

前郭灌区居民发汞含量及影响因素研究

朱立禄^{1,2}, 阎百兴^{1*}, 王莉霞¹

(1. 中国科学院东北地理与农业生态研究所湿地生态与环境重点实验室, 长春 130012; 2. 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要:从第二松花江(二松)下游的前郭灌区内采集了 120 名居民的头发样品(发样),测定了发样中的总汞(发汞)含量,分析了人体汞累积的影响因素,评价了当地居民的汞暴露风险水平. 结果表明,居民发汞含量为 0.15 ~ 1.01 mg/kg,平均含量为 0.56 mg/kg. 其中,男性发汞平均含量为 0.55 mg/kg,略低于女性发汞平均含量(0.60 mg/kg). 随年龄的增长,居民发汞含量呈现先增长后降低的趋势. 其中,低于 20 岁人群的发汞含量最低,平均值为 0.47 mg/kg;40 ~ 50 岁人群发汞含量最高,平均值为 0.73 mg/kg;发汞含量与个体性别、身高、体重等生理特征及吸烟、饮酒、食鱼量等生活习惯的相关关系不显著. 120 份发样中,仅有 1 例发汞含量超过了美国环保局制定的参考剂量(RFD)限值(1.00 mg/kg). 本研究表明,目前二松下游居民的汞暴露风险水平已经很低,长期提取二松江水灌溉对当地居民健康未构成威胁. 据此推断,以二松为主要水源的哈达山水库建成后,通过灌溉对当地居民健康造成的影响也较低.

关键词:发汞; 第二松花江; 前郭灌区; 影响因素; 健康风险

中图分类号:X132 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2010)11-2727-05

Human Hair Mercury Levels and the Influencing Factors of the Residents Living in Qianguo Irrigation Area

ZHU Li-lu^{1,2}, YAN Bai-xing¹, WANG Li-xia¹

(1. Key Laboratory of Wetland Ecology and Environment, Northeast Institute of Geography and Agroecology, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130012, China; 2. Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract:To understand the current mercury exposure level of the residents living within the Second Songhua River basin, 120 hair samples were collected from Qianguo Irrigation Area in the downstream of the basin. The total mercury contents in hair samples were determined and the influencing factors were analyzed. The results showed that the range of the total mercury contents was 0.15-1.01 mg/kg and the average value was 0.56 mg/kg. The average hair mercury content of male residents was 0.55 mg/kg while that of female residents was 0.60 mg/kg. The total hair mercury firstly increased and then gradually decreased with the increasing of age. The lowest mean hair mercury value(0.47 mg/kg) was detected in the residents with the age of 0-20 and the highest mean hair mercury value(0.73 mg/kg) was detected in the residents with the age of 40-50. Among the other factors influencing human hair mercury contents, the gender, height, body weight, fish consumption, smoking and wine-drinking showed no significant correlations with the hair mercury contents. Only one hair sample was detected with greater mercury content than the limitation(1.00 mg/kg) established by USEPA, suggesting low mercury exposure risks in the area. This investigation indicated the historical pollution of the Second Songhua River hadn't lead health risks to the residents of the region and the irrigation using water from the river after the building of the Hadashan Reservoir would cause low environmental risks.

Key words:hair mercury; the Second Songhua River; Qianguo Irrigation Area; influencing factor; health risk

20 世纪 70 ~ 80 年代,第二松花江(二松)中下游曾发生严重的汞污染事件^[1,2]. 据报道,当时二松江水中超过 90% 的鱼体汞含量超过 0.40 mg/kg,渔民发汞最高值达到 118.80 mg/kg^[3]. 自 1982 年污染源被切断后,二松江水中汞浓度迅速降低. 但 20 世纪末及 21 世纪初对二松沿岸居民的汞蓄积状况的研究均表明,二松沿岸居民发汞含量仍明显高于对照地区^[3~6]. 目前,二松沉积物中累积的汞的二次释放将成为汞污染的主要来源且可能持续较长时间^[7].

