

污水灌溉土壤中 As 暴露的健康风险研究

赵 肖, 周培疆

(武汉大学环境科学系, 湖北 武汉 430072)

摘 要: 在分析污水灌溉地区灌溉污水、大气、地下水监测数据以及 As 污染区流行病学调查资料的基础上, 以污灌导致的膳食 As 暴露为研究对象, 探讨了灌溉污水 As 浓度与人群 As 中毒患病率之间的关系, 并以石家庄污灌区为例, 研究了污灌区 As 的可接受风险灌溉浓度。结果表明, 当健康风险度 $R < 2 \times 10^{-3}$ 时, 风险为可接受的。污灌区 As 的可接受风险灌溉浓度为 $< 0.033 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。建立了污水灌溉的安全年限 (s) 与土壤中 As 的可接受风险灌溉浓度 (Ca) 的关系图, 为污灌的科学管理以及污灌区 As 污染的控制提供了参考。

关键词: As; 污水; 灌溉; 健康风险

中图分类号: X825 **文献标识码:** A **文章编号:** 1672 – 2043(2004)05 – 0926 – 04

Health Risk Analysis of Arsenic Exposure in Soils Using Sewage for Irrigation

ZHAO Xiao, ZHOU Pei-jiang

(Department of Environmental Science, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

Abstract: Based on analysis of monitoring data of an arsenic pollution area irrigated with sewage and information about chronic arsenicism of arsenic contamination, integrating the transference process of arsenic from sewage to bodies with relationship between rate of chronic arsenicism and estimation of accumulative intake level, a quantitative study of health risk assessment on arsenic exposure to residents at an area using sewage for irrigation in Shijiazhuang City was studied. It was suggested that safe limited time of irrigation by sewage and the acceptable maximum of arsenic concentration in sewage be estimated. The result showed that among the residents born in 2002 there were 16.33% diagnosed with chronic arsenic absorption if arsenic concentration in sewage remained consistent and the acceptable maximum of arsenic concentration was $0.033 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. The prandial arsenic exposure was the most important part of the total arsenic exposure (about 80% at the study on residents born in 2002). The acceptable maximum of arsenic concentration would change when the safe limited time of irrigation by sewage changed and the range of the change would diminish when the safe limited time of irrigation by sewage aggrandized. Using this method in the article, the environmental objective for the utilization of the sewage may be quantified more accurately.

Keywords: Arsenic; sewage; irrigation; health risk

污水灌溉在我国北方农业发展中已成为普遍现象。虽然它起到了利用和处理城市废水资源, 保护接纳水体的作用, 但我国现阶段污灌管理体系还不健全, 许多地方的污水往往持续不断不加控制地盲目灌溉, 造成了大量的污染, 不少污灌区居民癌症等疾病的发病率远高于非污灌区, 而且此趋势还在发展。

目前关于污水灌溉地区 As 暴露健康风险的研究主

要集中于污灌区居民流行病状况的调查研究^[1, 2], 而对含 As 污水灌溉导致膳食 As 暴露的研究较少。1998—2002 年, 石家庄农业局对该市污灌区灌溉污水、土壤及主要农作物的 As 含量进行了长期的监测^[3]。本文结合该污灌区 As 的监测资料以及 As 污染区流行病学调查资料, 以污灌导致的膳食 As 暴露为研究对象, 探讨灌溉污水 As 浓度 – 土壤 As 含量 – 农作物 As 含量 – 污灌区人群患病率这一系列的相互关系, 并在此基础上进一步研究污灌区 As 的可接受风险灌溉浓度及污水灌溉的安全年限, 为污灌区环境保护与管理工作提供一定的参考。

收稿日期: 2004 – 03 – 05

作者简介: 赵 肖 (1981—), 男, 湖北天门人, 现在武汉大学攻读硕士学位。

1 研究思路及方法

As 是一种重要的污染物,在各种环境介质中均有暴露,它能与人体细胞中的巯基结合,使细胞代谢失常和死亡,从而导致神经炎、神经麻痹、血溶性贫血及血管坏死。

石家庄市污灌区主要集中于栾城和赵县,两县耕地总面积为 82 943 hm², 纯污灌面积占总面积的 92%, 其中污灌时间超过 20 年的占总面积的 72%。土壤类型为褐土类,包括潮褐土和碳酸盐褐土两个亚类,农作物主要为小麦和玉米。该污灌区 As 对人体的暴露过程如图 1 所示。

