

基于参数实测的水中重金属暴露的健康风险研究

段小丽,王宗爽,李琴,张文杰,黄楠,王贝贝,张金良

(中国环境科学研究院,北京 100012)

摘要:以位于长江和淮河流域交界处河南泌阳县为研究区,利用 ICP/MS 分析城镇和农村居民饮用水中 14 种重金属含量,抽样选取 2 500 名城镇和农村不同性别和年龄的受试者作为研究对象,详细记录受试者 3 d 内的饮水和皮肤接触水的活动频率,并对有关饮水和皮肤暴露参数进行了测量.用暴露和健康风险模型计算了城镇和农村居民对 14 种重金属的经口饮水暴露和经皮肤暴露的健康风险,比较了参数引用和参数实测的健康风险评估结果的差异性.结果表明,城镇成年男性和女性饮水摄入量分别为 2 276 mL/d 和 2 265 mL/d,农村成年男性和女性饮水摄入量分别为 2 464 mL/d 和 2 170 mL/d;城镇成年男性和女性皮肤全身暴露面积分别为 1.806 m² 和 1.641 m²,农村成年男性和女性皮肤全身暴露面积分别为 1.747 m² 和 1.617 m²;城镇和农村饮用水中 14 种重金属的浓度均达到国家饮用水卫生标准;各类人群经口饮水和皮肤暴露砷的致癌性风险分别在 2.5×10^{-6} ~ 5.2×10^{-6} 和 1.1×10^{-7} ~ 2.3×10^{-7} 之间;各类人群经口饮水和皮肤暴露的非致癌物的总风险分别在 2.1×10^{-7} ~ 1.7×10^{-6} 和 1.0×10^{-8} ~ 6.0×10^{-8} 之间;农村各类人群的非致癌总风险是城镇的 2.1 ~ 5.6 倍,但风险处于可以接受水平以内;各暴露参数的绝对敏感性之和平均在 71.5% 左右,对健康风险评价的结果具有关键性的影响;基于参数实际测量的健康风险评价结果比采用国外发达国家暴露参数手册中的数据得出的评价结果高出 0.94 ~ 6.33 倍.本研究表明,基于暴露参数的健康风险评价方法可以提高风险评价的准确性,建议今后应重视暴露参数的调查和测量,以降低风险评价不确定性.

关键词:暴露参数;饮水暴露;皮肤暴露;重金属;健康风险

中图分类号:X820 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2011)05-1329-11

Health Risk Assessment of Heavy Metals in Drinking Water Based on Field Measurement of Exposure Factors of Chinese People

DUAN Xiao-li, WANG Zong-shuang, LI Qin, ZHANG Wen-jie, HUANG Nan, WANG Bei-bei, ZHANG Jin-liang
(Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: This study was carried out in Biyang County, located in the junction of Yangtze river and Huaihe river. Drinking water samples of 20 sites in urban and rural areas in this county were collected to measure 14 heavy metals by ICP/MS. About 2 500 subjects with different age and sex were selected to measure exposure factors. Time-activity of drinking water by ingestion and dermal contact of each individual subject during the last three days were kept in dairy in detail by questionnaires. Intake of drinking water from direct and indirect consumption of water and time duration of dermal contact to water in each individual subject were kept in record based on real time measurements. Human health risks were assessed and sensitivity of exposure factors and uncertainty of risks were also analyzed. The results showed that the average drinking water intake rate of male and female are 2 276 mL/d, 2 265 mL/d in urban adults and 2 464 mL/d, 2 170 mL/d in rural adults respectively. Body surface area of male and female are 1.806 m², 1.641 m² in urban adults and 1.747 m², 1.617 m² in rural adults respectively. The contents of 14 heavy metals in this study area are all below the national drinking water standards. Cancer risks from exposure to As are ranged from 2.5×10^{-6} to 5.2×10^{-6} through ingestion and 1.1×10^{-7} to 2.3×10^{-7} through dermal exposure. Non-cancer risks are ranged from 2.1×10^{-7} to 1.7×10^{-6} through ingestion and 1.0×10^{-8} to 6.0×10^{-8} through dermal exposure. Non-cancer risks in rural population are 2.1 times to 5.6 times to the risks in urban populations. However all the risks are below the acceptable level. The sensitivity of various exposure factors including drinking water intake rate, dermal exposure time and body surface area are 71.5%. This indicates that exposure factors play a very important role in health risk assessment. Health risks in this research based on real measurement of exposure factors are about 0.94 time to 6.33 times higher than the risks based on the references of the data from the exposure factors handbooks in other countries. This study showed that the accuracy of health risk assessment could be improved a lot by the real measurements of exposure factors. Attentions should be attached to exposure factor investigation to decrease uncertainty of health risk assessment.

Key words: exposure factor; drinking water exposure; dermal exposure; heavy metals; health risk assessment

我国水污染形势严峻,饮用水安全亟待关注^[1].开展人体对水污染物暴露的健康风险评价研究对于科学制定水污染防治及管理相关的法律、法规、政策和标准都具有十分重要的作用.虽然近年来我国已经有一些关于暴露和健康风险研究的报

收稿日期:2010-06-02;修订日期:2010-09-28

基金项目:中国环境科学研究院中央级公益性科研院所基本科研业务专项(2007KYYW13);国家环保公益性行业科研专项(200809101, 201109064)

作者简介:段小丽(1977~),女,博士,副研究员,主要研究方向为环境污染的人体暴露和健康风险评价方法,E-mail:dxl@craes.org.cn

道^[2-5],但由于当前我国尚未发布各类人群对水介质的暴露参数,尤其是饮水率、皮肤暴露面积、暴露时间等,通常在这些研究中都只是直接引用美国等已经发布的暴露参数手册^[6]中的数据.考虑到中国人群在人种、生活习惯、社会经济水平等方面都与国外人群有较大差异,暴露参数存在很大不同^[7-9],基于国外参数的暴露和健康风险评估的结果存在较大的不确定性.本研究以河南泌阳为例,探讨了基于参数实测的人体暴露水中重金属的健康风险评估方法,并比较了参数实测和参数引用健康风险评估结果的差异性.该研究中获取的饮水、皮肤暴露参数数值和调查研究方法对于同类研究具有一定的参考价值,研究结果对于说明暴露参数在健康风险评估中的作用、提高健康风险评估的准确性具有重要意义.

1 材料与方法

1.1 暴露参数调查和测量方法

1.1.1 调查地点

河南省泌阳县位于河南省的中南部,南阳盆地东缘,辖区内水系分属于长江与淮河两大流域;根据2000年人口普查资料^[10],全县人口96万人,以农业人口为主,城镇人口仅为总人口的8.5%;全县以汉

族为主,少数民族仅占全县人口的0.69%;全县居民以小麦面粉为主食,生活习惯较为一致.选择泌阳县的城关镇和杨家集乡、官庄乡、太山乡、双庙乡、花园乡、赊湾乡、盘古乡、王店乡、贾楼乡作为调查现场.城关镇为县城,饮水类型为市政供水,其余9个乡为农村,饮用水为地下水.河南省地处中原地区,其生活习惯与邻近的山东省西部、安徽省北部、陕西省东南部等约2亿左右以面食为主的居民相近,农村生活习惯和农田耕作模式相似,社会经济水平相差不大.可以在一定程度上反映我国中原地区约1/6人口对饮水的暴露情况.