前郭灌区位于二松下游前郭县境内,年产优质

水稻 4×10^5 t 以上,是吉林省重要的粮食生产基地. 灌区开发历史较长,现有总面积约 5×10^4 hm² 的实灌水田中,约有 50% 开发于 20 世纪 60 年代之前. 灌区主要引用二松江水进行水田灌溉(目前每年引水约 6×10^8 m³). 因此,江水中的污染物很可能随灌溉水进入前郭灌区,并对居民健康构成威胁. 此外,吉林省正在实施的“增产百亿斤商品粮规划”项目

收稿日期:2009-12-29;修订日期:2010-03-26

基金项目:中国科学院知识创新工程重要方向项目(KZCXZ-YW-Q06-03-03)

作者简介:朱立禄(1983 ~),男,博士研究生,主要研究方向为环境重金属污染与治理, E-mail:zhulilusina@163.com

* 通讯联系人, E-mail: yanbx@neigae.ac.cn

中,二松下游哈达山水库的建成将使该项目区靠二松江水灌溉的水田面积扩大 $1.4 \times 10^5 \text{ hm}^2$,更多的二松江水将被用于水田灌溉.因此,对当前以及未来使用二松江水进行灌溉的农业生产行为可能造成的居民健康风险进行评估和预测具有必要性和紧迫性.由于头发样品具有受外来污染少、易于采集和储存、可以反映更长时间的污染物暴露风险等特点^[8],被广泛的应用于人体健康风险评价中^[9,10].

本研究选取前郭灌区居民发汞含量作为评价指标,对居民发汞的累积情况及其影响因素进行分析,以为当地居民的健康风险评价提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 样品的采集

选择前郭灌区水田开发时间最早的红旗农场居民作为调查对象,选取当地未染发且不直接通过汞作业等方式发生汞暴露的居民采集发样.于2009年5月份,采集年龄在1~76岁间的居民发样共120份(其中男性发样100份,女性发样20份),采样量约为红旗农场总人口量(约8600人)的1.4%.采样时,使用清洁的不锈钢剪刀,从受检者头部的不同部位剪取头发2~3g,装入聚乙烯塑料自封袋中,编号并密封保存.同时对被调查者进行问卷调查,进行包括个体性别、年龄、身高、体重、吃鱼频率、有无吸烟

及饮酒的习惯等多项内容的信息采集.

1.2 分析及测定

用中性洗涤剂清洗发样两遍后,用清水和去离子水将泡沫冲洗干净,然后用丙酮冲洗两遍,自然风干.用不锈钢剪刀将风干后的发样剪碎至长约2mm^[11].准确称取发样0.1500g,用 $\text{HNO}_3\text{-HClO}_4\text{-H}_2\text{SO}_4$ (1+1+5)法消解^[12],冷原子微分测汞仪(WCG-207,吉林北光仪器厂)测定消煮液中总汞含量.每个样品测定3次取平均值.

实验采用试剂均为优级纯.校准溶液采用国家标准样品(GSB 07-1274-2000)逐级稀释得到.测定中采用全程空白及平行样(随机抽取15%)法确保测定精确性,实际测得平行样品相对偏差 $< 5\%$.

2 结果与讨论

2.1 居民发汞含量

由前郭灌区居民发汞含量频数分布状况[图1(a)]可以看出,灌区居民发汞含量总体符合正态分布.频次最高的发汞含量值出现在0.40~0.60 mg/kg之间,基本在平均值(0.56 mg/kg)附近.由图1(b)、1(c)也可以看出,男性和女性的发汞含量也较好地符合正态分布,同一样本发汞含量分布规律相同,这与其它研究^[11,13]的结论类似.因此,本研究选用发汞算术平均值来代表发汞含量总体进行分析.

