

文章编号:1000-8551(2011)03-0534-06

# 铅同位素比率分析技术在食品污染源解析中的应用

赵多勇 魏益民 郭波莉 魏 帅

(中国农业科学院农产品加工研究所/农业部农产品加工与质量控制重点开放实验室,北京 100193)

**摘要:**铅是一种有毒有害重金属,可通过膳食、呼吸等途径进入人体,并蓄积达到有害水平。由于食用农产品产地环境不断受到铅的污染,使得“从农田到餐桌”食品供应链在最初环节存在较大的风险,因此土壤、大气等环境介质成为食品铅污染的可能来源。为准确找到污染源并及时切断污染途径,降低危害发生的概率,追溯食品中铅污染物的来源显得尤为重要。铅同位素比率分析技术是追溯铅来源的一种有效方法,该方法结合相应模型可推测食品铅污染的来源及各污染源的相对贡献率。本文阐述了食品中铅污染物的来源,铅同位素比率分析技术溯源的原理、方法,以及该方法在蔬菜、茶叶、葡萄酒、谷物等食品铅污染物溯源中的应用现状,旨在为食品铅污染溯源和控制提供理论和技术参考。

**关键词:**铅;食品;污染源;同位素比率;解析

## APPLICATIONS OF LEAD ISOTOPE RATIOS FOR IDENTIFICATION AND APPORTIONMENT ON POLLUTION SOURCES IN FOOD

ZHAO Duo-yong WEI Yi-min GUO Bo-li WEI Shuai

(Key Laboratory of Agriculture Product Processing and Quality Control, Ministry of Agriculture/Institute of Agro-Food Science and Technology, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100193)

**Abstract:** Lead is one of the toxic heavy metals which can accumulate to an adverse effect level in human bodies through ingestion, inhalation or other pathways. Because of the persistent lead contamination in farmland environment, large risk exists in the primary stage of “from farm to table” chain. Environmental media such as soils, atmospheric aerosols were the possible lead sources of agro-food. To pinpoint the pollution sources exactly, cut off the contamination pathways in time, and reduce the risk of hazard, pollution sources tracing was very important. Lead isotope ratio combined with certain models is an effective method to discriminate correctly the pollution sources and calculate the individual source contributions. In this review, to provide theoretical and technical reference for controlling lead pollution in environment and food, lead pollution sources in food, tracing principle and methods of lead isotope ratios, and its applications on vegetable, tea, wine, cereal and other food products were concerned.

**Key words:** Lead; food; pollution source; isotope ratios; identification and apportionment

铅是一种自然界普遍存在的有毒有害金属,对人体的神经系统、免疫系统、心血管系统及生殖系统等均具有毒性作用<sup>[1]</sup>。近年来,随着采矿、冶炼、燃煤和含铅汽油的燃烧等人类活动的加剧,大量的铅被排入环境中,使部分工业区、公路两旁的土壤和空气中的铅浓

度远高于其背景值<sup>[2-5]</sup>,造成人类生存环境和农业生态环境急剧恶化。膳食途径和呼吸途径是人类主要的铅暴露途径。食品在生产、加工和贮藏过程中很容易受到环境中铅的污染,引起安全隐患。此外,铅也可通

收稿日期:2010-03-31 接受日期:2010-06-01

基金项目:农业部948项目(2009-Z45),农业部农业行业标准制定和修订(2011-403)

作者简介:赵多勇(1980-),男,新疆奇台人,在读博士,研究方向为食品质量与安全。E-mail:Luckydyz@163.com

通讯作者:魏益民(1957-),男,陕西咸阳人,博士,教授,研究方向为食品质量与安全。E-mail:weiyimin36@hotmail.com

过植物根部和/或叶面被植物组织吸收<sup>[6-9]</sup>,经由食物链进入人体组织,危害人体健康。为准确判定铅污染源并及时切断污染途径,降低危害发生的概率,判别主要污染源和责任人,追溯食品铅污染的源头显得尤为重要。

铅同位素比率分析技术是追溯环境样品中铅污染源的一种有效方法<sup>[10]</sup>,也可用其识别食品中铅的来源和污染途径。近几十年来,铅同位素比率分析技术被广泛应用于蔬菜、茶叶、葡萄酒等食品铅污染物溯源中,同时在考古<sup>[11-14]</sup>、地球化学<sup>[15,16]</sup>、大气污染源解析<sup>[17-20]</sup>等方面也得到应用。

