

尿硼浓度预测人体日硼暴露剂量

邢小茹¹, 魏复盛^{2*}, 胡伟², 吴国平², 王春利³

(1. 北京科技大学土木与环境工程学院, 北京 100083; 2. 中国环境监测总站, 北京 100029; 3. 丹东市环境监测站, 丹东 118002)

摘要:以辽宁某地硼矿开采和加工厂的硼作业工人以及远离硼矿的背景地区的人群作为研究对象, 分析了班后尿液硼浓度与日硼暴露剂量之间的关系. 结果表明, 班后尿硼浓度与日硼暴露剂量之间存在着显著的对数线性关系, 考虑了不同人群类别的影响之后, 回归方程的拟合度达到 85.9%, 由此确立了用班后尿硼浓度预测日硼暴露剂量的预测方程. 用此预测方程对本研究 2004 年的受试者日硼暴露剂量进行预测, 并与实测值进行了比较, 结果表明平均相对偏差为 13.4%, 预测值与实测值之间没有显著性的差异. 说明用班后尿硼浓度预测日硼暴露剂量是可行的. 对 2004 年所有受试者的日硼暴露剂量预测结果分析表明, 硼职业暴露组、社区对照组和背景对照组的日硼暴露剂量平均值分别为 36.1、4.13 和 1.31mg/d.

关键词: 尿硼浓度; 日硼暴露剂量; 相关性分析; 预测

中图分类号: X18 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2006)06-1208-04

Prediction Human Daily Boron Exposure by Urine Boron Concentration

XING Xiao-ru¹, WEI Fu-sheng², HU Wei², WU Guo-ping², WANG Chun-li³

(1. Civil and Environmental Engineering School of University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China; 2. China National Environment Monitoring Center, Beijing 100029, China; 3. Dandong City Environmental Monitoring Station, Dandong 118002, China)

Abstract: Relationship between post-shift boron concentration and daily boron exposure was analyzed with the workers from boron mining and processing plants in Liaoning Province and population from sanitary background area far from boron industry as subjects. The results demonstrate that there was significant logarithm linearity correlativity between post-shift urine boron concentration and daily boron exposure, and the fittingness of the regression equation was up to 85.9% by considering of the effect of the different group of population, and the equation predicting daily boron exposure by post-shift urine boron concentration was determined. Daily boron exposures of the subjects in 2004 were predicted using this equation. Comparing of the daily boron exposure observed, the average of deviation between the boron exposures predicted and observed was 13.4%, and there was no significant difference between the exposure value predicted and observed. Therefore, It is feasible to predict daily boron exposure by boron concentration of post-shift urine. The analyzing of predicted daily boron exposure of all subjects in 2004 show that the daily boron exposure of peoples from occupational exposure group, community group and background control group were respectively 36.1, 4.13 and 1.31mg/d.

Key words: urine boron concentration; daily boron exposure; relativity analysis; predicting

早在 20 世纪 20 年代, 科学家们就发现硼是高等植物生长所必须的微量营养元素. 但是, 硼对人体的作用及其必要性还有待进一步研究^[1]. 1996 年, 世界卫生组织提出成年人的硼摄入量的安全范围为 1~13mg/d^[2]. 一般人群暴露硼的主要途径为饮水和饭菜, 这种途径的暴露也很容易被人体吸收, 人体通过完好皮肤吸收的硼很少^[3]. 对硼作业工人来说, 空气暴露是硼暴露的主要途径之一, 但是由于工作条件和防护措施的差异, 作业工人对空气暴露硼的吸收差异很大. Dweight 等对硼砂和硼酸生产的成品车间包装和搬运工人通过空气的日硼暴露及与尿硼和血硼的关系进行过研究, 发现尿硼和血硼均与空气硼暴露显著相关, 其中尿硼和日空气硼暴露量的关系比血硼和日空气硼暴露量的关系要好, 但是没有考虑食品和饮水暴露的影响^[4]. 笔者曾经对

