in Chinese)
- [30] Walley F, Yates T, Groenigen J W, et al. Relationships between soil nitrogen availability indices, yield, and nitrogen accumulation of wheat [J]. Soil Science Society of America Journal, 2002, 66(5): 1549-1561
- [31] 徐祥玉, 张敏敏, 翟丙年, 等. 不同夏玉米品种生育后期干物质及氮素积累分配的研究[J]. 西北植物学报, 2006, 26(4): 772-777
Xu X Y, Zhang M M, Zhai B N, et al. Dry matter and nitrogen accumulation and partition of different summer corn varieties at the later growth stage [J]. Acta Botanica Boreali-Occidentalis Sinica, 2006, 26(4): 772-777 (in Chinese)
- [32] Verhoeven J A, Koerselman W, Meuleman A M. Nitrogen- or phosphorus- limited growth in herbaceous, wet vegetation: Relations with atmospheric inputs and management regimes [J]. Trends in Ecology and Evolution, 1996, 11(12): 494-497
- [33] 廖启林, 金洋, 黄顺生, 等. 江苏省耕作层土壤磷素分布特征初步研究[J]. 中国地质, 2006, 33(6): 1411-1417
Liao Q L, Jin Y, Huang S S, et al. Distribution characteristics of phosphorus in topsoil of Jiangsu [J]. Geology in China, 2006, 33(6): 1411-1417 (in Chinese)
- [34] 张辉, 王绪奎, 许建平, 等. 江苏省不同农区土壤碳氮分布特征及其影响因素[J]. 江苏农业学报, 2014, 30(5): 1028-1036
Zhang H, Wang X K, Xu J P, et al. Distribution characteristics of soil carbon and nitrogen and its influencing fac-

- tors in different farming regions of Jiangsu Province [J]. *Jiangsu Journal of Agricultural Science*, 2014, 30 (5): 1028-1036 (in Chinese)
- [35] Gusewell S, Koerselman W, Verhoeven J T. Biomass N:P ratios as indicators of nutrient limitation for plant populations in wetlands [J]. *Ecological Applications*, 2003, 13 (2): 372-384
- [36] 王绍强, 于贵瑞. 生态系统碳氮磷元素的生态化学计量学特征[J]. *生态学报*, 2008, 28(8): 3937-3947
Wang S Q, Yu G R. Ecological stoichiometry characteristics of ecosystem carbon, nitrogen and phosphorus elements [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2008, 28(8): 3937-3947 (in Chinese)
- [37] 邬畏, 何兴东, 周启星. 生态系统氮磷比化学计量特征研究进展[J]. *中国沙漠*, 2010, 30(2): 296-302
Wu W, He X D, Zhou Q X. Review on N:P stoichiometry in eco-system [J]. *Journal of Desert Research*, 2010, 30 (2): 296-302 (in Chinese)
- [38] 张博, 赵耕毛, 刘兆普, 等. 江苏滩涂围垦区土壤养分空间变异研究[J]. *江苏农业科学*, 2010(5): 461-464
Zhang B, Zhao G M, Liu Z P, et al. Research on the spatial variability of soil nutrient in reclaimed regions of Jiangsu Province [J]. *Jiangsu Agricultural Sciences*, 2010 (5): 461-464 (in Chinese)
- [39] 肖昕, 冯启言, 季丽英. 重金属 Cd、Cu、Zn 在小麦中富集特征的实验研究[J]. *农业环境科学学报*, 2006, 25(5): 1133-1137
Xiao X, Feng Q Y, Ji L Y. Enrichment character of heavy metals Cd, Cu and Zn in wheat [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2006, 25(5): 1133-1137 (in Chinese)
- [40] 陈贵, 陈莹, 施卫明. 太湖地区主栽高产水稻的氮素利用性[J]. *江苏农业学报*, 2013, 29(5): 928-937
Chen G, Chen Y, Shi W M. Nitrogen use efficiency in major rice cultivars with high yield in Taihu Lake region [J]. *Jiangsu Journal of Agricultural Science*, 2013, 29(5): 928-937 (in Chinese)
- [41] 沈玉芳, 李世清, 邵明安. 水肥空间组合对成熟期冬小麦各器官氮磷养分分配的影响[J]. *西北植物学报*, 2008, 28(6): 1188-1195
Shen Y F, Li S Q, Shao M A. Effects of water and fertilizer spatial coupling on the distribution of nitrogen and phosphorus in different plant components of winter wheat in ripening stage [J]. *Acta Botanica Boreali-Occidentalis Sinica*, 2008, 28(6): 1188-1195 (in Chinese)
- [42] 蒋高明, 韩荣庄, 孙建中. 闪电河流域 6 种农作物磷元素含量动态变化规律研究[J]. *植物生态学报*, 1995, 19 (4): 329-336
Jiang G M, Han R Z, Sun J Z. A study on the seasonal changes of phosphorus content of six crops in the Shandianhe River Basin, north China [J]. *Acta Phytocologica Sinica*, 1995, 19(4): 329-336 (in Chinese)
- [43] 张明, 鲍征宇, 陈国光, 等. 华东沿海滩涂区表层沉积物重金属含量特征及风险评价[J]. *环境科学*, 2017, 38 (11): 4513-4524
Zhang M, Bao Z Y, Chen G G, et al. Characteristics and risk assessment of heavy metals content in surface sediments of tidal flat area in East China [J]. *Environmental Science*, 2017, 38(11): 4513-4524 (in Chinese)
- [44] 张徐. 华东典型滩涂围垦区土壤理化性质短时间尺度演变特征[D]. 南京: 南京大学, 2016: 20-46
Zhang X. Short-term scale evolution of soil physical and chemical properties in a typical reclaimed coastal area of Eastern China [D]. Nanjing: Nanjing University, 2016: 20-46 (in Chinese)
- [45] 尹爱经. 典型滩涂围垦区土壤理化性质和磷形态演变[D]. 南京: 南京大学, 2015: 1-60
Yin A J. Changes insoil physico-chemical characteristics and phosphorus species in a typical reclaimed tidal flat area in Eastern China [D]. Nanjing: Nanjing University, 2015: 1-60 (in Chinese)
- [46] 陈京都, 戴其根, 许学宏, 等. 江苏省典型区农田土壤及小麦中重金属含量与评价[J]. *生态学报*, 2012, 32 (11): 3487-3496
Chen J D, Dai Q G, Xu X H, et al. Heavy metal contents and evaluation of farmland soil and wheat in typical area of Jiangsu Province [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2012, 32 (11): 3487-3496 (in Chinese)
- [47] 毛岭峰, 彭培好, 陈文德. 重庆地区主要作物重金属富集特征[J]. *生态学杂志*, 2009, 28(6): 1117-1122
Mao L F, Peng P H, Chen W D. Enrichment characteristics of heavy metals in main crops in Chongqing [J]. *Chinese Journal of Ecology*, 2009, 28(6): 1117-1122 (in Chinese)
- [48] Alina K P, Honry K P. Trace Elements in Soil and Plants [M]. London: CRC Press, 1996: 67-291
- [49] 张圆圆, 窦春英, 姚芳, 等. 氮素营养对重金属超积累植物东南景天吸收积累锌和镉的影响[J]. *浙江林学院学报*, 2010, 27(6): 831-838
Zhang Y Y, Dou C Y, Yao F, et al. Nitrogen application to enhance zinc and cadmium uptake by the hyperaccumulator *Sedum alfredii* [J]. *Journal of Zhejiang Forestry College*, 2010, 27(6): 831-838 (in Chinese) ◆