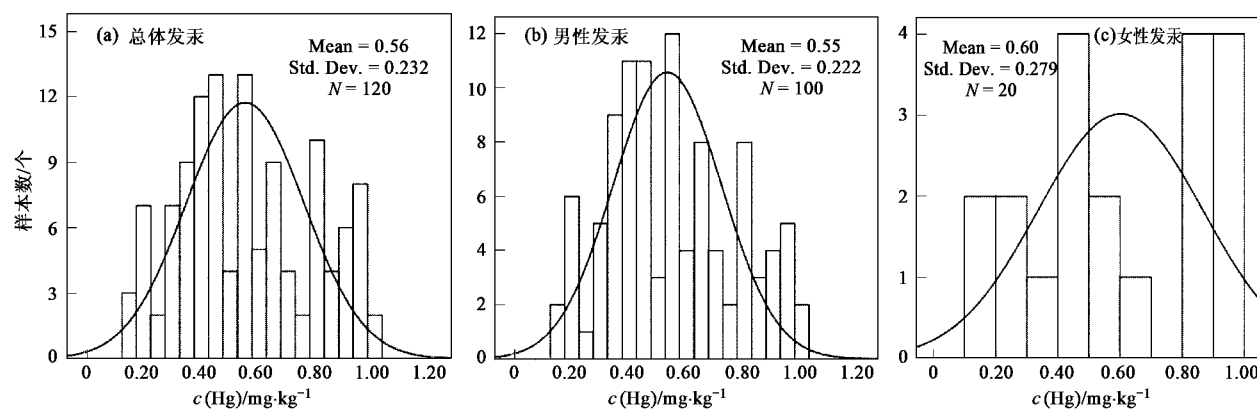


图1 前郭灌区居民发汞频数分布

Fig. 1 Frequency distribution of hair mercury of residents living in Qianguo Irrigation Area

前郭灌区居民发汞含量如表1所示,所有被测居民发样中发汞平均含量为0.56 mg/kg,最低值和最高值分别为0.15 mg/kg和1.01 mg/kg.男性发汞平均含量为0.55 mg/kg,略低于女性发汞平均含量(0.60 mg/kg).与已有调查^[14]相比,前郭灌区居民发汞含量相对较低(见图2).由图2可以看出,松花

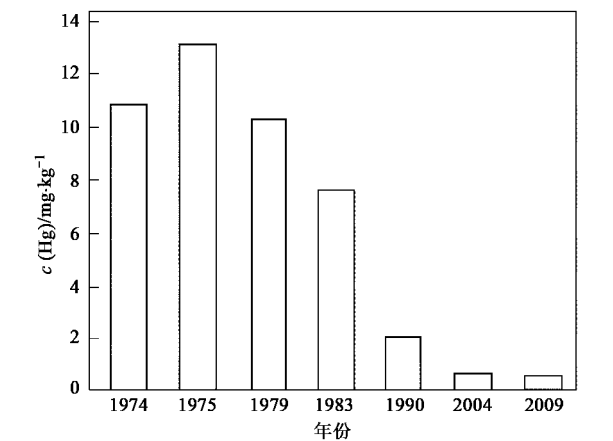
江沿岸居民发汞含量在20世纪70年代出现最高值.20世纪80年代初期污染源被切断后,居民发汞含量值逐渐降低.1990年测得的沿江居民发汞含量值比1982年测得值下降了74.7%^[15].2004年测得的沿江居民发汞含量值较1990年测得值降低了72.1%^[14].本调查结果比2004年的调查结果(0.65

mg/kg)又下降了 13.8%,含量持续降低但降低速率变缓.由此可见,自 20 世纪 70 年代到本世纪初,松花江沿岸居民发汞含量逐渐降低并趋于平稳,松花江环境汞污染治理对于降低该地区居民体内汞蓄积已取得了明显的效果.