个体硼暴露剂量及其代谢情况作了报道^[5], 发现硼作业工人的班后尿液硼浓度与其日硼暴露剂量关系密切, 但是, 能否用尿硼浓度来反推硼的每日总暴露水平, 这一点尚需进一步研究. 在 2003 年工作的基础上, 于 2004 年分别选择了硼矿开采和加工厂的工人、硼暴露地区从事其它工作的人群以及背景对照地区的人群共 208 人, 采集其班后尿液样品及部分人群的空气粉尘、饭菜和饮水样品, 分析了其中的硼含量. 利用 2003 年数据分析得出班后尿硼与日硼暴露剂量的关系, 并对 2004 年研究对象的日硼暴露剂

收稿日期: 2005-08-12; 修订日期: 2005-10-31

基金项目: 中美科技合作项目 (1900-G-CD114); 国家环境保护总局科技项目 (2002-07-08)

作者简介: 邢小茹 (1975~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为环境污染与人体健康. E-mail: xiaoruxing@sina.com.cn

* 通讯联系人: weifs@public3.bta.com.cn

量进行了预测,考察用尿硼浓度预测日硼暴露剂量的可行性,为硼的安全风险评价提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 研究对象的选择及样品采集

本研究选取了 3 组人群作为研究对象,即 1 个暴露组和 2 个对照组(社区对照组和背景对照组)。硼矿开采和加工厂工人 75 人作为硼暴露组,在硼矿开采和加工地区生活和工作的非硼作业工人 63 人作为社区对照组,远离硼矿开采和加工厂的地区生活的 70 人作为背景对照组(未受硼污染)。

采集所有人群的班后尿液样品 3 次,每次间隔为 4 周左右。另外,从每组人群选取 15 人,采集其 24h 内等同等量的饭菜、饮水样品以及暴露组和社区对照组上班 8h 的空气粉尘样品。由于背景对照组人群生活在远离工业污染源的偏远地区,空气质量好,空气硼暴露剂量与饭菜和饮水的硼暴露剂量相比非常小,因此未采集背景对照组的空气粉尘样品。饭菜、饮水和粉尘样品的采集与其中 1 次的班后尿样采集在同一天进行。

1.2 样品分析

所有样品用 ICP-MS(饮水、尿液)或 ICP-AES(空气颗粒物、饭菜、饮水)测试,空气颗粒物样品测定滤膜上硼的质量(μg),再根据采样体积(L)计算出空气粉尘硼浓度(mg/m^3);其它样品则直接测定硼浓度。将受试者的空气粉尘硼浓度与上班 8h 的呼吸量(取人体平均日呼吸量 15m^3 ,上班 8h 为 5m^3)的乘积作为“日空气粉尘硼暴露量(mg/d)”(非工作时间吸入的空气颗粒物中所含的硼忽略不计),饭菜硼浓度(mg/kg)与日饭菜摄入量(kg/d)的乘积作为其“日饭菜硼暴露量(mg/d)”,饮水硼浓度(mg/L)与日饮水量(L/d)的乘积作为其“日饮水硼暴露量(mg/d)”。由于通过皮肤暴露进入人体的硼很有限,因此,以上 3 种暴露量之和为受试者的“日硼暴露剂量(mg/d)”。另外,为消除尿液浓淡的影响,用尿液肌酐浓度(肌酐浓度由当地医院常规方法测定)对分析所得的尿硼浓度(mg/L)进行校正,以“ mg/g 肌酐”作为尿硼的最终浓度。

1.3 数据分析

数据分析使用 SAS(Statistic Analysis System)统计软件的线性回归模块 PROC REG 进行分析。分析前,根据异常值的确定方法为 Dixon 的 Q 值检验法($\alpha = 0.05$),剔除了每个受试者 3 次测量的尿液硼浓度的异常值^[6]。

