

天津地区人群对六六六的暴露分析

郭淼¹, 陶澍^{1*}, 杨宇¹, 李本纲¹, 曹军¹, 王学军¹, 刘文新¹, 徐福留¹, 吴永宁²

(1. 北京大学环境学院, 地表过程分析与模拟教育部重点实验室, 北京 100871; 2. 中国疾病预防控制中心营养与食品安全研究所, 北京 100050)

摘要:以天津地区六六六(HCH)各介质浓度的实测数据和文献中相关参数为基础资料, 采用多介质暴露模型, 估算了天津地区人群对环境 HCH 的暴露水平. 计算结果说明, 该地区人群的终身日均暴露量为 $0.05 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$, 儿童、青少年和成人亚群的暴露水平分别为 0.10 、 0.06 和 $0.04 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$. 膳食摄入占总暴露量的 87% 以上, 是最主要的途径; 其次是呼吸暴露, 对总暴露的贡献达 5%~10%. 各项参数中, 膳食结构和食品、气相 HCH 残留水平是影响暴露的重要因素.

关键词:人群暴露; 六六六; 暴露模型; 慢性日均暴露量

中图分类号: X144 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2005)01-0164-04

Population Exposure to HCH in Tianjin Area

GUO Miao¹, TAO Shu¹, YANG Yu¹, LI Ben-gang¹, CAO Jun¹, WANG Xue-jun¹, LIU Wen-xin¹, XU Fu-liu¹, WU Yong-ning²

(1. Laboratory for Earth Surface Processes, College of Environ. Sci., Peking University, Beijing 100871, China; 2. Institute of Nutrition and Food Hygiene, Chinese Academy of Preventive Medicine, Beijing 100050, China)

Abstract: The population exposure to HCH in Tianjin area is estimated based on field data on media concentration and other data from the literature. A multimedia / multipathway human exposure model is employed to calculate the population's Chronic Daily Intake (CDI) of HCH. The population's lifetime CDI was $0.05 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$, and the daily exposures of child, youth and adult were 0.10 , 0.06 , and $0.04 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$, respectively. The result indicates that diet exposure was the most important route, accounting for 87% of total dose. Respiration ranked second and contributed 5%~10% of the total dose.

Key words: population exposure; HCH; exposure model; chronic daily intake

有机氯农药六六六(HCH)曾在我国大规模使用. 虽然目前已被禁用, 但在环境中仍有大量残留. 环境中的 HCH 很容易通过生物富集和食物链进入人体, 对人体免疫、神经和生殖系统产生慢性毒理. 近年研究还表明 HCH 具有致癌和内分泌干扰作用^[1]. 为了定量研究 HCH 类有机氯污染物对人体健康的危害, 有必要对其进行暴露分析. 例如, White more 等人采用间接暴露估算的方法研究了美国城市环境中包括 HCH 在内的农药残留物对城市居民的暴露水平^[2]. 又如美国国家环保局开展的 NHEXAS 项目, 是针对全国范围内有机氯农药等多种化学污染物的多介质人体暴露研究, 为环境风险评价提供了重要的基础数据^[3]. 而我国已开展了 3 次总膳食研究, 其中针对食品中农药残留的监测为人群通过膳食途径对 HCH 等有机氯农药的暴露分析提供了数据基础^[4].

天津地区曾大量生产和使用 HCH, 至今各主要环境介质中的残留水平仍相当高^[5~6], 其对人体健康的潜在影响不容忽视. 为了有效评价天津地区环境中的 HCH 对居民的暴露风险, 减少健康风险评

价中的不确定性, 同时为天津地区人群对 HCH 的暴露随时间的变化趋势分析提供数据基础和方法结果上的借鉴与参考, 本研究以天津地区 HCH 各介质浓度的实测数据为依据, 借助多介质人体暴露模型估算天津地区人群对 HCH 的慢性暴露水平, 即日均暴露量及终身日均暴露量. 并根据灵敏度分析结果判断不同输入参数的相对重要性.