本文概述了铅同位素比率分析技术在食品铅污染物来源解析方面的应用研究进展、存在问题及发展前景,旨在为食品铅污染溯源及解析提供理论和技术参考。

## 1 铅同位素比率分析技术溯源的原理

铅在自然界中存在<sup>208</sup>Pb、<sup>207</sup>Pb、<sup>206</sup>Pb和<sup>204</sup>Pb 4种稳定的同位素,丰度分别为51.28%~56.21%、17.62%~22.1%、20.84%~27.48%、1.04%~1.65%<sup>[21]</sup>,其中,<sup>208</sup>Pb、<sup>207</sup>Pb、<sup>206</sup>Pb分别是<sup>232</sup>Th、<sup>235</sup>U和<sup>238</sup>U放射性衰变的终产物,为放射成因稳定同位素。<sup>204</sup>Pb的半衰期为 $1.4 \times 10^{17}$  a,远大于地球的年龄 $4.6 \times 10^9$  a,可看作稳定性同位素。铅同位素组成有多种表示方法,在地球化学,特别是环境科学领域常用同位素比率来表示其组成,如<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb、<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb、<sup>208</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb等。由于<sup>204</sup>Pb在自然界中丰度较低,测定精度较差,所以一般选择<sup>206</sup>Pb、<sup>207</sup>Pb和<sup>208</sup>Pb三者中任意二者的丰度比(比率)来研究铅的来源<sup>[22-25]</sup>。

如汽油、油漆、农药等含铅产品中的铅同位素组成只与原产地矿石的同位素特征有关,而与它所经历的化学、物理变化(如冶炼)无关。铅同位素不同于碳、氢、氧、硫等轻同位素,其分子质量大,同位素分子之间质量差小,几乎不产生同位素分馏,在次生作用过程中,即使系统条件发生变化,其同位素组成也不发生变化。铅同位素比率主要由地质形成初期铀和钍的相对含量及其随后的衰变时间所决定,在地球化学上具有显著的区域化分异特征,但在同一区域相当一致。因此,铅同位素比率可作为含铅物质的一种“指纹”,识别铅的来源<sup>[10]</sup>。食品在生产、加工和贮藏过程中均有可能受到环境铅污染。通过对比分析污染源的同位素比率特征值与食品的铅同位素比率特征值,二者相似程度越高,说明该污染源对食品铅污染的贡献可能越大。

因此,利用铅同位素比率分析技术可推测食品铅污染的来源。若结合相应的模型,可计算各污染源的相对贡献率。

## 2 铅污染源解析的方法

污染源解析主要包括定性和定量解析2个方面。定性解析可识别污染物的来源,但不能计算各污染源的相对贡献率;在食品污染源解析中, (<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb) - (<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb) 作图并进行对比分析,是目前应用最为广泛的定性分析方法,这种方法通过直角坐标图可定性分析污染物的来源,其优点是比较直观,缺点是需要较大的样本量,当污染源多且比较复杂时则难以区分,必须结合浓度等指标进行综合分析。定量解析则根据污染物中铅同位素的组成,如<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb和<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb等,结合相应的模型计算样品中各污染源的相对贡献率,目前,该方法已在大气、土壤污染物来源解析方面得到广泛应用。

在定量解析污染源相对贡献率的过程中,前人建立了二元模型和三元模型。二元模型即样品中的铅可以看作2个主要污染源的混合,若一个为土壤背景产生的污染,另一个为人类活动产生的污染,则样品中的铅同位素比率介于人为源和土壤源之间,见模型A<sup>[3,24]</sup>。人类活动对样品铅的相对贡献率为:

$$X_{\text{anthropogenic}} = \frac{\left(\frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}}\right)_{\text{sample}} - \left(\frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}}\right)_{\text{background}}}{\left(\frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}}\right)_{\text{anthropogenic}} - \left(\frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}}\right)_{\text{background}}} \times 100\%$$

模型 A

其中, $X_{\text{anthropogenic}}$ 为人类活动对样品铅的相对贡献率, (<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb)<sub>sample</sub>为被污染样品的同位素比率, (<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb)<sub>anthropogenic</sub>为人类活动污染源的铅同位素比率, (<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb)<sub>background</sub>为土壤背景的铅同位素比率。模型A适用于定量分析2个污染源的相对贡献率,而对于3个或3个以上的污染源,则必须结合更多的已知参数进行计算。