1.1.2 受试者描述

本研究对泌阳县的2500名居民进行了调查.根据泌阳县2000年各年龄段人口、城镇人口、非城镇人口在总人口中的比例确定城镇和农村各年龄段的调查对象数量,然后按照男女各半确定男女调查对象的数量,其中城镇调查主要在城关镇开展,农村调查主要在上述杨家集乡等9个乡开展.被调查对象分布见表1.

为了获得该地区居民夏秋季节的日常饮水率,于2008年8~10月期间,连续3d对2500名受试者一日三餐及三餐之间的直接饮水和间接饮水情况进行入户调查.

表1 调查样本的分布¹⁾

Table 1 Subjects information

年龄段	0~4岁	5~14岁	15~19岁	20~39岁	40~59岁	60及以上	合计/人
占总人口的比例/%	5	18	10	33	22	12	100
总样本量 n/人	125(5)	450(18)	250(10)	825(33)	550(22)	300(12)	2500
农村样本量 n/人	115(5)	414(18)	230(10)	759(33)	506(22)	276(12)	2300
城镇样本量 n/人	10(0.4)	36(1.6)	20(0.9)	66(2.9)	44(1.9)	24(1.0)	200
男性数量 n/人	63(5)	225(18)	125(10)	412(33)	275(22)	150(12)	1250
女性数量 n/人	62(5)	225(18)	125(10)	413(33)	275(22)	150(12)	1250

1) 括号中数值为所占比例,单位为%

1.1.3 暴露参数

暴露参数的获取采取调查问卷和实际测量相结合的方法.

调查问卷主要分基本信息、饮水暴露参数、皮肤暴露活动模式三部分.为了获得准确的调查结果,调查时必须对每个被调查对象的直接饮水率和间接饮水率进行测量,二者之和即为日均饮水率(IR),测量方法主要如下.

(1)直接饮水率的测量 调查员采用规格为500 mL的玻璃量筒对每位被调查者日常饮水容器如杯子、碗等的容量进行直接测量,并询问被调查

者2d内每天的饮用数量,如多少杯水,多少碗水等,据此估算直接饮水率.

(2)间接饮水率的测量 根据当地的生活习惯及具有代表性的各类馒头、熟米饭、汤面条、汤、粥等日常饮食的含水率实验,确定各类饮食的含水率.调查时,调查员询问被调查者2d内的饮食种类和数量(不包括蔬菜、水果、商售食物、饮料、啤酒等),并称量每类饮食单位质量,据此估算间接饮水率.

(3)皮肤暴露时间长度 包括日常洗漱、洗衣、洗浴、游泳、洗菜、洗碗、洗澡等活动类型的时间长度.

1.2 饮用水样品的采集和分析方法

在每个乡镇采集 2 个饮用水样品. 则农村样本 18 个和城镇饮用水样本 2 个, 采用美国 Agilent 公司 Agilent 7500a 型电感耦合等离子体质谱 (ICP/MS) 对水中 14 种重金属和部分无机非金属元素的含量进行了测量, 方法性能见表 2.

表 2 ICP/MS 方法性能
Table 2 ICP/MS Methods

序号	元素	质量数	线性相关系数(r)	检出限/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
1	As	75	1	0.000 08
2	B	11	0.999 1	0.000 25
3	Ba	137	0.998 9	0.000 02
4	Cr	53	1	0.000 02
5	Cu	63	1	0.000 02
6	Mn	55	0.999 7	0.000 03
7	Mo	95	0.999 8	0.000 03
8	Ni	60	0.999 9	0.000 08
9	Pb	208	0.999 2	0.000 12
10	Se	82	1	0.000 12
11	Sr	88	0.997 8	0.000 02
12	U	238	0.999 9	0.000 02
13	V	51	1	0.000 01
14	Zn	66	0.999 6	0.000 64

1.3 数据处理和分析方法

采用 Epidata 软件对 2 500 份调查问卷和 250 份平行调查问卷进行录入; 利用 Excel 2003 与 SAS 9.0 软件包对数据进行数据整理; 采用 SPSS 13.0 进行数据统计. 算数均值、标准偏差等一般性的计算用 SPSS 描述性统计分析模块, 关于差异性检验使用 ANOVA 或非参数秩检验模块.

1.3.1 暴露剂量的计算方法

水中污染物的暴露主要是通过饮水和皮肤暴露 2 种途径, 其暴露剂量分别按照公式 (1) 和 (2) 进行计算^[12].

$$\text{ADD}_{\text{dietary}} = \frac{\text{CW} \times \text{IR} \times \text{EF} \times \text{ED}}{\text{BW} \times \text{AT}} \quad (1)$$

式中, $\text{ADD}_{\text{dietary}}$ 指经口暴露剂量 [$\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$]; CW 为水中污染物浓度 (mg/L); IR 为饮水摄入量 (L/d); EF 为暴露频率 (d/a); ED 为暴露持续时间 (a); BW 为体重 (kg); AT 为平均时间 (d).

$$\text{ADD}_{\text{dermal}} = \frac{\text{CW} \times \text{SA} \times \text{PC} \times \text{ET} \times \text{EF} \times \text{ED} \times \text{CF}}{\text{BW} \times \text{AT}} \quad (2)$$

式中, $\text{ADD}_{\text{dermal}}$ 指皮肤吸收剂量 [$\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$]; CW 、 IR 、 EF 、 ED 、 BW 、 AT 同公式 (1); SA 为皮肤暴露

面积 (cm^2); PC 为化学物质皮肤渗透常数 (cm/h); ET 为暴露时间 (h/d); CF 为体积转换因子 ($1\text{L}/1\ 000\ \text{cm}^3$).

在本研究中, 根据直接和间接饮水量的调查结果, 通过计算即可得出每名受试者的饮水摄入量 (IR). 通过受试者的身高和体重 (BW) 的调查值根据计算公式^[6]可以得到当地人群全身暴露面积的值; 受试者身体某一部位的暴露面积可通过全身暴露面积乘以一定的比例系数得到, 其中手部暴露面积占全身面积的 5.2%^[6]. 待评化合物的渗透系数 (PC) 通过查阅手册可得到, 见表 3^[11]. 由于本研究中受试者饮水和皮肤暴露是每天都要发生的, 所以选择 ET 为 360 d/a , ED 为 70 a , AT 为 70 a 暴露的时间, 共 25 200 d .

1.3.2 健康风险预测方法

将化学物质按照其毒理学性质分为有阈 (即非致癌性物质) 和无阈 (即致癌性物质) 两类, 其健康风险^[12] 分别按照公式 (3) 和 (4) 计算.

$$R_i^n = \frac{\text{ADD}_i}{\text{RfD}_i} \times 10^{-6} \quad (3)$$

式中, R_i^n 为发生某种特定有害健康效应而造成等效死亡的危险度; ADD 为有阈化学污染物的日均暴露剂量 [$\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$], 见公式 (1) 和 (2); RfD 为化学污染物的某种暴露途径下的参考剂量 [$\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$]; 10^{-6} 为与 RfD 相对应的假设可接受的危险度水平.

$$R_i^c = q \times \text{LADD}_i \quad (4)$$

式中, R_i^c 为人群终身超额危险度, 无量纲, 人群的期望寿命按 70 a 算; LADD 为有阈化学污染物的日均暴露剂量 [$\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$], 计算方法同 ADD , 见公式 (1) 和 (2); q 为由动物推算出来人的致癌强度系数 [$\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$].