1 研究方法

1.1 模型框架

根据不同年龄的行为特征, 将所研究人群划分为 3 个亚群: 0~6 岁儿童(敏感人群); 6~18 岁青少年(中度敏感人群)和 18 岁以上成人(普通人群). 考虑到研究地区人群的行为特征, 年龄段划分较多数文献资料多一个亚群^[7]. 分别计算 14 种可能暴露途径(摄食灰尘、谷类、蔬菜、鱼类、肉类、油脂、水果、奶

收稿日期: 2004-02-02; 修订日期: 2004-06-01

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(40332015, 40024101), 地表过程分析与模拟教育部重点实验室开放项目(49525102)

作者简介: 郭淼(1979~), 女, 硕士生, 主要研究方向为环境地球化学
* 通讯联系人 E-mail: taos@urban.pku.edu.cn

类、蛋类、饮水、气态吸入、固态吸入,以及大气降尘和洗浴水皮肤暴露)导致的暴露量.特定亚群(i)通过特定途径(j)的实际暴露量(D_{ij} , mg)等于介质浓度(c_{ij} , $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)、摄取因子(IR_{ij} , $\text{kg} \cdot \text{d}^{-1}$)和吸收因子(f_{ij} , 无量纲)的乘积在暴露时间段($t_1 \sim t_2$, d)内的积分:

$$D_{ij} = \int_{t_1}^{t_2} c_{ij}(t) f_{ij}(t) IR_{ij}(t) dt,$$

$i = 1 \dots 3, j = 1 \dots 14$ (1)

式中, c_{ij} 、 IR_{ij} 和 f_{ij} 均为时间的函数.可以根据特定亚群和特定途径实际暴露量以及体重(w_i , kg)及该途径年均暴露时间(t , d)分别计算 3 个亚群 14 种暴露途径各自的日均暴露量 (CDI_{ij} , $\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$):

$$CDI_{ij} = \frac{D_{ij}}{W_i t}, \quad i = 1 \dots 3, j = 1 \dots 14$$
(2)

所有暴露途径日均暴露量的加和即为特定亚群日均暴露总量(CDI_i , $\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$),据此可以计算终身日均暴露量 $DOSE$ (式中 L 为人群平均终身寿命):

$$CDI_i = \sum_{j=1}^{14} CDI_{ij}, i = 1 \dots 3$$
(3)

$$DOSE = \frac{6 CDI_1 + 12 CDI_2 + (L - 18) CDI_3}{L}$$
(4)

1.2 参数识别

表 1 列举的参数包括介质浓度和暴露因子 2 类.前者分介质浓度(13 种)和食物浓度(9 种),后者包括时间-行为模式因子(24 种)和生理因子(12 种) 2 类.共计 58 种.其中暴露因子类参数因亚群不同而异.本研究采用的介质浓度大多来自对天津

表 1 暴露模拟参数

Table 1 Exposure simulation parameters		
类别	参数	文献
介质浓度	采暖与非采暖期室内外降尘、大气、大气颗粒物和土壤浓度	[5~6]
食物浓度	谷类、蔬菜、鱼类、肉类、油脂、水果、奶类、蛋类及饮水浓度	[9~10]
行为模式	食物、饮水及土壤摄食率、食物暴露频率、呼吸率、洗浴次数和时间、采暖期天数、室内/外活动时间和睡眠时间、采暖/非采暖期室内/外皮肤暴露面积、年均暴露时间	[11~13]
生理因子	寿命、体重、皮肤面积、洗浴水皮肤渗透系数、室内/外皮肤接触降尘面积、消化道、呼吸道和皮肤吸收因子	[10, 14~15]

的近期调查,食物浓度中除鱼类、粮食、蔬菜及饮水来自本实验室实测结果外,其它取自第 3 次总膳食调查得到的全国均值.行为和生理因子取自相关文献.上述 4 类参数中,介质和食物浓度数据的实际变

异性很大.本计算所依据的原始数据中土壤、降尘和颗粒物的 HCH 浓度数据来自本实验室对天津地区的实地监测,而气相浓度由于实验条件所限,根据逸度模型^[8]对 HCH 在天津地区环境中残留浓度的模拟结果按照其在空气中的气相/固相浓度比推算而得.就食物浓度而言,由于食品种类和来源多样,其变异幅度更大.尽管如此,由于上述参数数据量较大,且研究中取第 50 个百分位数为输入值,对模型计算精度影响不大,但可能导致较大的模型不确定性(包含变异性的总不确定性).相比之下,与暴露有关的行为模式和生理因子变异相对较小.虽然研究资料来自国内外相关文献^[10~15],但统计资料的变异系数大多在 100 % 以内,特别是人体生理因子类参数的平均变异系数仅为 47.1 %.尽管如此,建立符合我国国情的相关数据库是开展更深入研究的前提.

1.3 灵敏度分析

为识别对模型可靠性具有重要影响的参数,进行了灵敏度分析.大多数参数可以直接从计算式导出其相对灵敏度.少数参数则根际预设变化因子(0.1~5.0,步长 0.1)修正输入后重新计算.将灵敏度系数定义为输出改变量与输入改变量之比.