如果3个主要的污染源和样品的同位素特征均已知,则可建立三元模型,如模型B<sup>[10,26,27]</sup>,并可根据该模型对各污染源的相对贡献率求解。三元模型基于以下3个假设条件:

假设一:环境样品的主要污染源为3个,次要污染源对环境样品的贡献率无限小,可忽略不计;

假设二:主要污染源对环境样品或食品的贡献率不随时间的推移而改变;

假设三:各个污染源的铅同位素特征值存在差异。

$$\begin{cases} \textcircled{1} \left( \frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_s = f_1 \left( \frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_1 + f_2 \left( \frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_2 + f_3 \left( \frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_3 \\ \textcircled{2} \left( \frac{^{208}\text{Pb}}{^{206}\text{Pb}} \right)_s = f_1 \left( \frac{^{208}\text{Pb}}{^{206}\text{Pb}} \right)_1 + f_2 \left( \frac{^{208}\text{Pb}}{^{206}\text{Pb}} \right)_2 + f_3 \left( \frac{^{208}\text{Pb}}{^{206}\text{Pb}} \right)_3 \\ \textcircled{3} f_1 + f_2 + f_3 = 1 \end{cases}$$

#### 模型 B

其中,下标符号 S 代表样品,下标 1、2、3 代表 3 个主要的污染源; $f_1$ 、 $f_2$ 、 $f_3$  分别代表三者的相对贡献率。模型 B 也可用来计算 2 个污染源的贡献率,公式②中 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 可替换为 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 进行计算。如果污染源多于 3 个,且均为主要污染源,目前还没有较为可靠的解决办法。

### 3 铅同位素比率分析技术在食品铅污染源解析中的应用

环境中的铅主要来源于含铅汽油燃烧、垃圾焚烧、工业燃煤、含铅农药、化肥、油漆的使用、工业三废排放等。食品“从农田到餐桌”整个流通过程中会受到不同来源铅的污染。近年来,各地频频曝出食品铅超标事件,引起了社会各界的广泛关注,国内外学者纷纷采用铅同位素比率分析技术探讨蔬菜、茶叶、葡萄酒等食品中铅的污染来源问题。

#### 3.1 蔬菜铅污染源解析

近年来,由于部分农田土壤和灌溉用水铅含量超标,对农业生产造成了严重威胁。据报道,部分地区蔬菜存在铅超标现象。陈天金研究了某工业污染区居民食用的 8 种蔬菜的铅含量,其范围为 $(1.41 \pm 0.22)$  mg/kg ~  $(5.47 \pm 0.71)$  mg/kg,8 种蔬菜铅的含量均超过国家标准规定的最大允许限量<sup>[28]</sup>。吴双桃等研究了潮州市郊公路边土壤和蔬菜中重金属的含量特征,10 种蔬菜中有 8 种蔬菜铅含量超标,且不同种类蔬菜对铅的富集能力存在差异<sup>[29]</sup>。但这 2 项研究均没有对蔬菜中铅的来源作分析。

Hu 等研究了南京市栖霞山铅锌矿附近 5 种蔬菜中铅、镉的污染来源,结果表明,蔬菜中的铅含量为 22.1 ~ 37.5 mg/kg(干基),蔬菜与土壤中铅同位素比率存在差异,表明土壤并非蔬菜唯一铅来源<sup>[30]</sup>。胡忻等研究了离南京栖霞山铅锌矿约 500m 的农田中采集的 6 种蔬菜及根际土壤,结果表明,蔬菜中 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  值为 1.122 ~ 1.138,明显高于土壤的值(1.124 ~ 1.130),也表明土壤并不是蔬菜中铅的唯一来源,而大气可能是其重要的来源之一<sup>[31]</sup>。以上研究表明,蔬