本研究中, 在地下水中检测到的污染物共有 14 种, 按照毒理学性质将神归为无阈化合物, 神经口和经皮肤暴露的致癌强度系数 (q) 分别为 1.5 [$\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$] 和 3.66 [$\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})$]; 其余物质归为有阈化合物, 其经口和经皮肤暴露的参考剂量 (RfD) 见表 3^[13,14].

根据每名受试者的 ADD 和 LADD , 以及每种待评物质的 RfD 和 q 可以分别计算得出每名受试者对每种物质暴露的风险 R_i^n 和 R_i^c . 按照公式 (5) 可计算每名受试者所有待评物质暴露的总健康风险.

$$R_T = \sum_{i=1}^k R_i^c + \sum_{i=1}^j R_i^n \quad (5)$$

表 3 非致癌物的经口和经皮肤参考剂量 (RfD)^[13,14] 和皮肤渗透系数 (PC)^[11]

Table 3 List of RfD through ingestion and dermal exposure, and penetration coefficients of non-carcinogenic heavy metals

序号	名称	PC ³⁾ /cm·h ⁻¹	RfD ⁴⁾ /mg·(kg·d) ⁻¹	
			经口	经皮肤
1	砷	0.001 8	0.000 3	0.000 123
2	硼	0.5 ¹⁾	0.2	0.2 ²⁾
3	钡	0.000 004	0.2	0.014
4	铬	0.002	0.003	0.003 ²⁾
5	铜	0.000 6	0.04	0.012
6	锰	0.000 1	0.046	0.001 8
7	钼	0.002	0.005	0.001 9
8	镍	0.000 1	0.02	0.005 4
9	铅	0.000 004	0.001 4	0.001 4 ²⁾
10	硒	0.001 8	0.005	0.002 2
11	锶	0.000 6	0.6	0.6 ²⁾
12	铀	0.000 004 ¹⁾	0.003	0.003 ²⁾
13	钒	0.002 ¹⁾	0.007	0.000 07
14	锌	0.000 6	0.3	0.01

1)表示未查到 PC 的物质按元素周期表就近原则选取其余物质的 PC 来参考; 2)表示暂无经皮肤暴露的数值, 所以用经口暴露的替代; 3)PC 为皮肤渗透系数; 4)RfD 为待评物质的参考剂量

式中, R_T 为所有污染物暴露的总风险, $\sum_{i=1}^k R_i^c$ 为 k 种致癌物暴露的风险; $\sum_{i=1}^j R_i^n$ 为 j 种非种致癌物暴露的风险.

1.3.3 方法比较和不确定性分析

为了探讨不同来源参数对评价结果的影响, 将本研究成果的基于参数实测的风险评价结果与基于暴露参数手册^[5]中参数风险评价的结果进行比较分析, 讨论方法的差异性. 用 Crystal ball 对本研究中的参数进行敏感性分析, 并对结果进行蒙特-卡罗不确定性分析.

2 结果与讨论

2.1 饮用水中重金属

城镇饮用水和农村饮用水中重金属测定结果见表 4. 由表 4 中数据可见, 各类检出的重金属中,

除了农村饮用水中的锰外, 其余各项重金属基本上都能够达到国家生活饮用水卫生标准^[15]; 在农村饮用水中除了锌外, 其余重金属的浓度都要高于城镇饮用水, 是城镇的 1.4 ~ 117.3 倍, 这可能是由于城镇饮用水为市政供水, 经过了一定的正规处理程序, 而农村饮用水没有经过严格处理的缘故, 水中重金属来源可能是自然背景或周边工业污染.

表 4 饮用水中重金属浓度/mg·L⁻¹

Table 4 Concentration of heavy metals in drinking water/mg·L⁻¹

序号	名称	饮用水中重金属浓度		饮用水标准 ^[15]
		城镇 (n=2)	农村 (n=16)	
1	砷	0.000 52	0.000 72	0.01
2	硼	0.003 4	0.009 91	0.5
3	钡	0.044 22	0.212 79	0.7
4	铬	0.000 3	0.000 48	0.05
5	铜	0.001 08	0.003 65	1
6	锰	0.003 19	0.374 32	0.1
7	钼	0.001 16	0.000 55	0.07
8	镍	0.000 17	0.002 07	0.02
9	铅	ND ²⁾	ND ²⁾	0.01
10	硒	ND ²⁾	0.002 1	0.01
11	锶	0.171 27	1.286 84	NA ¹⁾
12	铀	0.000 55	0.006 42	NA ¹⁾
13	钒	0.000 9	0.005 4	NA ¹⁾
14	锌	0.130 52	0.002 53	1

1)NA 表示无参考值; 2)ND 表示低于检出限

2.2 饮水和皮肤暴露参数的调查结果

2.2.1 抽样代表性.

根据调查结果, 对被调查对象的年龄分布进行抽样代表性检验, 结果见表 5.

根据表 5, 无论是男性还是女性, 置信水平在 >95% 以上的条件下, 抽样人群与本地区人群的分 布差异不显著, χ^2 分别达到 0.944 和 1.138, 这说明本研究获得的暴露参数能够反映当地人群的实际暴露情况.

2.2.2 饮水摄入量调查结果

对调查地区城镇、农村不同人群饮水摄入量进行统计分析, 结果见表 6.

表 5 年龄分布抽样代表性检验¹⁾

Table 5 Results of sampling representative test

年龄段	男			女		
	S_i	P_i	$(S_i - P_i)^2 / P_i$	S_i	P_i	$(S_i - P_i)^2 / P_i$
0 ~ 5 岁	3.52	3.3	0.015	3.56	2.5	0.449
6 ~ 17 岁	11.07	14.7	0.896	10.34	12.4	0.342
18 岁以上	35.97	34.9	0.033	35.54	32.2	0.346
卡方检验结果	$\chi^2 = 0.944$	$p > 0.95$	$\chi^2 = 1.138$	$p > 0.95$		

1) S_i 表示抽样人群中某一年龄段人数占总人数的比例; P_i 表示本地区某一年龄段人数占总人数的比例

表 6 不同人群饮水摄入率 (IR) 的调查结果/ $\text{mL}\cdot\text{d}^{-1}$ Table 6 Intake rate of drinking water in people with different gender and ages/ $\text{mL}\cdot\text{d}^{-1}$

性别	年龄分组	饮水摄入率			
		城镇 ($n = 200$)		农村 ($n = 2\ 300$)	
		平均值	标准偏差	平均值	标准偏差
男	0 ~ 5 岁	957	219	742	533
	6 ~ 17 岁	2 236	1 335	1 579	611
	18 岁以上	2 276	814	2 464	888
女	0 ~ 5 岁	848	90	707	373
	6 ~ 17 岁	1 815	1 039	1 514	530
	18 岁以上	2 265	440	2 170	693

由表 6 中数据可见,首先,饮水摄入率随年龄的变化比较明显.无论是城镇还是农村,无论男性还是女性,6~17 岁人群饮水摄入率基本上都是 0~5 岁的 2.2 倍左右;而 18 岁以上人群基本上是 6~17 岁人群饮水摄入率的 1.3 倍左右,因此随着年龄的增加,各类人群的饮水率逐渐增加,但增加速度却先快后慢.其次,农村和城镇居民的饮水摄入率也存在差异性.除 18 岁以上城镇男性居民饮水摄入率比农村男性居民低外,其余年龄段不分性别都呈现出城镇比农村高的现象,对于 0~5 岁的儿童男性和女性分别高出 29.0% 和 20.0%;而 6~17 岁分别高出 14.1% 和 19.9%,18 岁以上女性城镇比农村高 4.4%.这很可能与城镇和农村居民的生产生活习惯有密切关系.最后,城镇和农村都呈现了男性饮水摄入率高于女性的现象,而尤其农村更显著.

