

中国地下水砷健康风险评估

邓安琪,董兆敏,高 群,胡建英* (北京大学城市与环境学院,地表过程分析与模拟教育部重点实验室,北京 100871)

摘要: 以皮肤癌、膀胱癌、肺癌及联合毒性(膀胱癌和肺癌联合)为毒性终点,结合我国地下水砷浓度分布,评价了我国人群暴露于地下水砷的健康风险.研究表明我国各地地下水砷浓度几何均值为 1.597~6.216 $\mu\text{g/L}$,经面积校正后,全国地下水砷浓度几何均值为 2.773 $\mu\text{g/L}$.计算表明,我国男性人群日均暴露量几何均值为 0.088 $\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$,女性人群日均暴露量几何均值为 0.093 $\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$.基于此,全国男性由地下水中砷暴露带来的皮肤癌、肺癌、膀胱癌风险期望值分别为 1.32×10^{-4} , 5.88×10^{-4} 和 9.83×10^{-4} ,男性膀胱癌和肺癌的联合风险期望值为 1.48×10^{-3} ; 全国女性由地下水中砷暴露引起的皮肤癌、肺癌和膀胱癌风险期望值分别为 1.35×10^{-4} , 1.49×10^{-3} 和 9.42×10^{-4} ,女性膀胱癌和肺癌的联合风险期望值为 2.31×10^{-3} ,女性风险均高于男性.大部分地区皮肤癌致癌风险在饮用水砷可接受风险水平 10^{-4} 范围之内,而大部分肺癌、膀胱癌及其联合致癌风险值均超出了可接受风险水平.

关键词: 地下水; 砷; 风险评估; 皮肤癌; 膀胱癌; 肺癌

中图分类号: X523 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6923(2017)09-3556-10

Health risk assessment of arsenic in groundwater across China. DENG An-qi, DONG Zhao-min, GAO Qun, HU Jian-ying* (College of Urban and Environmental Sciences, Peking University, Beijing 100871, China). *China Environmental Science*, 2017,37(9): 3556~3565

Abstract: The health human risk of inorganic arsenic (As) in groundwater was assessed using the skin cancer, bladder cancer, lung cancer and the union of bladder cancer and lung cancer were selected as the endpoints. The geometric mean (GM) of arsenic concentrations in groundwater across China was estimated to be in the range of 1.597~6.216 $\mu\text{g/L}$. After adjusting area of each province, the GM of As was 2.773 $\mu\text{g/L}$. The average daily dose (ADDs) for male and female of As via intake of underground water were estimated to be 0.088 $\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$ and 0.093 $\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$, respectively. Thus, the expected risk for male raised by As via groundwater exposure was calculated to be 1.32×10^{-4} for skin cancer, 9.83×10^{-4} for bladder cancer, 5.88×10^{-4} for lung cancer, and 1.48×10^{-3} for joint cancer risk (bladder cancer and lung cancer). The cancer risk for female was 1.35×10^{-4} , 9.42×10^{-4} , 1.49×10^{-3} , and 2.31×10^{-3} for skin, bladder, lung and the joint cancer risk, respectively, higher than those for male. In most provinces, the risk is higher than the acceptable risk level of 10^{-4} for As set by US EPA.

Key words: groundwater; arsenic; risk assessment; skin cancer; bladder cancer; lung cancer

砷在自然界中广泛存在,无机砷能导致皮肤癌、肝癌、肺癌及肾癌^[1-6],目前已被世界卫生组织和美国环境署列为第一类致癌物质^[7].地下水是人类砷暴露的重要途径^[8],我国 70%的人群以地下水作为饮用水源,三分之二的城市开采使用地下水^[9].我国一些地区的地下水中砷污染情况较为严重,有调查表明我国饮水型地方性砷中毒分布于 8 省市区,40 个县旗市,受影响人口达两百多万,其中高砷暴露人口(即地下水砷浓度大于 50 $\mu\text{g/L}$)52 万人,砷中毒近万人,其中内蒙、山西为我国饮水型地方性砷中毒重病区^[10].国际上,巴

基斯坦 Mailsi 地区的地下水砷浓度高达 11~828 $\mu\text{g/L}$ 之间^[11],美国西部约 12%地下水的水砷浓度超过 20 $\mu\text{g/L}$ ^[12],全球范围内大约 1 亿 5 千万人由于饮用高砷地下水受到健康危害^[13].因此砷的健康风险受到广泛关注.

以往砷的健康风险评估主要以皮肤癌作为毒性评价终点^[14],美国环境署在对饮用水中的重

收稿日期: 2017-02-09

基金项目: 保障饮用水安全的高通量毒性物质甄别技术(2016YFE0117800);国家水专项(2014ZX07405001)