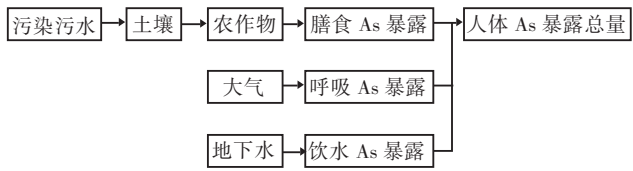


图 1 污灌区 As 对人体的暴露过程
Figure 1 Process of arsenic exposure to residences at the area irrigated with sewage

根据图 1, 本文通过探讨污灌区污灌水 As 浓度对土壤 As 含量变化的影响以及土壤 As 含量与主要农作物 As 含量的相关性, 结合对污灌区居民生活习惯的调查可对污灌区 As 暴露于人体的过程进行定量分析及相应的健康风险评价。

1.1 污灌区土壤 As 累积量的计算方法

污灌区 n 年内土壤 As 的累积量计算采用式(1)^[1]。
$$W_n = K_n \{ K_{n-1} [\cdots K_2 (K_1 (B + R_1) + R_2) + \cdots + R_{n-1}] + R_n \}$$
 (1)
其中: W_n 为 n 年内土壤 As 累积量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; K_i 为第 i 年土壤 As 的年残留率(%), 石家庄污灌区土壤类型及农作物种类基本一致, 可以认为 $K_1 = K_2 = \cdots = K_n = K$; B 为初始年土壤 As 背景值, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; R_i 为第 i 年土壤 As 年输入量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 污灌区 R_i 的计算采用式(2)^[1]。

$$R_i = Q_i c_i / M \quad (i = 1, 2, \cdots, n)$$
 (2)
式中: Q_i 为第 i 年的污灌水量 $\text{L} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$; c_i 为第 i 年污灌水中 As 浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; M 为每公顷耕地耕作层土壤质量, kg 。

1.2 污灌区主要农作物 As 含量计算方法

进入土壤中的 As 多以氯化物或 As 酸盐的形式存在, 对农作物 As 含量有影响的是土壤中有有效态 As 的含量。许嘉琳^[4]等对 As 污染土壤的研究表明, 土壤有效态 As 与土壤全 As 成显著正相关, 对特定类型的

土壤来说, 其线性相关性良好, 在对白银市大田条件下小麦 As 含量 (y) 与土壤全 As 含量 (x) 间关系的研究中, 得到了如下相关方程:

$$y = 0.0476 + 0.0042x \quad (N = 38), r = 0.9024 \quad (P < 0.01)$$
 (3)

式(3)表明, 在特定区域中, 农作物 As 含量与土壤 As 含量之间存在线性关系。因而污灌区主要农作物 As 含量的分析可直接对各采样点土壤、主要农作物 As 含量的监测结果进行线性相关性分析。

1.3 污灌区居民 As 暴露的健康风险分析

王振刚^[5]等采用 As 累积参考剂量 $R_f D$ 、人体实际 As 暴露量 I 及 As 中毒患病率 A 三个指标表征 As 污染区人群发生慢性 As 中毒的终生风险度 R , 取得了良好的效果, 如式(4)。

$$R = I / R_f D \times A$$
 (4)

由于污灌区 As 对人体的暴露同样是一个逐步累积的慢性暴露过程, 故用污灌区居民 As 终生累积量 $I_{\text{终生}}$ 代替式(4)中的 I , 其他参数不变, 同样可对污灌区居民 As 暴露的健康风险度进行分析。根据图 1, 以 75 岁作为评价上限, 计算 $I_{\text{终生}}$ 采用式(5)。

$$I_{\text{终生}} = I_{\text{膳食}(\text{终生})} + I_{\text{呼吸}(\text{终生})} + I_{\text{饮水}(\text{终生})}$$
 (5)