菜除了从土壤富集铅外,还可从其他来源富集,如大气。但上述研究对各污染源的贡献率未作分析。

李勇以某铅锌矿区种植的多种蔬菜为研究对象,对该矿区多种蔬菜的同位素特征及土壤等相关污染源的同位素特征进行了分析,建立了贡献率解析模型,根据该模型对铅污染源进行了定量解析。见模型 C<sup>[32]</sup>。

$$\begin{cases} \textcircled{4} X + Y = 1 \\ \textcircled{5} \left( \frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_{\text{蔬菜}} = X \left( \frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_1 + Y \left( \frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_2 \text{ 或} \\ \left( \frac{^{208}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_{\text{蔬菜}} = X \left( \frac{^{208}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_1 + Y \left( \frac{^{208}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}} \right)_2 \end{cases}$$

#### 模型 C

其中,下标 1、2 代表 2 个主要的污染源, X 为污染源 1 的相对贡献率, Y 为污染源 2 的相对贡献率, 2 个污染源相对贡献率总和应等于 1。该模型的前提是将 2 个污染源假设为 2 个独立的因素。如果存在 3 个污染源,则可根据模型 B 计算各污染源的相对贡献率。在模型 C 中,将式④代入式⑤进行整理后可得到二元混合模型 A,但模型 C 引入了新的参数 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 。该模型由 1 个二元一次方程组构成,见公式④和⑤。该模型基于以下 3 个假设条件:

假设一,蔬菜铅污染源只有 2 个,一个为铅锌矿冶炼排放(污染源 1),另一个为铁矿洗矿排放(污染源 2);

假设二,铅锌矿的铅同位素特征用当地矿山烧金子土的铅同位素特征代替,铁矿的铅同位素特征用铁砂矿铅同位素特征代替;

假设三,蔬菜在短时间内不存在铅代谢。

目前,大部分研究者认为土壤是蔬菜中铅的主要来源之一。但是,污染的严重程度与土壤的酸碱性、胶体含量、土壤中有机质的含量等多种因素有关。另外,大气降尘对蔬菜的污染不容忽视,尤其对小白菜、韭菜等叶菜类蔬菜的污染较为严重。

#### 3.2 茶叶铅污染源解析

茶叶铅超标问题已成为制约其出口的瓶颈,并严重影响着国内外消费者的信心。国内研究者已经证实茶叶中可富集大量的铅<sup>[33-35]</sup>,且茶叶中铅的浓度与土壤的酸碱性和有机质含量等有密切关系<sup>[34,35]</sup>。Jin 等研究表明,茶叶中的铅并非仅仅来源于土壤,还来源于非土壤因子的污染源,如汽车尾气和工业活动等<sup>[36]</sup>。

邰逸根等对西湖茶园土壤、茶叶、城区燃煤、大气气溶胶和汽车尾气等污染源同位素特征进行分析,结果表明,清洗后的茶叶铅含量显著降低,但其同位素组成不发生明显改变,茶叶中的铅与大气降尘中的铅同

源。不同区域茶叶中的铅具有同源性,与种植的农业地质背景无关。燃煤和汽车尾气排放物通过大气沉降或被茶树吸收或附着在茶叶叶面,是茶叶铅污染的重要原因<sup>[37]</sup>。

李勇对杭州地区茶叶及相应的大气降尘、土壤、燃煤飞灰、汽车尾气等环境介质的铅同位素组成进行了系统研究,表明汽车尾气和燃煤飞灰的同位素特征几乎涵盖了大气降尘、土壤和肥料等媒介的铅同位素特征,说明汽车尾气和燃煤飞灰是杭州地区环境铅的主要贡献者。茶叶及土壤的<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb 值与距公路的距离呈正相关。结合土壤、茶叶中的铅浓度和同位素比率的测定结果,西湖龙井茶铅污染来源于汽车尾气和工业燃煤,主要污染途径是大气沉降污染,而不是土壤吸收富集<sup>[32]</sup>。

可见,茶叶中铅的主要污染源并非只有土壤。土壤对茶叶铅污染有一定的贡献,其贡献率的大小与土壤环境有关;其次,大气降尘对茶叶铅污染也有贡献。由于污染源具有重叠性和非唯一性,增加了污染源贡献率计算的难度。杨红梅等认为目前茶叶中的铅污染源解析还不够深入<sup>[38]</sup>,需要作进一步研究。