2 结果与讨论

2.1 天津地区人群暴露量

在目前暴露水平下,根据上述模型计算得到的 3 个年龄段亚群每日暴露量分别为:儿童 $0.10 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 、青少年 $0.06 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 、成人 $0.04 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$,暴露量随年龄增加而减少.儿童暴露量是成人的 2.5 倍,是最敏感的亚群.如果消除体重影响,儿童和青少年的绝对暴露量分别为 $1.9 \mu\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$ 和 $2.1 \mu\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$,接近于成人绝对暴露量 $2.3 \mu\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$,可见体重是造成亚群差异的主要原因.此外膳食结构的影响也不可忽略.按年龄跨度加权叠加得到的天津地区人群对 HCH 终生日均暴露水平为 $0.05 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$. Van den Berg 曾用类似方法估算了荷兰全境人群对 HCH 的暴露量,结果比本研究结果高得多^[7].表 2 比较了两者的差别.由于荷兰的模型仅仅将人群分为儿童(0~6 岁)和成年(6 岁以上)2 个亚群,其成人相当于本研究的成人和青少年 2 个亚群.

从表 2 中数据可以看到,无论哪个亚群,荷兰的计算结果都比天津地区数据高 1 个数量级以上.由于天津是污染相当严重的区域,虽然监测资料证实

表 2 天津与荷兰居民各年龄段亚群对 HCH 的每日暴露量及
终生日均暴露量比较/ $\mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$

Table 2 Comparison between sub population's CDI value of HCH in
Tianjin and in Dutch/ $\mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$

地区	终生日均	儿童	青少年	成人
天津	0.05	0.10	0.06	0.04
荷兰	2.00	4.47	1.77	1.77

天津主要环境介质中 HCH 的含量自 80 年代以来有近 1 个量级的下降,仍然很难认为 90 年代初计算的荷兰 HCH 的暴露水平远远高于天津目前状况.仔细比较 2 个模型可以看出, Van den Berg 的计算完全依据土壤浓度,其它各介质浓度则根据文献平衡参数从土壤实际测定结果导出^[7].由于荷兰当时土壤实测浓度远远高于天津目前水平,致使计算结果偏高.由于其研究目的是制定土壤标准,不排除选取保守的计算原则的可能性.从模型精度的角度考

虑,本研究采用了各介质的实测浓度,而土壤浓度对总体暴露量影响很小,天津的计算精度应优于 Van den Berg 的结果.国内有关研究^[9]发现 2000 年我国居民(成人)膳食 HCH 的暴露水平是 $0.05\mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$,这与关于天津的计算结果($0.04\mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$)十分接近.

以上暴露量估算基于目前天津各主要介质及食物中 HCH 污染水平,并假定环境中 HCH 浓度长期维持在该水平上.事实上,天津地区从 1953 年开始大规模施用和生产 HCH,1983~1992 年陆续禁用以来,环境介质中 HCH 含量有很大起伏^[16].目前进行的暴露估算是探索性的工作,更准确的模拟有必要采用动态暴露计算.为实现这样的计算有必要收集更多相关资料.