式中: $I_{\text{膳食}(\text{终生})}$ 为污灌区居民膳食 As 的终生暴露量, 可计算为:

$$I_{\text{膳食}(\text{终生})} = \sum_{i=1}^{75} \sum_j Q_{(i,j)} \cdot c_{(i,j)}$$
 (6)

式中: $Q_{(i,j)}$ 为第 i 年对第 j 种食物摄入总量, $\text{kg} \cdot \text{a}^{-1}$; $c_{(i,j)}$ 为第 i 年第 j 种食物的含 As 量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

污灌区居民呼吸 As 的终生暴露量 $I_{\text{呼吸}(\text{终生})}$ 可计算为:

$$I_{\text{呼吸}(\text{终生})} = \sum_{i=1}^{75} Q_g \cdot c_{g(i)}$$
 (7)

式中: Q_g 为污灌区居民年通气量, 根据国际辐射防护委员会(ICRP)资料, 可确定为 $8\,149.25 \text{ m}^3$; $c_{g(i)}$ 为污灌区第 i 年大气 As 含量。

污灌区饮用水多来自地下水, 以人均日饮水量 2 L 计算, 结合地下水中 As 浓度的监测结果, 同样可得到污灌区居民终生饮水的 As 暴露量 $I_{\text{饮水}(\text{终生})}$ 。

美国 EPA 认为人体每日摄入 $200 \sim 250 \mu\text{g}$ 的 As 无不良慢性中毒反应发生^[6], 故确定 $200 \mu\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$ 作为 $R_f D$ 。尚琪等对 As 污灌区人群 As 中毒情况进行了流行病学调查和人群对 As 累积暴露量的分析^[7], 以人群 As 中毒患病率 $A(\%)$ 对 As 累积暴露量 $I(\text{mg})$ 进行相互关系的曲线拟合, 得到下式:

$$A = I^{1.843} / e^{12.694} - 2.866 \quad (r^2 = 0.945)$$
 (8)

式中: A 为人群 As 中毒患病率; I 为 As 累积暴露量 (可用 $I_{\text{终生}}$ 代替)。此方程表明, 人群 As 中毒患病率与累积暴露量之间存在着剂量-反应关系, 曲线拟合程度良好。将式 (8) 应用于污灌区人群 As 中毒患病率的分析, 结合以上分析过程可对污灌区 As 暴露的健康风险进行定量评估。

1.4 污水灌溉的安全年限及土壤中 As 的可接受风险灌溉浓度分析

参考美国 EPA 资料^[6], 结合王振刚^[5]对 As 污染健康风险度的研究, 采用上文得到的健康风险分析结果, 当 $R < 2 \times 10^{-3}$ 时风险为可接受的。因而在某一特定的污灌区, 对安全年限应理解为: 采用特定浓度的污水灌溉时, 在安全年限内污灌区现有居民的 As 暴露健康风险度低于 2×10^{-3} 。相应地, 土壤中 As 的可接受风险灌溉浓度即为污灌区居民 As 暴露健康风险度低于 2×10^{-3} 时灌溉水中 As 的允许最大浓度。值得注意的是, 可接受风险灌溉浓度不是固定的, 它取决于对安全灌溉年限的要求。

2 石家庄污灌区研究

2.1 As 暴露的健康风险评价

污灌区的主要农作物为小麦和玉米, 其耕层深度为 20~30 cm, 灌溉水量 $Q = 220\,000 \text{ L} \cdot \text{hm}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ 。根据监测数据, 结合式 (1)、式 (2) 采用非线性拟合得到土壤 As 的年残留率 $K = 0.338$ 。若污水未得到有效治理, 采用 2002 年污灌水的 As 浓度 $C = 0.070 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 土壤 As 背景值 $B = 16.415 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 来预测土壤 As 含量的变化。