2.2.3 皮肤暴露参数

对调查地区城镇、农村不同人群皮肤暴露面积

(SA)、皮肤暴露时间(ET)等进行统计分析,结果分别见表 7 和表 8.由表 7 数据可见,总体上城镇居民皮肤全身暴露面积比农村居民略高 1.5%~51.2%,其原因可能是城镇居民体重比农村居民高的缘故;同时男性皮肤全身暴露面积都比女性高 1.1%~44.3%,与文献[6~9]报道一致.表 8 可见,各类人群皮肤接触水的时间在城镇与农村之间存在显著的差异性.在城镇,无论男性还是女性全身暴露都在 20 min/d 以上,而农村则都在 15.2 min/d 以下;对于手部的暴露时间来说,6~17 岁农村女性比城镇女性高出将近 1 倍,其余各年龄段不分性别都呈现了城镇比农村高出 3.8%~55.3% 的情况;ANOVA 检验结果表明,各类人群皮肤接触水的时间明显存在年龄差异,除城镇 6~17 岁女性外,都随着年龄的增长皮肤接触水的时间逐渐增加农村男性和女性全身皮肤接触水的时间基本一致,而男性的手部接触水的时间则比女性少 0.5~39.5 min/d;城

表 7 不同人群的皮肤暴露面积 (SA)/ m^2 Table 7 Skin surface area of people with different gender and ages/ m^2

类别	性别	年龄分组	皮肤暴露面积			
			城镇 ($n = 200$)		农村 ($n = 2\ 300$)	
			平均值	标准偏差	平均值	标准偏差
全身暴露面积	男	0~5 岁	0.795	0.189	0.634	0.174
		6~17 岁	1.830	0.012	1.210	0.317
		18 岁以上	1.806	0.049	1.747	0.117
	女	0~5 岁	0.756	0.102	0.626	0.219
		6~17 岁	1.268	0.479	1.166	0.271
		18 岁以上	1.641	0.126	1.617	0.130
手部暴露面积	男	0~5 岁	0.041	0.010	0.033	0.009
		6~17 岁	0.095	0.005	0.063	0.016
		18 岁以上	0.094	0.003	0.091	0.006
	女	0~5 岁	0.039	0.005	0.033	0.011
		6~17 岁	0.066	0.025	0.061	0.014
		18 岁以上	0.085	0.007	0.084	0.007

表 8 不同人群经水皮肤暴露时间(ET)/min·d⁻¹Table 8 Dermal exposure time of water of people with different gender and ages/min·d⁻¹

类别	性别	年龄分组	皮肤暴露时间			
			城镇(n=200)		农村(n=2300)	
			平均值	标准偏差	平均值	标准偏差
全身暴露	男	0~5岁	25.5	2.8	10.5	8.7
		6~17岁	33.0	3.2	12.9	10.7
		18岁以上	38.3	17.2	15.2	10.6
	女	0~5岁	26.8	2.5	10.7	9.0
		6~17岁	20.8	7.4	12.9	9.1
		18岁以上	32.2	7.9	14.4	9.2
手部暴露	男	0~5岁	8.3	5.8	8.0	4.7
		6~17岁	12.3	5.3	10.5	7.7
		18岁以上	15.5	6.1	13.5	11.5
	女	0~5岁	13.2	3.9	8.5	5.7
		6~17岁	8.5	6.0	15.3	11.1
		18岁以上	60.4	12.4	49.4	27.1

镇6~17岁的女性比男性全身暴露时间少12.2 min/d,手部暴露少3.8 min/d,其余年龄段都呈现了女性比男性时间长4.9~44.9 min/d.

2.3 经口饮水和经皮肤暴露的健康风险

城镇和农村不同性别和年龄的经口饮水和经皮肤暴露的健康风险见表9和表10,表中为数据为算术均值;图1和图2分别为农村成年男性饮水和皮肤暴露的致癌风险及非致癌风险分布.

表 9 饮水暴露的健康风险

Table 9 Health risks through drinking water exposure

类别名称	城镇						农村					
	男			女			男			女		
	0~5岁	6~17岁	18岁以上									
致癌砷	4.1E-06	2.5E-06	2.6E-06	3.7E-06	3.5E-06	3.1E-06	5.2E-06	4.9E-06	4.2E-06	5.2E-06	4.9E-06	4.1E-06
砷	9.2E-08	5.6E-08	5.9E-08	8.2E-08	7.7E-08	6.9E-08	1.1E-07	1.1E-07	9.3E-08	1.2E-07	1.1E-07	9.2E-08
硼	9.0E-10	5.5E-10	5.7E-10	8.0E-10	7.5E-10	6.8E-10	2.4E-09	2.3E-09	1.9E-09	2.4E-09	2.3E-09	1.9E-09
钡	1.2E-08	7.2E-09	7.5E-09	1.0E-08	9.8E-09	8.8E-09	5.1E-08	4.8E-08	4.1E-08	5.1E-08	4.8E-08	4.1E-08
铬	5.3E-09	3.2E-09	3.4E-09	4.7E-09	4.4E-09	4.0E-09	7.7E-09	7.3E-09	6.2E-09	7.7E-09	7.3E-09	6.1E-09
铜	1.4E-09	8.8E-10	9.1E-10	1.3E-09	1.2E-09	1.1E-09	4.4E-09	4.1E-09	3.5E-09	4.4E-09	4.1E-09	3.5E-09
锰	3.7E-09	2.2E-09	2.3E-09	3.3E-09	3.1E-09	2.8E-09	3.9E-07	3.7E-07	3.1E-07	3.9E-07	3.7E-07	3.1E-07
钼	1.2E-08	7.5E-09	7.8E-09	1.1E-08	1.0E-08	9.2E-09	5.3E-09	5.0E-09	4.2E-09	5.3E-09	5.0E-09	4.2E-09
镍	3.6E-09	3.7E-09	3.6E-09	4.5E-09	4.0E-09	3.6E-09	4.8E-09	4.5E-09	4.0E-09	4.8E-09	4.6E-09	4.0E-09
铅	2.3E-09	1.4E-09	1.4E-09	2.0E-09	1.9E-09	1.7E-09	2.1E-09	1.9E-09	1.7E-09	2.1E-09	1.9E-09	1.6E-09
硒	6.4E-10	3.9E-10	4.1E-10	5.7E-10	5.3E-10	4.8E-10	2.0E-08	1.9E-08	1.6E-08	2.0E-08	1.9E-08	1.6E-08
锶	1.5E-08	9.3E-09	9.7E-09	1.3E-08	1.3E-08	1.1E-08	1.0E-07	9.7E-08	8.3E-08	1.0E-07	9.7E-08	8.2E-08
铀	9.7E-09	5.9E-09	6.2E-09	8.7E-09	8.1E-09	7.3E-09	1.0E-07	9.7E-08	8.3E-08	1.0E-07	9.7E-08	8.2E-08
钒	1.6E-07	9.7E-08	1.0E-07	1.4E-07	1.3E-07	1.2E-07	8.6E-07	8.2E-07	7.0E-07	8.6E-07	8.2E-07	6.9E-07
锌	2.3E-08	1.4E-08	1.5E-08	2.1E-08	1.9E-08	1.7E-08	4.0E-10	3.8E-10	3.3E-10	4.1E-10	3.8E-10	3.2E-10
非致癌 ¹⁾	3.4E-07	2.1E-07	2.2E-07	3.1E-07	2.9E-07	2.6E-07	1.7E-06	1.6E-06	1.3E-06	1.7E-06	1.6E-06	1.3E-06
总风险	4.8E-06	2.9E-06	3.1E-06	4.3E-06	4.0E-06	3.6E-06	8.5E-06	8.1E-06	6.9E-06	8.6E-06	8.1E-06	6.8E-06