表 1 前郭灌区居民发汞含量

Table 1 Hair mercury concentrations of residents living in Qianguo

性别	调查人数 /人	Irrigation Area $c(\text{Hg})/\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$		
		范围值	算数均值	标准差
女	20	0.16 ~ 0.96	0.60	± 0.28
男	100	0.15 ~ 1.01	0.55	± 0.22
总数	120	0.15 ~ 1.01	0.56	± 0.23



1974 ~ 2004 数据来源于文献[14]

图 2 松花江沿岸居民不同年份发汞含量

Fig. 2 Hair mercury concentrations of residents living within the Songhua River basin in different years

影响人体发汞含量的因素很多,包括个体内的差异、个体间的差异、人群间的差异、地区间的差异等多种因素.本次调查结果明显低于已有的对二松沿岸居民发汞含量的调查结果,主要可能是因为自污染源切断之后,二松沉积物、水体中的汞含量均持续呈现降低趋势^[7],二松沿岸居民通过直接接触沉积物及水体而造成的汞暴露风险也相应地降低.其次,食鱼被认为是最重要的汞暴露途径^[16].自 20 世纪 80 年代初汞污染源被切断后,松花江鱼体中总汞含量逐渐降低并趋于平稳.目前,大多数鱼类已经处于无生态风险或低生态风险水平^[17].此外,与已有研究^[14]相比,本调查的居民中渔民的比例偏低,个体平均食鱼量及所食鱼类中累积的汞含量均低于前几次调查,通过食鱼而产生的汞暴露风险也相对较低,这可能也是导致本调查结果低于已有调查结果的重要原因.

2.2 影响居民发汞含量的因素

2.2.1 性别和年龄

对本区不同性别居民的发汞含量进行独立样本 t 检验的结果显示,居民发汞含量性别间的差异性不显著 ($p > 0.05$),这与对二松沿岸^[6]、长春市^[18]、宁波市^[19]等国内研究以及众多国外研究^[20~22]的结果是一致的.但是,也有些研究的结论则有所不同.如对中国大连、上海等沿海城市^[11]、贵州万山市^[23]以及意大利南部城市^[24]居民发汞含量的研究表明,女性居民的发汞含量显著低于同年龄组的男性居民.而对柬埔寨金边市居民^[25]及西班牙塔拉戈纳省儿童^[26]的研究则表明,女性居民的发汞含量显著高于男性居民.区域环境的差异性可能是导致不同地区研究结果不同的原因,而导致发汞含量性别间差异的机制尚需进一步研究^[25].

前郭灌区不同年龄段人群发汞含量见图 3(其中每组图形中最上面和最下面的横线分别表示该组数据的最大值和最小值,中间的短粗线表示该组数据的中值).从图 3 中可以看出,与美国环境保护局(USEPA)制定的发汞含量参考剂量(1.00 mg/kg)相比,除 40 ~ 50 岁年龄组居民发汞含量最高值(1 例)略超过参考值外,其余年龄组发汞含量均未超标.单因素方差分析(One-way ANOVA)结果显示,各年龄段人群发汞含量存在显著性差异($p < 0.05$).其中,20 岁之前的居民发汞含量最低(平均 0.47 mg/kg),40 ~ 50 岁的居民发汞含量最高(平均