2.2 不同暴露途径的相对贡献

图 1 是根据模型输出结果绘制的 13 种暴露途

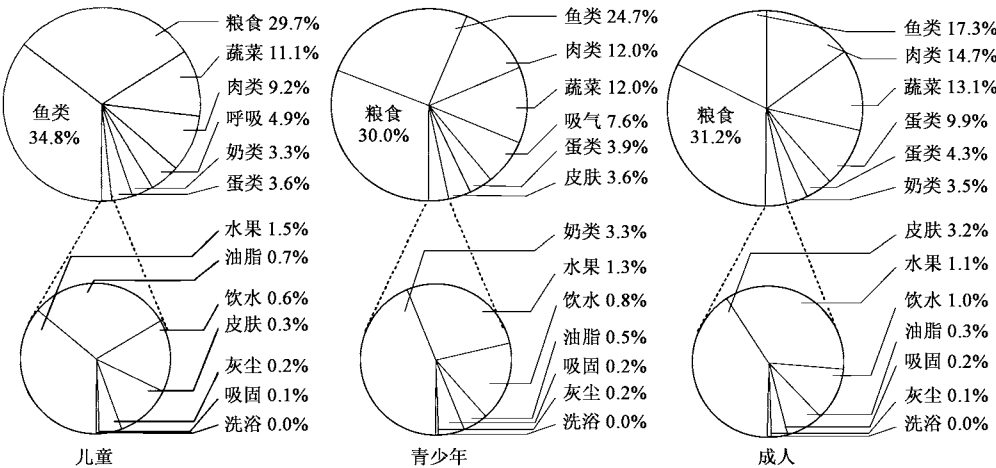


图 1 不同暴露途径对各亚群暴露总量的相对贡献

Fig.1 Contribution rate of 13 exposure routes to total exposure

径对 3 个年龄段人群暴露总量的贡献比例.从图 1 可以看出,就污染物进入人体的 3 类主要方式(摄食和饮水、呼吸和皮肤暴露)而言,经口的摄食行为在各年龄段人群中对人体的暴露贡献最为重要,其次是呼吸,而皮肤暴露作用非常微弱.儿童、青少年和成年人的摄食贡献分别为 94.5%、88.5%和 86.5%,呼吸贡献分别是 5.0%、7.8%和 10.2%.相比之下皮肤接触所导致的暴露几乎可以忽略.可见,摄食和呼吸无疑是研究地区人群暴露于 HCH 的优势途径. Van den Berg 报道的荷兰人群对 HCH 的各途径暴露差异为:儿童通过摄食食品、非意图性摄食土壤、呼吸和饮水 4 种途径的暴露比重分别是 97%、1%、1%和 1%,而成人通过摄食食品、呼吸和饮水这 3 种途径的暴露比重分别是 98%、

1%和 1%^[7].其中呼吸暴露贡献偏低,很可能与没有采用实测大气资料有直接关系. “摄食”暴露占主导地位的根本原因在于人体对食物中 HCH 的高吸收效率.引自有关文献的相应吸收率为 100%^[7,9].虽然通过呼吸摄入的污染物也很容易被人体吸收,吸收效率也达 100%^[14,15],但是远低于食物浓度的气相浓度导致该途径的相对贡献比“摄食”暴露小.相比之下,皮肤对所接触污染物的吸收效率要低得多.模型中采用的皮肤对固相污染物的吸收效率仅为 1%,根据 HCH 理化参数计算得到的洗浴室渗透系数仅为 1.599. 各类食物对总暴露量贡献位于前 3 位的分别是粮食(29.7%~31.2%)、鱼类(17.3%~34.8%)和肉类(9.2%~14.7%),占总暴露量的 63.2%~

73.7 % .其主要原因是富含脂类的这些食物极易富集 HCH.小麦和谷类等粮食作物虽然 HCH 残留水平较低,但作为传统“主食”在各年龄段人群的膳食结构中占有很大比例,因此也成为人体摄入有机污染物的重要源.各年龄段亚群的暴露途径大同小异,差别最为显著的是摄食鱼类带来的暴露,儿童与成人的差值为 17.5 %,其次是儿童与成人的呼吸暴露,但差值仅为 5.1 %,这可能是各年龄段人群对鱼类食品的摄取量差异和肺部呼吸率差异所致,其他单项暴露贡献差别均不超过 3 %.由此可见,富含脂质的食物浓度、摄食率和体重、呼吸率等因子是影响 HCH 暴露水平的关键因素.与此相似的,中国总膳食研究者认为人体的膳食暴露水平是由食品 HCH 残留量、食品消费量和体重 3 个因素共同决定^[9].

2.3 模型参数的相对重要性

摄食途径暴露的定量计算多为简单乘积加和,故与暴露量成简单比例关系.相关参数粮食、蔬菜、鱼类、肉类、油脂、水果、奶类、蛋类及饮水浓度;各类食品的日均摄食率;食物的摄食频率;吸收因子和体重等参数的灵敏度系数的绝对值为 1.正负号则取决于参数与暴露量的正反比关系.与摄食相比,呼吸暴露的表达式虽然也是简单的乘积加和,但由于考虑了人群行为、室内/外的差异以及 HCH 气相浓度的季节变化,有关参数对输出结果的影响不再均衡,具体分析结果见图 2.其中灵敏度系数绝对值在 1 左右的参数包括:体重(BW)、非取暖期室内 HCH 气相浓度(c_{A-i})、室内活动时间(TI)、呼吸率(IR)和人体肺部对气相有机污染物的吸收因子(f_a).其余各因子对计算暴露量的影响则微乎其微.

综上所述,暴露模型中的大多数参数(包括介质浓度、食物浓度、摄取率、吸收因子等)对输出结果影响等价.这些参数在模型中的重要性取决于特定暴露途径对总暴露量的相对贡献以及参数自身的变异性和不确定性.因此,与鱼类、粮食和肉类摄食有关

的参数中变异较大者,即:粮食、鱼类和肉类摄食量和 HCH 浓度是此类研究结果可靠性优劣的关键,此外室内 HCH 气相浓度也是今后研究中应特别注意的方面.