分析日硼暴露剂量预测值与实测值的关系时,希望知道回归直线的截距与 0 有无显著差异,而斜率与 1 有无显著差异,以便更好的判断两者是否一致。由于统计软件一般都是对方程的截距与斜率和 0 有无显著差异的检验,若要检验回归方程的截距与 0 有无显著差异,斜率与 1 有无显著差异,则需对方程进行转换。设原回归方程为:

$$Y = A + BX$$

两边同时减去 X 得:

$$Y - X = A + (B - 1)X$$

设 $Y - X = Z$, 作 Z 与 X 的回归直线,得到:

$$Z = A' + B'X$$

若 A' 、 B' 与 0 无显著差异,则相当于原回归方程中 A 与 0 无显著差异, B 与 1 无显著差异。

2 结果与讨论

2.1 尿硼浓度与日硼暴露剂量对数线性相关关系

由于班后尿硼浓度与 24h 尿硼代谢量呈显著的相关关系,因此可以用班后尿硼浓度来代替 24h 尿硼代谢量^[5]。方程(1)是用 2003 年的日硼暴露剂量与班后尿硼浓度数据(暴露组 60 人,背景对照组 9 人)做出的对数直线回归方程,为了避免数据取对数后出现负值,对自变量和因变量都加 1。

$$\ln(y + 1) = 0.153 + 1.152 \ln(x + 1) \quad (1) \\ (n = 69, r^2 = 0.834, p < 0.001)$$

其中, y 表示日硼暴露剂量(mg/d); x 表示班后尿硼浓度(mg/g 肌酐)

相应的对数直线回归图如图 1 所示。2003 年暴露组的班后尿样和日硼暴露的样品(24h 等同等量的饭菜、饮水以及上班 8h 的粉尘)均采集了 2 次(间隔 4 周左右),取其平均值;背景对照组的样品只采集了 1 次。由图 1 可见,班后尿硼浓度与日硼暴露剂量呈显著的对数相关关系,方程的拟合度为 83.4%。

2.2 人群组别对尿硼与日硼暴露剂量关系的影响

硼职业暴露工人暴露硼的主要途径有经口和经呼吸道吸入,而对照组人群主要通过消化道(食品、饮水),空气暴露很少^[5],两者的暴露途径有差异,人体对不同途径暴露的硼的吸收也是有差异的,而且暴露组工人在工作时还戴有防尘口罩。方程(1)是在没有考虑这些差异的情况下得出的,如果考虑这些情况,引入表示人群组别的变量 group,得到(2)式:

$$\ln(y + 1) = 0.398 + 1.067 \times \ln(x + 1) \\ - 0.627 \times \text{group} \quad (2)$$

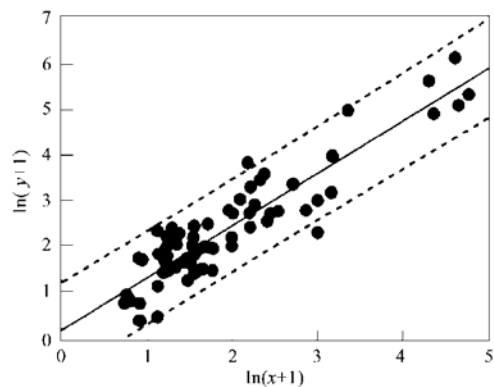


图1 班后尿硼浓度与日硼暴露总剂量的关系
Fig. 1 Relationship between post-shift urine boron concentration and daily boron exposure dose

其中, y 为预测的日硼暴露剂量, x 为班后尿硼的浓度 (mg/g 肌酐), $group$ 为表示人群类别的变量, 对于硼暴露工人, $group=0$, 对于对照人群, $group=1$.
方程 (2) 的拟合度为 85.9%, 高于不考虑组别时 (方程 1) 的拟合度 (83.4%).