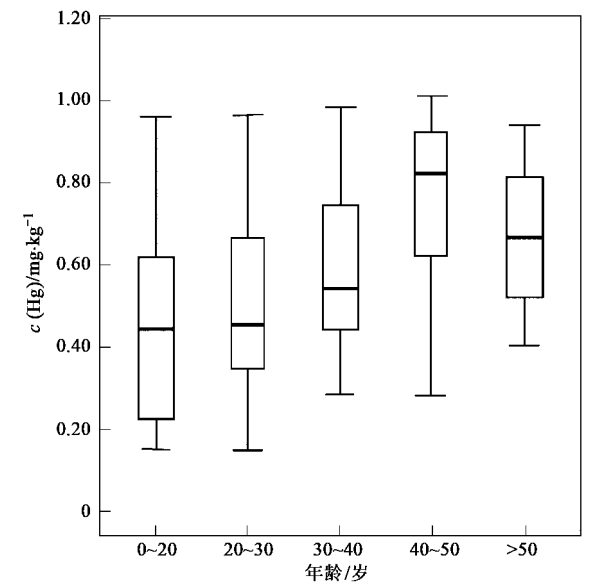


图 3 不同年龄段居民发汞含量

Fig. 3 Hair mercury concentrations of residents with different ages

0.73 mg/kg),发汞含量随年龄的增长总体呈现先增长后缓慢降低的趋势. 这一结论同 Liu 等^[11]对我国部分沿海城市居民及 Buzina 等^[27]对波罗的海附近居民发汞含量调查的结果相一致. 此外,对第二松花江^[6]和宁波市^[19]居民发汞的研究也表明,尽管发汞含量同年龄的相关关系不显著,其最高值也出现在 36~45 年龄段的居民中. 有研究证明,白发不能准确地反映人体发汞含量^[16],而中年之后的居民,随着年龄的增长其白发比例也相应的增加. 实验中难以彻底剔除发样中混杂的白发,这可能是导致测得的 50 岁以上人群发汞含量相对于 40~50 岁人群发汞含量反而降低的原因.

2.2.2 食鱼量

根据美国食品药品监督管理局 (USFDA) 对所有食物的分析,鱼贝类几乎是美国饮食中汞暴露,尤其是甲基汞暴露的唯一途径. Ikarashi 等^[28]的研究指出通过饮食中带来的汞暴露中有 95% 是来自鱼贝类的消费. 国内张磊等^[6]对二松沿岸居民的研究也发现,居民个体发汞含量同食鱼量有显著相关性.

对本区经常食鱼(每月至少食鱼一次)和经常食鱼人群发汞含量进行独立样本 *t* 检验的结果显示,经常食鱼人群发汞含量(均值为 0.50 mg/kg, *n* = 30)与不经常食鱼人群发汞含量(均值为 0.58 mg/kg, *n* = 90)差异性不显著(*p* > 0.05). 这可能是因为本区居民饮食结构中,鱼类消费比较少,且居民消费的鱼类中有很大部分来自灌区内短期生长的养殖鱼类,鱼龄较短且以杂食性鱼类为主,汞的累积量很低,未对人体汞蓄积量产生显著影响.

2.2.3 吸烟和饮酒

按照调查者吸烟、饮酒等生活习惯将被调查者分为吸烟、不吸烟组及不饮酒、偶尔饮酒和经常饮酒等群组,不同群组居民发汞含量见表 2. 由表 2 可以看出,吸烟组居民发汞平均含量(0.57 mg/kg)略高于不吸烟组居民发汞平均含量(0.56 mg/kg);经常饮酒居民发汞平均含量(0.58 mg/kg)略高于偶尔饮酒和不饮酒居民发汞平均含量(0.56 mg/kg). 尽管如此,差异性检验结果显示,不同生活习惯居民发汞含量间的差异性无统计学意义(*p* > 0.05).

国内外关于居民发汞含量同个体生活习惯的相关关系的研究较少. 张磊等^[6]对二松下游居民的研究表明,居民吸烟和饮酒都能显著增加人体汞负荷(*p* < 0.01),但是具体原因有待进一步查明.

2.2.4 其他因素的影响

本研究还对居民发汞含量同被调查者身高、体

重等因素的相关关系进行了分析. 结果显示,居民发汞含量同以上因素的相关性均不显著(*p* > 0.05).