3 小结

在目前天津各主要介质及食物中 HCH 的污染水平下,天津地区人群对环境 HCH 的终身日均暴露水平 $0.05 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$,各亚群的暴露水平分别是:儿童 $0.10 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 、青少年 $0.06 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 、成人 $0.04 \mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$.儿童暴露量高主要是受体重影响,总暴露中膳食暴露是最主要途径,其次是呼吸暴露,皮肤对 HCH 的暴露作用很小.

参考文献:

[1] Sturgeon SR, Brock JW, Potischman N, *et al.* Serum concentrations of organochlorine compounds and endometrial cancer risk (United States) [J]. *Cancer Causes Control*, 1998 ,9(4) :417 ~ 424 .
[2] White more RW, Immerman F, Camann D, *et al.* Non occupational exposures to pesticides for residents of two US cities[J]. *Arch Environ Contam Toxicol*, 1994 ,26 : 47 ~ 59 .
[3] Sexton K, Kleffman D, Callahan M. An introduction to the national human exposure assessment survey and related phase I field studies [J]. *Expo Anal. Environ Epidemiol*, 1995c ,5 : 229 ~ 232 .
[4] 吴永宁.现代食品安全科学[M].北京:化学工业出版社, 2003 .72 ~ 78 .
[5] 龚钟明,曹军,李本纲,等.天津地区土壤中六六六(HCH)的残留及分布特征[J].*中国环境科学*, 2003 ,23(3) :311 ~ 314 .
[6] 吴水平,曹军,李本纲,等.城区大气颗粒物中有机氯农药的含量与分布[J].*环境科学研究*, 2003 ,16(4) :36 ~ 39 .
[7] Van den Berg R. Human exposure to soil contamination: a qualitative analysis towards proposals for human toxicological intervention values(partly revised edition) [R], No. 725201011 . Netherlands: National Institute of Public Health and Environmental Protection, 1994 .1 ~ 93 .
[8] 曹红英,龚钟明,曹军,等.估算天津环境中 γ -HCH 归趋的逸度模型[J].*环境科学*, 2003 ,24(2) :77 ~ 81 .
[9] 赵云峰,吴永宁,王绪卿,等.我国居民膳食中农药残留的研究[J].*中华流行病学杂志*, 2003 ,24(8) :661 ~ 664 .
[10] 葛可佑.90 年代中国人群的膳食与营养状况[M].北京:人民卫生出版社,1992 .415 ~ 434 .
[11] 董绮娜,吴俊华,贾琨.天津市 14 岁以下人群膳食营养状况分析[J].*中国慢性疾病预防与控制*, 1998 ,6(3) :138 ~ 139 .
[12] USEPA. Exposure factors handbook: EPA/ 600/ P-95/ 002 Fa [CD], Washington, DC 20460 : Office of Research and Development, National Center for Environmental Assessment, U. S. Environmental Protection Agency, August 1997 .
[13] Cao MX, Lin S, Liu JL, *et al.* Study on human exposure assessment to indoor/outdoor air pollutants [J]. *Transaction of Tianjin University*, 1997 ,3(2) :189 ~ 193 .
[14] Timothy JB, James DP, David A, *et al.* Body burden measurements and models to assess inhalation exposure to methyl tertiary butyl ether(MTBE) [J]. *Air & Waste Manage*, 1997 ,47 :739 ~ 752 .
[15] Van Scheindelen HJ, Marra M, Rombout PJA. Exposure model AirPEX: Development and model description (In Dutch) [R], No. 62371 0003 , National Institute of Public Health and the Environment, Bilthoven, NL, 1995 .
[16] 曹红英.天津地区六六六的环境行为和归趋模拟[D].北京:北京大学,2003 .

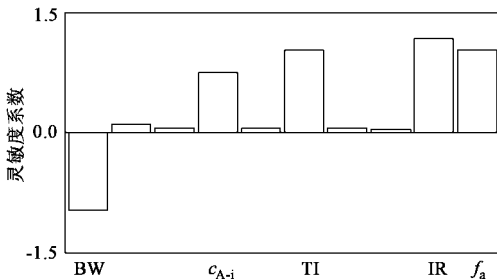


图 2 与呼吸暴露有关的输入参数的灵敏度系数
Fig.2 Sensitivity coefficients of respiration exposure parameters