### 3.3 葡萄酒铅污染源解析

葡萄酒铅超标的问题<sup>[39,40]</sup>及利用稳定性铅同位素分析其污染源方面的研究<sup>[41]</sup>在国际上已有相关报道。Medina 等分析了法国 1920~1995 之间不同年代葡萄酒中铅的浓度,结果表明,葡萄酒中铅的浓度由 20 世纪 20~30 年代时的 1316 $\mu$ g/L 逐渐下降至 90 年代时的 65 $\mu$ g/L,其污染来源随着时间推移不断发生变化,通过分析认为,葡萄酒中铅的来源包括大气、土壤、农药、化肥、添加剂、加工设备、酒瓶和瓶盖等<sup>[42]</sup>。

Rosman 等利用铅同位素特征值和浓度值对法国 1950~1991 年间葡萄酒中铅污染源进行了解析,证实自 1980 年后,由于无铅汽油的使用,汽车尾气并非葡萄酒中铅的主要污染源;瓶塞对葡萄酒中铅的贡献可以忽略;稀 HNO<sub>3</sub> 对盛装酒的玻璃酒瓶内壁溶出试验表明,酒瓶对葡萄酒的铅贡献小于 0.3%;而分装酒的含铜容器含有较高浓度的铅,可能对葡萄酒中的铅贡献最大<sup>[40]</sup>。

Mihaljević 研究了葡萄酒与葡萄园土壤<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb 和<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb 比值,结果表明,工业密集区所产葡萄酒<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb 比率为 1.178 $\pm$ 0.004,农区所产葡萄酒<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb 比率为 1.176 $\pm$ 0.007,二者与大气颗粒物的<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb 比率(1.17~1.19)很接近,与过去被汽车尾气所污染土壤的<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb 比率 1.147~1.168 显著不同,说明葡萄从大气中吸收的铅比植物根部从

土壤中吸收的铅多<sup>[43]</sup>。

从目前研究报道来看,由于研究条件、样品的来源和加工工艺等不同,葡萄酒中铅同位素特征存在差异,葡萄酒中的铅来源分析相对比较复杂。

### 3.4 谷物铅污染源解析

谷物食品受铅污染的严重程度与当地土壤和大气等环境因素密切相关。不同谷物对铅的吸收能力不同。很多研究者分析了谷物籽粒、秸秆、稻壳在生长过程中对铅的富集能力。王新等研究了玉米、水稻、大豆和小麦等作物对 Pb、Cd、Cu、Zn、As 等重金属复合污染物吸收特性,证实水稻、玉米茎叶、小麦和玉米籽粒对各重金属吸收能力表现不同,重金属由土壤迁移到作物的量极少(<1%),仍有 99% 残留在土壤中<sup>[44]</sup>。同样的研究也证实了谷物对金属的富集能力存在差异,且谷物籽粒和根部的铅来源可能不同。Bi 等研究了中国西南地区某锌冶炼厂附近种植的玉米中铅的分布和来源,通过比较分析铅同位素特征值,玉米叶面和籽粒中的铅主要通过叶面途径吸收了大气中的铅,玉米根茎部分的铅主要来源于根部吸收<sup>[9]</sup>。

李勇对环江流域北山矿场附近所产稻米中的铅来源进行了解析,在模型 C 的基础上得到铅锌矿的贡献率为 38.37%,工业燃煤的贡献率为 37.88%,汽车尾气的贡献率为 23.75%<sup>[32]</sup>。上述结果表明稻米铅的污染是铅锌矿冶炼、工业燃煤和汽车尾气三者共同作用的结果。

谷物在收获后,尤其是在贮藏和加工过程中受到的重金属污染不容忽视。在农村,很多农户将小麦或稻谷等谷物堆放在打谷场或马路上晾晒,这将会导致收获后的小麦、玉米和稻谷等谷物受到大气污染和扬尘污染。Zhao 等研究了英国 233 个大麦和 250 个小麦籽粒中铅的浓度,表明小麦籽粒铅含量最高可达 1.63mg/kg,大麦中最高含量为 0.48mg/kg,小麦在收获和贮藏过程中受到铅污染比较严重。谷物中铅的最初来源可能大部分来自大气降尘和加工贮藏中的表层污染,铅从土壤中转移至植物组织的量很有限,且转移的量与植物种类、环境条件等因素有很大的关系<sup>[45]</sup>。