表 2 不同生活习惯的人群发汞含量
Table 2 Hair mercury concentrations of residents with different living habits

群组	调查人数 /人	<i>c</i> (Hg)/mg·kg ⁻¹		
		范围值	算数均值	标准差
吸烟	44	0.15~1.01	0.57	±0.23
不吸烟	76	0.16~0.98	0.56	±0.24
不饮酒	34	0.16~0.96	0.56	±0.25
偶尔饮酒	18	0.15~1.01	0.56	±0.22
经常饮酒	68	0.15~0.98	0.58	±0.26

2.3 居民健康风险评价

汞是人体非必需的有毒元素,在体内蓄积超过一定剂量时会对人体神经、运动、生殖等多种系统产生影响,尤其会对胎儿的生长发育产生严重的危害^[29]. 由于人体本身对污染物有一定的耐受性,只有超过一定浓度的汞暴露才会对人体产生显著影响. 参考剂量(RFD)由美国环保局(USEPA)首先提出,是指有害化学物质的日平均接触剂量的估计值,人群(包括敏感亚群)在终生接触该剂量水平有害物质的条件下,预期一生中发生有害效应的危险度可低至不能检出的程度. 美国环保局最新规定的甲基汞参考剂量(RFD)是 0.1 μg/(kg·d),这一剂量对应的安全发汞浓度为 1.00 mg/kg^[30]. 本调查中所采集的 120 个发样中汞含量仅有一例超过 1.00 mg/kg,说明目前二松下游居民的汞暴露风险水平已经很低.

3 结论

(1) 前郭灌区居民发汞含量很低. 居民发汞含量与个体性别、身高、体重等生理特征及吸烟、饮酒、食鱼量等生活习惯的相关关系不显著(*p* > 0.05). 居民发汞含量随年龄的增长呈现先增长后降低的趋势,含量最高值出现在 40~50 岁人群中(0.73 mg/kg).

(2) 目前二松下游居民的汞暴露风险水平已经很低,长期提取二松江水灌溉对当地居民健康未构成威胁. 据此推断,以二松为主要水源的哈达山水库建成后,通过灌溉对当地居民健康造成的影响也较低.

参考文献:

[1] Guan M, Qiu B, Hu M, *et al.* Briefing on mercury and methyl mercury in hair of the fishermen living along the Songhua River [J]. J Environ Sci-China, 1994, 6(3): 387-388.