1)表示非致癌重金属的风险总和,下同

根据表9和图1可以看出,具有致癌性的砷的风险度无论城镇还是农村都在 $2.5 \times 10^{-6} \sim 5.2 \times 10^{-6}$ 之间,均高于可接受风险水平 10^{-6} ,而且随着

年龄的增加,致癌风险度逐渐降低,都是儿童的风险度最高,城镇和农村分别平均达到 3.9×10^{-6} 和 5.2×10^{-6} ,农村的风险度略高于城镇,这一方面与饮水

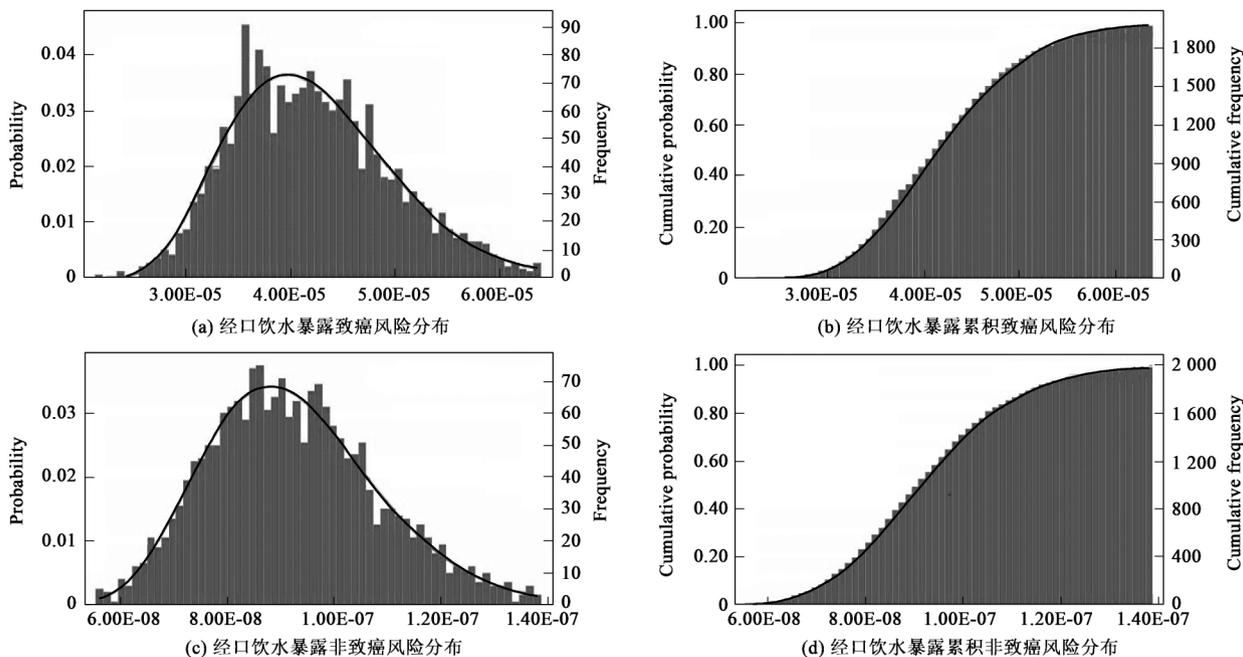


图 1 农村成年男性经口饮水暴露的致癌和非致癌的风险分布(蒙特-卡罗模拟方法)

Fig. 1 Distribution of cancer and non-cancer risks of drinking water exposure in male rural adults (Mont-Carol Simulation)

摄入量有关,还与铊在城镇和农村饮用水中的浓度水平有关;而且致癌风险基本上呈正态分布,其中农村成年男性饮水暴露铊的致癌风险平均值为 4.33×10^{-5} ,中位数为 4.15×10^{-5} ,第 25 和 75 百分位数分别为 3.39×10^{-5} 和 5.05×10^{-5} 。

非致癌物的总风险农村和城镇分别在 $2.1 \times 10^{-7} \sim 3.4 \times 10^{-7}$ 和 $1.3 \times 10^{-6} \sim 1.7 \times 10^{-6}$,城镇居民潜在健康风险不明显,而农村居民的健康风险度略高于可接受风险水平 10^{-6} ,各年龄段人群是城镇人群的 5.0 ~ 7.6 倍;而且非致癌风险基本上也呈正态分布,其中农村成年男性饮水非致癌风险平均值为 1.41×10^{-6} ,中位数为 1.34×10^{-6} ,第 25 和 75 百分位数分别为 1.09×10^{-6} 和 1.64×10^{-6} 。

在所有的非致癌重金属中人体对钒暴露的健康风险最高,城镇和农村分别在 $1.0 \times 10^{-7} \sim 1.6 \times 10^{-7}$ 和 $6.9 \times 10^{-7} \sim 8.6 \times 10^{-7}$ 之间,而且农村显著高于城镇 5 ~ 8 倍。无论致癌还是非致癌物质,城镇居民中 0 ~ 5 岁儿童男性比女性的健康风险略高,是其 1.1 ~ 1.2 倍,而 6 岁以上人群中男性的健康风险比女性低,是其 71.4% ~ 86.1%;而农村居民无论年龄大小,男性与女性的健康风险基本持平,差异不明显。

根据表 10 和图 2 可以看出,无论城镇还是农村,各类人群通过皮肤暴露铊的致癌风险都在 1.1

$\times 10^{-7} \sim 2.3 \times 10^{-7}$ 之间,城镇各年龄段女性的致癌风险略高于相应男性的致癌风险,而农村各年龄段女性与相应男性的致癌风险非常接近。致癌风险呈显著正态分布,其中农村成年男性皮肤暴露铊的致癌风险平均值为 1.83×10^{-7} ,中位数为 1.71×10^{-7} ,第 25 和 75 百分位数分别为 1.31×10^{-7} 和 2.24×10^{-7} 。