### 3.5 其他食品铅污染源解析

由于环境铅污染导致森林土壤、植被等铅含量显著升高,很多文献对野生食用菌类铅污染作了报道<sup>[46-49]</sup>。如个别工业污染区的野生食用菌中的铅含量高达 165mg/kg<sup>[46]</sup>。不同种类的食用菌对同种重金属的富集能力不同<sup>[47-49]</sup>。Cast 等研究认为,野生食用菌菌体中的铅含量与土壤酸碱性及土壤有机质含量无关,土壤中重金属的迁移和利用与有机质中腐殖质有关<sup>[50]</sup>。对野

生食用菌的铅同位素特征研究未见文献报道。

大气沉降和工业废水或泄漏事故,会导致部分海域沉积物中铅含量增加。水生动物和底栖动物暴露于该环境下,其很多器官和组织中可蓄积高浓度的铅,并通过食物链在人体中累积。因此,对于水产品铅污染源追溯十分重要。研究发现贻贝类对铅的蓄积能力相对较强,而鱼类对铅的蓄积能力相对较弱,但鱼类因食物链等级比较高,受铅污染的情况更为复杂。从目前研究来看,利用铅同位素比率分析技术解析水产品组织中铅污染来源是一条有效的途径。Spencer以鱼体为研究对象,对水体铅污染物来源进行了探索<sup>[51]</sup>,结果表明,卡内欧西水域的鱼体器官同位素特征值包含了该水域人类活动污染源信息和相邻海域同位素特征信息,表明该海域鱼体受到多个污染源的污染。

近年来,对于肉、乳、皮蛋制品铅含量超标现象也有报道。食品在加工、贮藏及包装过程中容易被环境中浮尘或包装容器污染,如松花蛋在加工过程中使用黄丹粉,包装午餐肉的容器或盛放食品的陶瓷器皿等均为食品铅污染源。利用铅同位素比率分析技术对肉类、乳品和蛋品的污染源解析还未见文献报道。

#### 4 结语

铅同位素比率分析技术是食品铅污染源解析的一种有效方法,但目前国内外在这方面的研究仅处于探索阶段,而且大多研究是通过比较直观的坐标图法定性解析污染源,对污染源贡献率的定量解析较少。此外,在实际应用中,如果污染源较多、背景较复杂,污染源解析的难度就更大,因此,需要建立和完善相应的定量源解析模型,提高污染源解析的准确度,减少不确定性。

随着环境污染的加剧和食品安全问题的日益严峻,食品污染源解析显得尤为重要,铅同位素比率分析技术在该领域将有广阔的应用前景。

#### 参考文献:

[1] 常元勋. 金属毒理学 [M]. 北京: 北京大学医学出版社, 2008: 217 - 346

[2] Duzgoren-Aydin N S. Sources and characteristics of lead pollution in the urban environment of Guangzhou [J]. Science of the Total Environment, 2007, 385: 182 - 195

[3] Hou X, Parent M, Savard M M, et al. Lead concentrations and isotope ratios in the exchangeable fraction: tracing soil contamination near a copper smelter [J]. Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis, 2006, 6: 229 - 236

[4] Chen J M, Tan M G, Li Y L, et al. A lead isotope record of shanghai atmospheric lead emissions in total suspended particles during the period of phasing out of leaded gasoline [J]. Atmospheric Environment, 2005, 39: 1245 - 1253

[5] 吴龙华, 张长波, 章海波, 骆永明. 铅稳定同位素在土壤污染物来源识别中的应用 [J]. 环境科学, 2009, 30(1): 227 - 230

[6] Harrison R M, Chirgawi M B. The assessment of air and soil as contributors of some trace metals to vegetable plants I. Use of a filtered air growth cabinet [J]. Science of the Total Environment, 1989, 83: 13 - 34

[7] Sharma R K, Agrawal M, Marshall F M. Heavy metal (Cu, Zn, Cd and Pb) contamination of vegetables in urban India: A case study in Varanasi [J]. Environmental Pollution, 2008, 154: 254 - 263

[8] Wang G, Su M Y, Chen Y H, et al. Transfer characteristics of cadmium and lead from soil to the edible parts of six vegetable species in southeastern China [J]. Environmental Pollution, 2006, 144: 127 - 135

[9] Bi X Y, Feng X B, Yang Y G, et al. Allocation and source attribution of lead and cadmium in maize (*Zea mays* L.) impacted by smelting emissions [J]. Environmental Pollution, 2009, 157: 834 - 839