表 1 用班后尿硼浓度预测的日硼暴露剂量与实测值相对偏差的分布

相对偏差的分布/%	通过方程 (1) 预测			通过方程 (2) 预测		
	样本数	百分比/%	累积百分比/%	样本数	百分比/%	累积百分比/%
< 30	39	88.6	88.6	41	93.2	93.2
30~ 50	5	11.4	100	3	6.82	100

情况: 在不考虑组别的影响, 方程 (1) 预测的日硼暴露量与实测值的相对偏差要大于考虑组别时 (方程 2) 两者的相对偏差. 2 种预测方程得出的预测值与实测值相对偏差的平均值分别为 15.8% (方程 1) 和 13.4% (方程 2). 预测值和实测值吻合较好.
图 2 中的 2 个图分别是方程 (3) 和方程 (4) 对应的回归图. 其结果也说明了加入组别变量之后, 日硼

2.3 用尿硼浓度预测日硼暴露剂量的可行性分析

方程 (1) 和 (2) 表明, 班后尿硼浓度与日硼暴露剂量具有非常显著的相关性, 但是否可以用班后尿硼的浓度来反映日硼暴露剂量, 还需要进一步的验证. 下面用方程 (1) 和 (2) 分别对 2004 年参与饭菜、饮水和粉尘样品采集的 44 人 (共 45 人, 有一位受试者的饭菜样品受到了污染, 剔除了该样本) 的日硼暴露剂量作预测, 并与实测值相比较, 结果见表 1.

方程 (3) 和 (4) 分别是用方程 (1) 和 (2) 预测的日硼暴露剂量与实测值之间的对数直线回归方程:

$$\ln(y+1) = 0.544 + 0.750 \times \ln(x+1) \quad (3)$$
$$(n = 44, r^2 = 0.703, p < 0.001)$$

其中, x 为日硼暴露剂量的实测值 (mg/d); y 为用方程 (1) 预测的日硼暴露剂量 (mg/d).

$$\ln(y+1) = -0.038 + 0.899 \times \ln(x+1) \quad (4)$$
$$(n = 44, r^2 = 0.844, p < 0.001)$$

其中, x 为日硼暴露剂量的实测值 (mg/d); y 为用方程 (2) 预测的日硼暴露剂量 (mg/d).

日硼暴露剂量预测值与实测值相对偏差的分布

暴露剂量预测值与实测值的回归方程拟合度提高了. 用统计检验的方法比较预测值与实测值的差别, 结果表明 2 个方程预测的日硼暴露剂量与实测值均没有显著差异 (t 检验的结果分别为 $p = 0.687$ 和 $p = 0.690$). 进一步的分析表明, 方程 (4) 的斜率与 1 无显著差异, 且截距项与 0 无显著差异, 而方程 (3) 的斜率与 1 有显著差异, 截距与 0 有显著差异, 说明

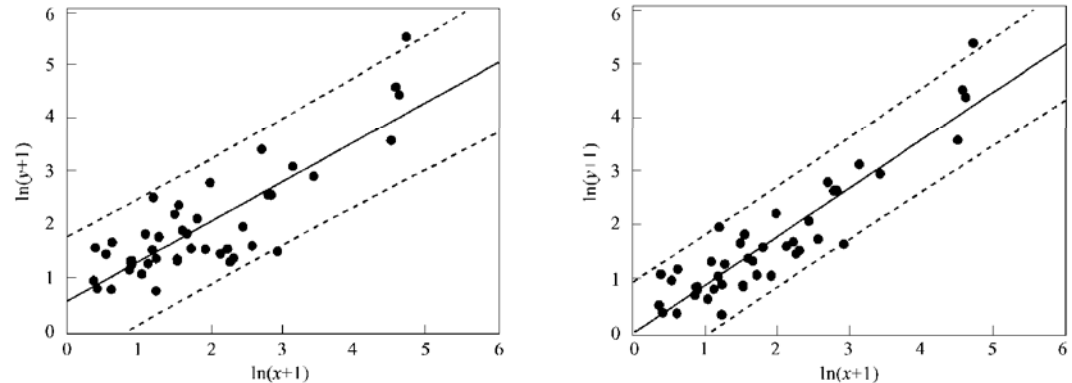


图 2 日硼暴露剂量实测值与预测值的关系
Fig. 2 Relationship between daily boron exposure dose observed and predicted

在用尿硼浓度预测日硼暴露剂量时,考虑人群组别的影响是必要的. 用班后尿硼的浓度来预测日硼暴露剂量是可行的,但是由于暴露途径和工作状况的差异,不同组别的人群使用方程的条件有所差异.