就非致癌风险而言,该地区各类人群通过皮肤接触暴露的每种重金属健康风险在 $3.9 \times 10^{-13} \sim 5.6 \times 10^{-8}$ 之间,所有重金属的总非致癌风险在 $1.0 \times 10^{-8} \sim 6.0 \times 10^{-8}$ 之间,均低于可接受健康风险水平 10^{-6} ,因此通过皮肤暴露于重金属的潜在健康风险并不显著;非致癌风险也呈显著正态分布,其中农村成年男性皮肤暴露铊的致癌风险平均值为 5.21×10^{-8} ,中位数为 4.89×10^{-8} ,第 25 和 75 百分位数分别为 3.71×10^{-8} 和 6.39×10^{-8} 。

总体上无论城镇还是农村,各年龄段女性的皮肤暴露非致癌健康风险略高于相应男性或几乎相等;同时,农村各类人群的非致癌总健康风险都略高于城镇,是其 2.1 ~ 5.6 倍。

2.4 敏感性分析

由图 3 可以看出,各种因子对健康风险度的敏感性在 -38.5% ~ 33.9% 之间,其中体重 (BW) 具有负敏感性,而饮水速率 (IR)、皮肤暴露面积 (SA)、皮肤

表 10 各类人群皮肤暴露的健康风险

Table 10 Health risks through dermal exposure to water

类别名称	城镇						农村					
	男			女			男			女		
	0~5岁	6~17岁	18岁以上									
致癌砷	1.9E-07	1.1E-07	1.6E-07	2.2E-07	1.6E-07	2.3E-07	1.4E-07	2.0E-07	1.6E-07	1.5E-07	1.9E-07	2.1E-07
砷	4.2E-10	2.4E-10	3.6E-10	4.9E-10	3.6E-10	5.2E-10	3.2E-10	4.4E-10	3.5E-10	3.4E-10	4.2E-10	4.6E-10
硼	4.7E-10	2.7E-10	4.0E-10	5.5E-10	4.0E-10	5.8E-10	7.5E-10	1.0E-09	8.2E-10	8.0E-10	9.9E-10	1.1E-09
钡	7.1E-13	3.9E-13	6.0E-13	8.1E-13	6.0E-13	8.7E-13	1.8E-12	2.5E-12	2.0E-12	2.0E-12	2.4E-12	2.7E-12
铬	1.1E-11	6.2E-12	9.4E-12	1.3E-11	9.5E-12	1.4E-11	9.7E-12	1.3E-11	1.1E-11	1.0E-11	1.3E-11	1.4E-11
铜	3.0E-12	1.7E-12	2.6E-12	3.5E-12	2.6E-12	3.7E-12	5.5E-12	7.6E-12	6.1E-12	5.9E-12	7.3E-12	8.0E-12
锰	9.9E-12	5.5E-12	8.4E-12	1.1E-11	8.4E-12	1.2E-11	6.3E-10	8.6E-10	6.9E-10	6.7E-10	8.3E-10	9.1E-10
钼	6.8E-11	3.8E-11	5.8E-11	7.8E-11	5.8E-11	8.4E-11	1.8E-11	2.4E-11	1.9E-11	1.9E-11	2.3E-11	2.5E-11
镍	3.3E-11	6.9E-11	1.0E-10	3.8E-11	6.0E-11	1.9E-10	5.3E-11	8.5E-11	7.5E-11	5.8E-11	7.9E-11	1.0E-10
铅	3.4E-12	1.9E-12	2.8E-12	3.9E-12	2.8E-12	4.1E-12	1.8E-12	2.5E-12	2.0E-12	1.9E-12	2.4E-12	2.6E-12
硒	3.4E-12	1.9E-12	2.8E-12	3.9E-12	2.8E-12	4.1E-12	6.4E-11	8.7E-11	7.0E-11	6.8E-11	8.4E-11	9.2E-11
锶	9.6E-09	5.4E-09	8.1E-09	1.1E-08	8.1E-09	1.2E-08	3.9E-08	5.3E-08	4.3E-08	4.2E-08	5.2E-08	5.6E-08
铀	3.1E-11	1.7E-11	2.6E-11	3.5E-11	2.6E-11	3.8E-11	1.9E-10	2.7E-10	2.1E-10	2.1E-10	2.6E-10	2.8E-10
钒	5.0E-11	2.8E-11	4.3E-11	5.8E-11	4.3E-11	6.2E-11	1.6E-10	2.2E-10	1.8E-10	1.7E-10	2.2E-10	2.4E-10
锌	7.3E-09	4.1E-09	6.2E-09	8.4E-09	6.2E-09	8.9E-09	7.7E-11	1.0E-10	8.4E-11	8.2E-11	1.0E-10	1.1E-10
非致癌	1.8E-08	1.0E-08	1.5E-08	2.1E-08	1.5E-08	2.2E-08	4.1E-08	5.6E-08	4.5E-08	4.4E-08	5.5E-08	6.0E-08
总风险	2.3E-07	1.3E-07	1.9E-07	2.6E-07	1.9E-07	2.8E-07	2.3E-07	3.1E-07	2.5E-07	2.4E-07	3.0E-07	3.3E-07