对污灌区各监测点小麦、玉米 As 含量与土壤 As 含量监测数据进行整体线性分析, 分别得到以下相关方程。

小麦 As 含量 (y) 与土壤 As 含量 (x) 相关方程:

$$y = 0.03282 + 0.00573x (r = 0.9253, P < 0.0001) \quad (9)$$

玉米 As 含量 (y) 与土壤 As 含量 (x) 相关方程:

$$y = -0.36501 + 0.04902x (r = 0.9721, P < 0.0001) \quad (10)$$

污灌区居民 (成年) 面食日均食用量为 503.5 g, 年食用量 $Q_1 = 183.8 \text{ kg}$; 玉米日均食用量为 86.5 g, 年食用量 $Q_2 = 31.6 \text{ kg}$ 。根据中国营养学会修订的《推荐的每日膳食中营养素供给量》^[8], 未成年期 (<20 岁) 粮食平均年食用量约为成年期年的 0.669 倍。面食、玉米中含 As 量采用当年各采样点小麦、玉米子粒含 As 量的平均值。如 2002 年污灌区面食含 As 量 $c_1 = 0.128 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 玉米含 As 量 $c_2 = 0.444 \text{ mg} \cdot$

kg^{-1} , 因而 2002 年污灌区居民膳食 As 暴露量分别为 $I_{\text{膳食成年}}(2002) = 25.103 \text{ mg}$, $I_{\text{膳食未成年}}(2002) = 16.794 \text{ mg}$ 。

1998—2002 年污灌区大气 As 含量变化不大, 平均值为 $0.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, $I_{\text{呼吸}}(\text{终生}) = 123.00 \text{ mg}$ 。1998—2002 年该污灌区地下水 As 浓度在 $0.006 \sim 0.022 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 间变化, 平均值为 $0.010 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, $I_{\text{饮水}}(\text{终生}) = 547.50 \text{ mg}$ 。

对于不同年龄的居民而言, 由于 As 暴露时间不同, 终生 As 暴露量也会不同。可以预见, 若以 2002 年作为最近年, 对现有居民来说, 2002 年出生居民的 As 暴露健康风险度最大。根据以上分析, 对于此类居民, 其膳食终生暴露量应计算为:

$$I_{\text{膳食 2002}}(\text{终生}) = 0.669 \cdot \sum_{i=2003}^{2022} I_{\text{膳食}(i)} + \sum_{j=2023}^{2077} I_{\text{膳食}(j)} \quad (11)$$

计算得到 $I_{\text{膳食 2002}}(\text{终生}) = 2\,790.30 \text{ mg}$, 相应的 $I_{\text{呼吸 2002}}(\text{终生}) = 123.00 \text{ mg}$, $I_{\text{终生 2002}}(\text{饮水}) = 547.50 \text{ mg}$ 。该居民终生 As 总暴露量 $I_{\text{终生 2002}} = 3\,460.80 \text{ mg}$, 相应的 As 中毒患病率为 $A_{2002} = 16.33\%$ 。故污灌区 2002 年出生居民的 As 暴露健康风险度 $R_{2002} = 0.010$ 。同样可对该污灌区其他不同年龄居民的 As 暴露健康风险进行评价。

2.2 土壤中 As 的可接受风险灌溉浓度及污水灌溉的安全年限分析

以 2002 年为最近年, 若使 2002 年出生的居民 As 暴露健康风险度低于 2×10^{-3} , 依照在风险评价中采用的分析过程进行反向推导, 可得到 2002 年出生居民的 As 的可接受风险灌溉浓度为 $0.033 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。根据上文分析, 当灌溉污水中的 As 浓度控制在 $0.033 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 该污灌区当前所有居民 As 暴露健康风险度均会低于 2×10^{-3} , 此时污水灌溉的安全年限至少为 75 a。

研究不同安全灌溉年限 (s) 对 As 的可接受风险灌溉浓度 (Ca) 的要求时, 应分为两方面考虑。当 $s < 75 \text{ a}$ 时, 可直接研究该年限内成年居民的 As 累积暴露量, 求出相应的可接受风险灌溉 As 浓度。当 $s \geq 75 \text{ a}$ 时, 应采用式 (12) 分析。

$$\left(\sum_{i=1}^{s-74} R_i \right) / (s-74) < 2 \times 10^{-3} \quad (12)$$

式中: s 为对安全灌溉年限的要求; R_i 为安全年限内第 i 年出生居民的终生 As 暴露风险度。依照对 2002 年出生居民可接受风险灌溉浓度的分析过程, 以污水灌溉的安全年限 (s) 对土壤中 As 的可接受风险灌溉浓度 (Ca) 作图, 可得到图 2。