2.4 用班后尿硼预测日硼暴露剂量的预测方程的应用

用预测方程(2)预测 2004 年所有受试者的日硼暴露剂量,并按不同人群进行统计分析,结果如表 2.

表 2 日硼暴露剂量预测结果/ $\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$
Table 3 Statistic of predicted daily boron exposure dose/ $\text{mg}\cdot\text{d}^{-1}$

组别	样本数	范围值	平均值	中位值
暴露组	75	2.83~ 354	36.1	12.0
社区对照组	63	0.46~ 52.6	4.13	2.81
背景对照组	70	0.16~ 2.72	1.31	1.26

由表 2 可知,不同人群预测的日硼暴露剂量呈明显的梯度分布,暴露组的日硼暴露预测剂量分别是社区对照组和背景对照组的 8.74 倍和 27.6 倍. 背景对照组的日硼暴露呈对数正态分布($p=0.711$),其平均日硼暴露剂量的预测值与文献报道值($1\sim 2\text{mg}/\text{d}$)接近^[7]. 暴露组和社区对照组中日硼暴露剂量超过世界卫生组织规定限值 $13\text{mg}/\text{d}$ ^[2] 的人数分别为 35 和 2,分别占暴露组和社区对照组的 46.7% 和 3.17%.

3 结论

(1) 日硼暴露剂量与班后尿硼浓度呈显著的对数线性相关;考虑组别时的日硼暴露剂量的预测方程比不考虑组别时要好,方程的拟合度达到 85.9%.

(2) 根据尿硼浓度预测的日硼暴露剂量与实测

剂量的相对偏差均在 50% 以内,考虑组别的预测方程要比不考虑组别的预测方程得到的结果更接近于实测值,建议使用考虑组别时的预测方程.

(3) 暴露组、社区对照组和背景对照组预测的日硼暴露剂量的均值分别为 36.1、4.13 和 1.31 mg/d ,暴露组和社区对照组日硼暴露剂量超过 13 mg/d 的人数分别为 35(46.7%) 和 2(3.17%).

致谢:对课题组魏春、姜欣、葛宏斌、刘平、许军等同志现场协助采样和美国加州大学洛杉矶分校 Dr. Wendie A. Robbins, Dr. Lin Xun 的支持与指导谨致谢意.

参考文献:

[1] Department of Health. Dietary Reference Values for Food Energy and Nutrients for the UK[R]. Report on Health and Social Subjects 41. London: HMSO, 1991.

[2] WHO/FAO/IAEA. Trace elements in human nutrition and health[R]. Geneva: World Health Organization, 1996, 175~179.

[3] Wester R C, Hui X, Maibach H I, *et al.* *In vivo* percutaneous absorption of boron as boric acid, borax, and disodium octaborate tetrahydrate in humans: a summary [J]. *Biol. Trace. Elem. Res.*, 1998, **66**: 1~3, 101~109.

[4] Dweight Culver B, Peter T Shen, Thomas H Taylor, *et al.* The relationship of blood and urine boron to boron exposure in borax-workers and the usefulness of urine boron as an exposure marker [J]. *Environment Health Perspectives*, 1994, **102**: (suppl 7): 133~137.

[5] 邢小茹,魏复盛,吴国平,等. 硼污染的个人暴露量及其代谢 [J]. *中国环境科学*, 2005, **25**(3): 271~274.

[6] GB4883-85. 数据的统计处理和解释——正常样本异常值的判断和处理[S]. 1985.

[7] Charlene Rainey, Leslie Nyquist. Multicountry estimation of dietary boron intake [J]. *Biological Trace Element Research*, 1998, **66**: 79~86.