[10] Cheng H F, Hu Y A. Lead (Pb) isotopic fingerprinting and its applications in lead pollution studies in China: A review [J]. Environmental Pollution, 2010, 158: 1134 - 1146

[11] 金正耀. 铅同位素示踪方法应用于考古研究的进展 [J]. 地球学报, 2003, 24(6): 548 - 551

[12] Sealy J C, Armstrong R, Schrire C. Beyond lifetime averages: tracing life histories through isotopic analysis of different calcified tissues from archaeological skeletons [J]. Antiquity, 1995, 69: 290 - 300

[13] Budd P, Montgomery J, Cox A, et al. The distribution of lead within ancient and modern human teeth: Implications for long-term and historical exposure monitoring [J]. The Science of the Total Environment, 1998, 220: 121 - 136

[14] Brill R H, Yamasaki K, Barnes I L, et al. Lead isotopes in some Japanese and Chinese glasses [J]. Ars orientalis, 1979, 13: 87 - 109

[15] Doe B R. Lead Isotopes [M]. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, New York, 1970: 1 - 10

[16] 吴开兴, 胡瑞忠, 毕献武, 彭建堂, 唐群力. 矿石铅同位素示踪成矿物质来源综述 [J]. 地质地球化学, 2002, 30(3): 73 - 81

[17] Sturges W T, Barrie L A. The use of stable lead 206/207 isotope ratios and elemental composition to discriminate the origins of lead in aerosols at a rural site in eastern Canada [J]. Atmospheric Environment, 1989, 23(8): 1645 - 1657

[18] Flament P, Bertho M L, Deboudt K, et al. European isotopic signatures for lead in atmospheric aerosols: a source apportionment based upon <sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb ratios [J]. The Science of the Total Environment, 2002, 296: 35 - 57

[19] 王琬, 刘咸德, 鲁毅强, 郭冬发, 李玉武, 田肖丹, Adams F. 北京冬季大气颗粒物中铅的同位素丰度比的测定和来源研究 [J]. 质谱学报, 2002, 23(1): 21 - 29