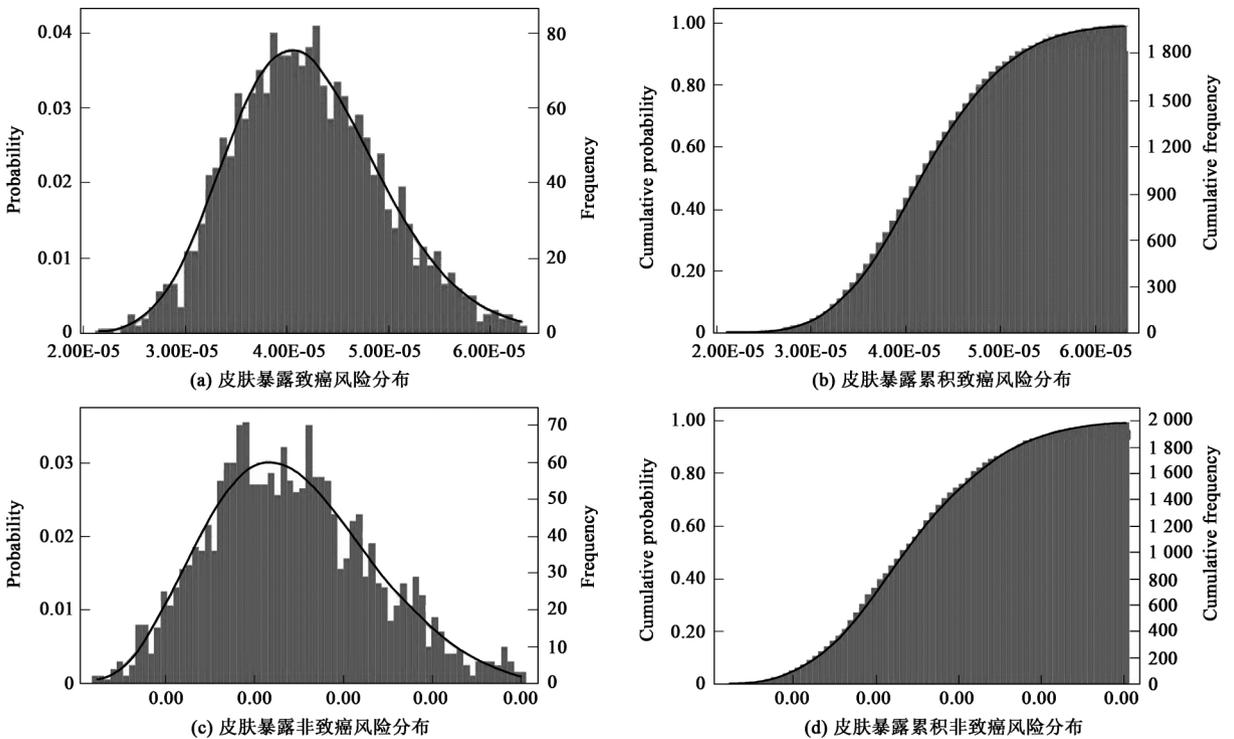


图 2 农村成年男性皮肤暴露的致癌和非致癌风险分布(蒙特-卡罗模拟方法)

Fig. 2 Distribution of cancer and non-cancer risks through dermal exposure in male rural adults (Mont-Carol Simulation)

暴露频率(EF)、污染物浓度 $c(As)$ 都具有正敏感性,都对健康风险较为敏感,但在每种暴露途径中, $c(As)$ 并不是最敏感的,而且除 $c(As)$ 外,其余暴露

参数的绝对敏感性之和平均在 71.5% 左右,几乎是 $c(As)$ 敏感性的 3 倍,可见暴露参数对健康风险评价的结果具有关键性的影响,只有提高暴露参数的

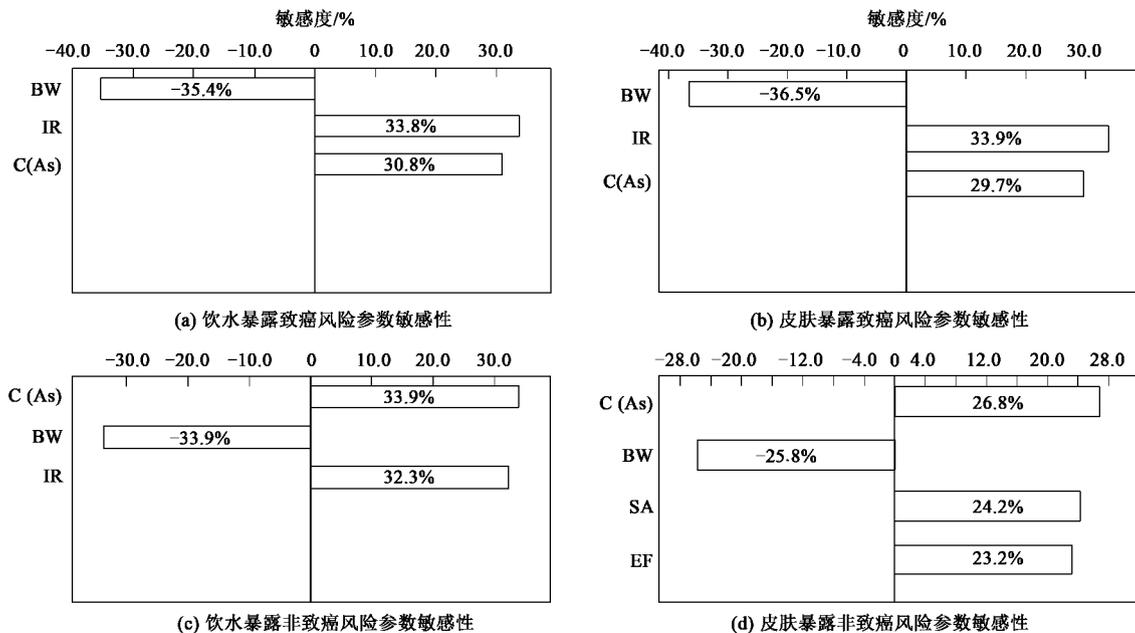


图 3 农村成年男性饮水和皮肤暴露的致癌和非致癌风险的参数敏感性分析

Fig. 3 Sensitivity analysis of cancer and non-cancer risks of male rural adults through drinking water and dermal exposure

准确性,使其具有很强的代表性才能降低风险评价的不确定性.对于致癌健康风险来说,经口饮水和皮肤暴露的各影响因子的敏感性几乎持平,而相对于经口饮水暴露非致癌风险来说,皮肤暴露的影响因子明显增多,SA 和 EF 分担了 IR、c(As)的敏感性,使得其绝对敏感性有降低到 30% 以下,因此影响因素数量越多,单个影响因子的绝对敏感性将会有所降低,但暴露参数绝对敏感性之和将有所提高.

2.5 参与引用和参数实测的方法差异性分析

于现场调查获得暴露参数和发达国家发布的暴露参数存在差异,依据二者所计算得到的健康风险必然不同,其中本研究及有关参数^[6]的非致癌物经皮肤暴露健康风险比较见图 4 和图 5. 根据图 4 和图 5 可以看出,无论城镇还是农村,无论饮水摄入还是皮肤接触的非致癌风险都是采用本研究中的暴露参数计算所得各类人群风险度明显比引用暴露参数计算得到的风险度高,饮水摄入前者是后者的 1.94 ~4.32 倍,其中农村 6 ~17 岁男性最大;皮肤接触

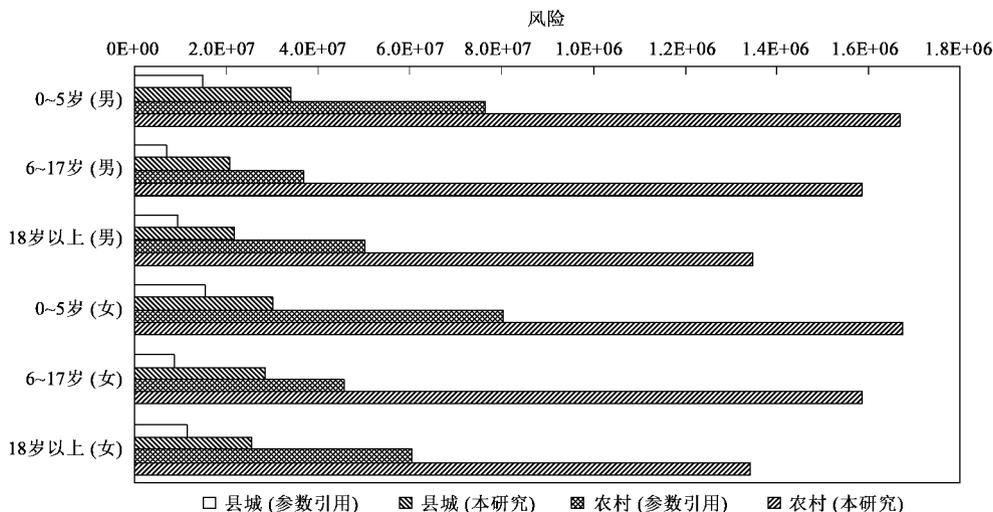


图 4 本研究和引用的参数的非致癌物饮水暴露健康风险比较

Fig. 4 Comparison of health risks of non-carcinogenic heavy metals through drinking water exposure between real measurements of exposure factors and reference to the factors in other country's handbook