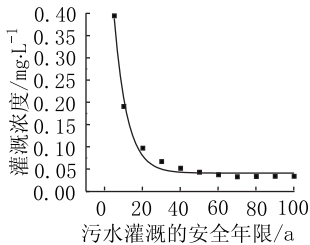


图 2 土壤中 As 的可接受风险灌溉浓度 (C_s)与
污水灌溉的安全年限 (s) 的关系

Figure 2 Relationship between acceptable concentrations of arsenic
and safe limited time of irrigation with the sewage

由图 2 可以看出,随着 s 的增大,对 C_a 也愈加严格。其中,当 s 增大到 70 年左右时,相应地 C_a 也逐渐稳定在 $0.033\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。当 $s>70$ 时, C_a 反而略有上升,其原因可能是土壤对污灌水中的 As 的吸附能力达到最大所致。

根据污灌区污水处理规划,未来 50、100、150 及 200 a 的污水处理率见表 1。以 2002 年污灌水 As 浓度 ($0.070\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 作为参考,根据图 2 预测处理后污水灌溉的安全年限,结果同时列于表 1。

规划年限/a	50	100	150	200
一级处理率/%	40	50	55	60
二级处理率/%	10	15	20	30
预测 As 浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	0.060	0.057	0.055	0.052
预测污水灌溉安全年限/a	34	36	37	40

注:处理后污水中 As 的浓度为 $0.05\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

表 1 显示,处理后的预测污水灌溉的安全年限均小于相应的规划年限。该污灌区只有采取更加严格的控制措施,如减少污染源数量和减轻污染程度等,才能达到保护污灌区居民健康的要求。此外,通过严格控制饮用水、大气中的 As 含量也能取得一定的效

果。

以上研究表明,由污灌导致的膳食 As 暴露是污灌区居民 As 暴露的重要途径(2002 年石家庄市污灌区膳食 As 暴露量占总暴露量的 80%);同时建立类似图 2 的 C_a-s 关系对环境保护与管理工作具有一定的指导意义。

本文提供了对污水灌溉土壤中 As 暴露的健康风险进行分析的一条途径。在实际应用过程中,还应注意一些不确定因素的影响,如土壤对 As 的累积不是无限的,污水 As 浓度与土壤 As 含量的变化量之间的关系有待进一步研究,农作物 As 含量与土壤 As 含量的相关性也需要更准确的定量。本文的研究方法具有特定的地域特征,不同的地域环境,其土壤类型不同、居民生活习惯不同等,也会得到不同的结论。

参考文献:

[1] 丁桑岚主编. 环境评价概论[M]. 北京:化学工业出版社,2001. 4.

[2] Patrick Sheehan. Assessments of ecological impacts on a regional scale [M]. Methods to assess the Effects of Chemicals on Ecosystems. Published by John Wiley & Sons Ltd, 1995. 307-336.

[3] 石家庄市农业局. 石家庄市污灌区环境质量研究[M]. 2002 年.

[4] 许嘉琳. As 污染土壤的作物效应及其影响因素[J]. 土壤, 1996, 22(2): 85-89.

[5] 王振刚,何海燕. As 污染的健康危险度评价[J]. 中国药理学与毒理学杂志, 1997, 11(2): 93-94.

[6] Tantiana Zakharova, Fabio Tatano. Health Cancer Risk Assessment for Arsenic Exposure in Potentially Contaminated Area by Fertilizer Plants [J]. Regulatory Toxicology and Pharmacology, 2002, (36): 22-33.

[7] 尚 琪,任修勤,等. 污染区人群累积暴露量及 As 中毒的关系 [J]. 卫生研究, 2002, 31(5): 349-351.

[8] 中国营养协会. 推荐的每日膳食中营养素供给量[J]. 营养学报, 1989, 11(1): 93-96.

[9] Michael Dourson, Jacqueline Patterson. A 20-Year Perspective on the Development of Non-Cancer Risk Assessment Methods[J]. Human and Ecological Risk Assessment, 2003, (9): 1239-1252.