- [2] 王稔华,王书海,王起超. 第二松花江汞的污染与迁移过程历史分析[J]. 地理科学,1986,6(3):229-240.
- [3] 吴世安. 第二松花江鱼汞含量及沿江渔民带汞状况的研究[J]. 公共卫生与疾病控制杂志,1984,3(6):5.
- [4] 李延红,张宏伟,薄萍,等. 第二松花江治理后渔民体内汞蓄积水平的研究[J]. 劳动医学,2001,18(3):142-144.
- [5] 刘永懋,王稔华,翟平阳. 中国松花江甲基汞污染防治与标准研究[M]. 北京:科学出版社,1998. 196.
- [6] 张磊,王起超,邵志国. 第二松花江下游居民发汞水平及影响因素分析[J]. 环境科学研究,2005,18(6):115-117,127.
- [7] 李宏伟,阎百兴,徐治国,等. 松花江水中总汞的时空分布研究[J]. 环境科学学报,2006,26(5):840-845.
- [8] Wang T, Fu J J, Wang Y W, *et al.* Use of scalp hair as indicator of human exposure to heavy metals in an electronic waste recycling area[J]. Environ Pollut, 2009, 157(8-9):2445-2451.
- [9] 姚春霞,尹雪斌,宋静,等. 某金属冶炼厂周围居民人发的6种元素含量特征[J]. 环境科学,2008,29(5):1376-1379.
- [10] 刘碧君,吴丰昌,邓秋静,等. 锡矿山矿区和贵阳市人发中镉、砷和汞的污染特征[J]. 环境科学,2009,30(3):907-912.
- [11] Liu X J, Cheng J P, Song Y L, *et al.* Mercury concentration in hair samples from Chinese people in coastal cities[J]. J Environ Sci-China, 2008, 20(10):1258-1262.
- [12] Sakamoto M, Kubota M, Murata K, *et al.* Changes in mercury concentrations of segmental maternal hair during gestation and their correlations with other biomarkers of fetal exposure to methylmercury in the Japanese population[J]. Environ Res, 2008, 106(2):270-276.
- [13] Yasutake A, Matsumoto M, Yamaguchi M, *et al.* Current hair mercury levels in Japanese: survey in five districts[J]. Tohoku J Exp Med, 2003, 199(3):161-169.
- [14] 张磊,张磊,王起超. 第二松花江下游居民甲基汞健康风险研究[J]. 环境与健康杂志,2008,25(8):691-692.
- [15] 邱炳源,关铭,吴世安,等. 松花江渔民甲基汞中毒的环境流行病学研究[J]. 中国公共卫生,1994,10(9):395-398.
- [16] Al-Majed N B, Preston M R. Factors influencing the total mercury and methyl mercury in the hair of the fishermen of Kuwait[J]. Environ Pollut, 2000, 109(2):239-250.
- [17] 路永正,阎百兴,李宏伟,等. 松花江鱼类中汞含量的演变趋势及其生态风险评价[J]. 农业环境科学学报,2008,27(6):2430-2433.
- [18] Li Z B, Wang Q C, Luo Y M. Exposure of the urban population to mercury in Changchun city, Northeast China[J]. Environ Geochem Health, 2006, 28(1):61-66.
- [19] 宋玉玲,杨君予,励佳,等. 宁波市262例居民发汞含量的调查[J]. 职业与健康,2007,23(4):282-283.
- [20] Akagi H, Castillo E S, Corles-Maramba N, *et al.* Health assessment for mercury exposure among schoolchildren residing near a gold processing and refining plant in Apokon, Tagum, Davao del Norte, Philippines[J]. Sci Total Environ, 2000, 259(1-3):31-43.
- [21] Kosatsky T, Przybysz R, Armstrong B. Mercury exposure in Montrealers who eat St. Lawrence River sportfish[J]. Environ Res, 2000, 84(1):36-43.
- [22] Mortada W, Sobh M, El-Defrawy M, *et al.* Reference intervals of cadmium, lead, and mercury in blood, urine, hair, and nails among residents in Mansoura city, Nile delta, Egypt[J]. Environ Res, 2002, 90(2):104-110.
- [23] Li P, Feng X B, Qiu G L, *et al.* Human hair mercury levels in the Wanshan mercury mining area, Guizhou Province, China[J]. Environ Geochem Health, 2009, (31):683-691.
- [24] Diez S, Montuori P, Pagano A, *et al.* Hair mercury levels in an urban population from southern Italy: Fish consumption as a determinant of exposure[J]. Environ Int, 2008, 34(2):162-167.
- [25] Agusa T, Kunito T, Iwata H, *et al.* Mercury contamination in human hair and fish from Cambodia: levels, specific accumulation and risk assessment[J]. Environ Pollut, 2005, 134(1):79-86.
- [26] Batista J, Schuhmacher M, Domingo J, *et al.* Mercury in hair for a child population from Tarragona Province, Spain[J]. Sci Total Environ, 1996, 193(2):143-148.
- [27] Buzina R, Stegnar P, Buzina-Suboticane K, *et al.* Dietary mercury intake and human exposure in an Adriatic population[J]. Sci Total Environ, 1995, 170(3):199-208.
- [28] Ikarashi A, Sasaki K, Toyoda M, *et al.* Annual daily intakes of Hg, PCB and arsenic from fish and shellfish and comparative survey of their residue levels in fish by body weight[J]. Eisei Shikenjo Hokoku, 1996, (114):43-47.
- [29] Sakamoto M, Kaneoka T, Murata K, *et al.* Correlations between mercury concentrations in umbilical cord tissue and other biomarkers of fetal exposure to methylmercury in the Japanese population[J]. Environ Res, 2007, 103(1):106-111.
- [30] USEPA. Mercury study report to congress[R]. Washington, DC: Office of Air Quality Planning and Standards and Office of research and Development, EPA, 1997. 45297-0003.