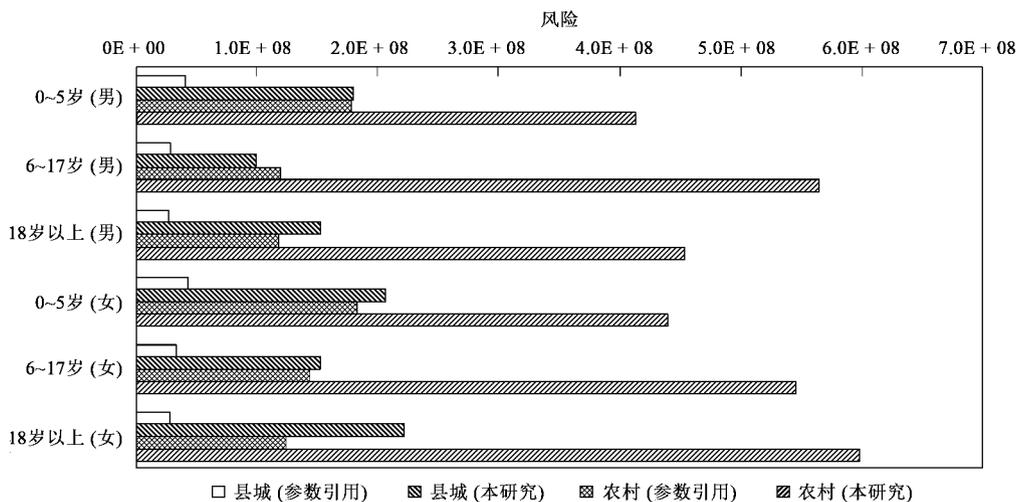


图5 本研究和参数引用的非致癌物经皮肤暴露健康风险比较

Fig. 5 Comparison of health risks of non-carcinogenic heavy metals through dermal exposure to water between real measurements of exposure factors and reference to the factors in other country's handbook

前者是后者的 2.28 ~ 7.33 倍,其中城镇 18 岁以上女性差异最大.这主要是由于我国居民的体重比美国居民偏低,而饮水摄入率和暴露时间比美国偏高的原因.由此可见,在健康风险研究中若引用国外的暴露参数可能给评价结果造成较大的偏差,应该尽量采取适合我国人群特征的暴露参数.

3 结论

(1)城镇和农村男性和女性饮水摄入量分别在 742.0 ~ 2464.0 mL/d 和 707.0 ~ 2265.0 mL/d 之间;城镇和农村男性和女性皮肤触水全身暴露时间分别在 20.0 min/d 以上和 15.2 min/d 以下.

(2)各类检出的重金属浓度范围在 0.00017 ~ 1.28684 mg/L,经口饮水砷的致癌性风险在 2.5×10^{-6} ~ 5.2×10^{-6} 之间,高于可接受风险水平 10^{-6} ,且儿童的风险度最高,城镇和农村平均分别达到 3.9×10^{-6} 和 5.2×10^{-6} ;皮肤暴露砷的致癌风险都在 1.1×10^{-7} ~ 2.3×10^{-7} 之间,在可接受水平范围内.

(3)经口饮水非致癌物的总风险分别在 2.1×10^{-7} ~ 1.7×10^{-6} ,城镇居民中 0~5 岁儿童男性比女性的健康风险略高,6 岁以上人群则相反;皮肤暴露非致癌总风险在 1.0×10^{-8} ~ 6.0×10^{-8} ;城镇各年龄段女性的致癌风险略高于相应男性;农村男性与女性两种途径的健康风险非常接近;农村各类人群的非致癌总风险是城镇的 2.1 ~ 5.6 倍.

(4)各种因子对健康风险度的敏感性在

-38.5% ~ 33.9% 之间,各暴露参数的绝对敏感性之和平均在 71.5% 左右,对健康风险评价的结果具有关键性的影响,而且本研究中各类人群风险度明显比采用国外发达国家暴露参数计算得到的风险度高出 0.94 ~ 6.33 倍.因此今后应提高暴露参数的准确性和代表性,降低风险评价的不确定性,提高风险管理的科学性建议有关权威机构能够组织全国范围内的暴露参数调查并尽快发布适合我国人群特征的暴露参数手册.

致谢:感谢河南省泌阳县 2500 名受试者的配合,感谢王本甫、张桂荣、杨春立、王书彦、杨立霞、余景占、王贵友、程相梅等现场调查员的辛勤劳动.感谢北京大学医学部公共卫生学院的郭玉明等对该项目的帮助.

参考文献:

- [1] 中华人民共和国环境保护部. 2009 年中国环境状况公报 [EB/OL]. 2010-10-07. http://www.mep.gov.cn/pv_obj_cache/pv_obj_id_60D98CAA0A52B303FEAC0_C80901C1EEC8F771C00/filename/P020100603551633387739.pdf.
- [2] 张映映,冯流,刘征涛.长江口区域水体半挥发性有机污染物健康风险评价[J].环境科学研究,2007,20(1):18-23.
- [3] 秦普丰,雷鸣,郭雯.湘江湘潭段水环境主要污染物的健康风险评价[J].环境科学研究,2008,21(4):190-195.
- [4] 王志霞,陆雍森.区域持久性有机物的健康风险评价方法研究[J].环境科学研究,2007,20(3):152-157.
- [5] 许川,舒为群,罗财红,等.三峡库区水环境多环芳烃和邻苯二甲酸酯类有机污染物健康风险评价[J].环境科学研究,2007,20(5):57-60.
- [6] US EPA. EPA/600/R-09/052A Exposure Factors Handbook [S]. Washington DC:USEPA,2009.

- [7] 段小丽, 聂静, 王宗爽, 等. 健康风险评价中人体暴露参数的国内外研究概况[J]. 环境与健康杂志, 2009, **26**(4):370-373.
- [8] 段小丽, 张文杰, 王宗爽, 等. 我国北方某地区居民涉水活动的皮肤暴露参数[J]. 环境科学研究, 2010, **23**(1):55-61.
- [9] 段小丽, 王宗爽, 王贝贝, 等. 我国北方某地区居民饮水暴露参数研究[J]. 环境科学研究, 2010, **23**(9):1216-1220.
- [10] 中华人民共和国国家统计局. 2000 年中国人口普查资料[R]. 2000.
- [11] USEPA. EPA/600/8-91/011B. Dermal Exposure Assessment: Principles and applications[S]. 1992.
- [12] USEPA. EPA/540/1-89/002. Risk Assessment Guidance for Superfund Volume I Human Health Evaluation Manual (Part A) [S]. 1989.
- [13] USEPA. Integrated Risk Information System [EB/OL]. 2010-08-23. <http://cfpub.epa.gov/ncea/iris/index.cfm>.
- [14] U. S. Department of Energy The Risk Assessment Information System [EB/OL]. 2010-08-23. http://rais.ornl.gov/tox/rap_toxp.shtml.
- [15] 中华人民共和国卫生部. GB 5749-2006. 生活饮用水卫生标准[S]. 2006.