- [20] 李显芳, 刘咸德, 李冰, 董树屏, 刘锋, Lierde V V, Vanhaecke F. 北京大气 PM<sub>2.5</sub> 中铅的同位素测定和来源研究 [J]. 环境科学, 2006, 27(3): 401-407
- [21] Rosman K J R, Taylor P D P. IUPAC table of isotopic compositions of the elements [J]. Pure and Applied Chemistry, 1998, 70(1): 217-235
- [22] Erel Y. Mechanisms and velocities of anthropogenic Pb migration in Mediterranean soils [J]. Environmental research, Section A, 1998, 78: 112-117
- [23] Gulson B. Stable lead isotopes in environmental health with emphasis on human investigations [J]. Science of the Total Environment, 2008, 400: 75-92
- [24] Monna F, Lancelot J, Croudace I W, et al. Pb isotopic composition of airborne particulate material from France and the southern united kingdom: Implications for Pb pollution sources in urban areas [J]. Environmental Science Technology, 1997, 31: 2277-2286.
- [25] Hopper J F, Ross H B, Syrges W T, et al. Regional source discrimination of atmospheric aerosols in Europe using the isotopic composition of lead [J]. Tellus, 1991, 43B: 45-60
- [26] Chiaradia M, Chenhall B E, Depers A M, et al. Identification of historical lead sources in roof dusts and recent lake sediments from an industrialized area: indications from lead isotopes [J]. The Science of the Total Environment, 1997, 205: 107-128
- [27] Gobeil C. Sources and burden of lead in St. Lawrence estuary sediments: isotopic evidence [J]. Environmental Science Technology, 1995, 29: 193-201
- [28] 陈天金. 铅高暴露地区人群膳食安全暴露评估 [D]. 陕西: 西北农林科技大学, 2006: 24-30
- [29] 吴双桃, 朱慧. 市郊公路边上土壤和蔬菜中重金属含量特征 [J]. 湖北农业科学, 2009, 48(3): 587-589
- [30] Hu X, Ding Z H. Lead/Cadmium contamination and lead isotopic ratios in vegetables grown in Vegetables Grown in Peri-Urban and mining/smelting contaminated sites in Nanjing, China [J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 2009, 82: 80-84
- [31] 胡忻, 曹密. 农田蔬菜中重金属污染和铅稳定同位素特征分析 [J]. 环境污染与防治, 2009, 31(3): 102-104
- [32] 李勇. 植源性食品产地及铅污染溯源技术研究 [D]. 北京: 中国农业科学院, 2008: 53-60, 111-112
- [33] Han W Y, Zhao F J, Shi Y Z, et al. Scale and causes of lead contamination in Chinese tea [J]. Environmental Pollution, 2006, 139: 125-132
- [34] Jin C W, Zheng S J, He Y F, et al. Lead contamination in tea garden soils and factors affecting its bioavailability [J]. Chemosphere, 2005, 59: 1151-1159
- [35] Han W Y, Shi Y Z, Ma L F, et al. Effect of liming and seasonal variation on lead concentration of tea plant (*Camellia sinensis* (L.) O. Kuntze) [J]. Chemosphere, 2007, 66: 84-90
- [36] Jin C W, He Y F, Zhang K, et al. Lead contamination in tea leaves and non-edaphic factors affecting it [J]. Chemosphere, 2005, 61: 726-732
- [37] 酃逸根, 路远发. 西湖茶园茶叶铅污染铅同位素示踪 [J]. 物探与化探, 2008, 32(2): 180-185
- [38] 杨红梅, 路远发, 段桂玲, 吕红, 刘焰, 章丽娟, 梅玉萍, 马丽艳. 茶叶中铅同位素比值的测定方法 [J]. 地球化学, 2005, 34(4): 373-378
- [39] Gulson B L, Lee T H, Mizon K J, et al. The application of lead isotope ratios to the determine the contribution of the tin-lead to the lead content of wine [J]. American Journal of Enology and Viticulture, 1992, 43: 180-190
- [40] Rosman K J R, Chisholm W, Jimi S, et al. Lead concentrations and isotopic signatures in vintages of french wine between 1950 and 1991 [J]. Environmental Research, 1998, 78: 161-167
- [41] Augagneur S, Medina B, Grousset F. Measurement of lead isotope ratios in wine by ICP-MS and its applications to the determination of lead concentration by isotope dilution [J]. Fresenius' Journal of Analytical Chemistry, 1997, 357: 1149-1152
- [42] Medina B, Augagneur S, Barbaste M, et al. Influence of atmospheric pollution on the lead content of wines [J]. Food Additives and Contaminants, 2000, 17(6): 435-445
- [43] Mihaljević M, Ettler V, Šebek O, et al. Lead isotopic signatures of wine and vineyard soils-tracers of lead origin [J]. Journal of Geochemical Exploration, 2006, 88: 130-133
- [44] 王新, 吴燕玉. 不同作物对重金属复合污染物吸收特性的研究 [J]. 农业环境保护, 1998, 17(5): 193-196
- [45] Zhao F J, Adams M L, Dumont C, et al. Factors affecting the concentrations of lead in British wheat and barley grain [J]. Environmental Pollution, 2004, 131: 461-468
- [46] Komarek M, Chrastny V, Stichova J. Metal/ metalloid contamination and isotopic composition of lead in edible mushrooms and forest soils originating from a smelting area [J]. Environment International, 2007, 33: 677-684
- [47] Yamac M, Yidiz D, Sarikürkcü C, et al. Heavy metals in some edible mushrooms from the central Anatolia, Turkey [J]. Food Chemistry, 2007, 103: 263-267
- [48] Demirbas A. Accumulation of heavy metals in some edible mushrooms from Turkey [J]. Food Chemistry, 2000, 68: 415-419
- [49] Demirbas A. Concentrations of 21 metals in 18 species of mushrooms growing in the East Black Sea region [J]. Food Chemistry, 2001, 75: 453-457
- [50] Cast C H, Jansen E, Bierling J, et al. Heavy metals in mushrooms and their relationship with soil characteristics [J]. Chemosphere, 1988, 17(4): 789-799
- [51] Spencer K, Shafer D J, Gaudie R W, et al. Stable lead isotope ratios from distinct anthropogenic sources in fish otoliths: a potential nursery ground stock marker [J]. Comparative Biochemistry and Physiology, Part A, 2000, 127(3): 273-284

(责任编辑 高美须 裴颖)