* 责任作者, 教授, hujy@urban.pku.edu.cn

金属砷进行风险评价时采用了中国台湾地区的流行病学调查数据^[15]。然而近年来的流行病学调查发现:1)膀胱癌和肺癌更为常见、特征更为明显;2)膀胱癌和肺癌死亡率高于皮肤癌;3)膀胱癌和肺癌的致癌强度高于皮肤癌。因此 2010 年,美国环境署以肺癌和膀胱癌作为新的毒性终点对无机砷的毒性重新评价^[15],砷的健康风险评价中有必要考虑这两个健康终点。在暴露评价方面,我国目前针对地下水砷的研究多集中在砷浓度检测^[16-18],大多局限于砷污染较为严重的典型地区,如内蒙古、陕西省等地。直到 2013 年,Luis Rodríguez-Lado 等^[19]在 2001~2005 四年间检测了中国 292 个县、20517 个村庄共计 445000 口水井的水砷浓度,结合影响地下水砷溶解度的地质和水文地球化学信息,建立了我国不同地区地下水中砷浓度的预测模型,报道了中国范围内 6330×3647 个栅格数据点上地下水砷浓度超过 10 $\mu\text{g}/\text{L}$ 的概率。该研究为我国地下水砷的健康风险评价提供了重要的暴露数据,但是论文没有报道可用于定量风险评价的地下水中水砷浓度,很难直接用于我国地下水砷的健康风险评价。

本文基于文献报道的全国地下水砷的超标概率栅格数据,利用统计模型和 GIS 手段计算其各省份地下水砷的浓度分布。结合体重、年龄等因素,计算中国人群的地下水砷的暴露量。并分别以皮肤癌、膀胱癌、肺癌及膀胱癌和肺癌的联合毒性作为评价终点,计算全国人群通过地下水暴露途径的砷健康风险,为砷的风险管理提供参考。

1 研究方法

1.1 毒性评价

美国环境署在计算饮用水中砷带来的肺癌、膀胱癌及其联合风险时采用了台湾的流行病学调查结果。研究者测定了台湾西南地区 6 个城镇共计 42 个村庄井水中的砷浓度,并从当地户籍办公室和台湾省政府卫生部门分别获取了 1973 至 1986 年期间,西南地区 and 全台湾的死亡率和人口数据^[20]。考虑到癌症死亡是一个小概率事件,因

此假定每个年龄段每个剂量组的癌症死亡数符合泊松分布:

$$h(x,t) = h_0(t) \times g(x) \quad (1)$$

式中: $h(x,t)$ 为在剂量“ x ”和年龄“ t ”下的癌症死亡风险; $h_0(t)$ 为参考人群(台湾西南地区)在年龄“ t ”下的癌症死亡风险; $g(x)$ 为由于剂量“ x ” [mg/kg·d] 的砷暴露叠加的风险。基于美国咨询中心(National Referral Center,NRC)的建议^[21],美国环境署对比不同的模型的拟合优劣,最终基于拟合优度和简约的原则,选取了多项式模型:

$$h(x,t) = \exp(a_1 + a_2 \times \text{age} + a_3 \times \text{age}^2) \times (1 + b \times \text{dose}) \quad (2)$$

式中: $a_1/a_2/a_3$ 均为年龄系数; b 为剂量系数。

在模型拟合中,每个村庄人群的砷摄入量均假定为非水砷摄入以及该地区井水中砷暴露总和,当地男性和女性的每天饮水量分别为 3.5L 和 2L;男女体重均取 50kg。台湾西南部的人口数据当作基准模型中的对照组。通过最大似然法获得模型参数 a_1, a_2, a_3 和 b 后,对每五岁年龄分层的致癌风险计算一次致癌风险,然后加和即为终生致癌风险。

应用似然曲线法计算得到终生致癌风险 1% 所对应的暴露剂量 LED_{01} (mg/kg·day, 1% lifetime exposure dose),然后用式(3)计算得到男性和女性的致癌斜率(cancer slope factor, CSF),各终点的致癌强度如表 1 所示。

$$\text{CSF}[\text{per mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})] = 0.01/\text{LED}_{01} \quad (3)$$

表 1 不同毒性终点的致癌强度

Table 1 Cancer slope factor of different toxic endpoints

	变量	肺癌	膀胱癌	联合终点
男性	$\text{LED}_{01}, [\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})]$	1.5×10^{-3}	8.9×10^{-4}	
	$\text{CSF}, [\text{per } \mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})]$	6.7×10^{-3}	1.12×10^{-2}	1.69×10^{-2}
女性	$\text{LED}_{01}, [\text{mg}/(\text{kg}\cdot\text{d})]$	6.0×10^{-4}	9.5×10^{-4}	
	$\text{CSF}, [\text{per } \mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})]$	1.66×10^{-2}	1.05×10^{-2}	2.57×10^{-2}

美国环境署在 1988 年对砷的风险评价报告^[22]中,报告了皮肤癌的致癌强度为 $1.5 \times 10^{-3} \text{ per } \mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})$,在本文中也应用该致癌斜率计算中国人群皮肤癌风险,用以对比不同毒性终点的健康风险大小。

1.2 暴露评价

Luis Rodríguez-Lado 等的研究中仅仅输出了中国范围各栅格数据点地下水砷浓度超过 10μg/L 的概率图,为了获得中国各个省份地下水砷浓度数据,本文使用 ArcGIS 软件工具箱中的 Zonal 数据分析功能将数据以省份为界进行整合,

计算其平均值,并叠加属性表,得到各省份地下水砷超标概率的均值.随后,假设中国地下水砷浓度分布呈对数正态分布,结合文献中获得的地下水砷分布的几何标准差,计算我国各省的地下水砷几何均值.计算中国地下水砷浓度分布状况的技术路线如下图 1 所示.

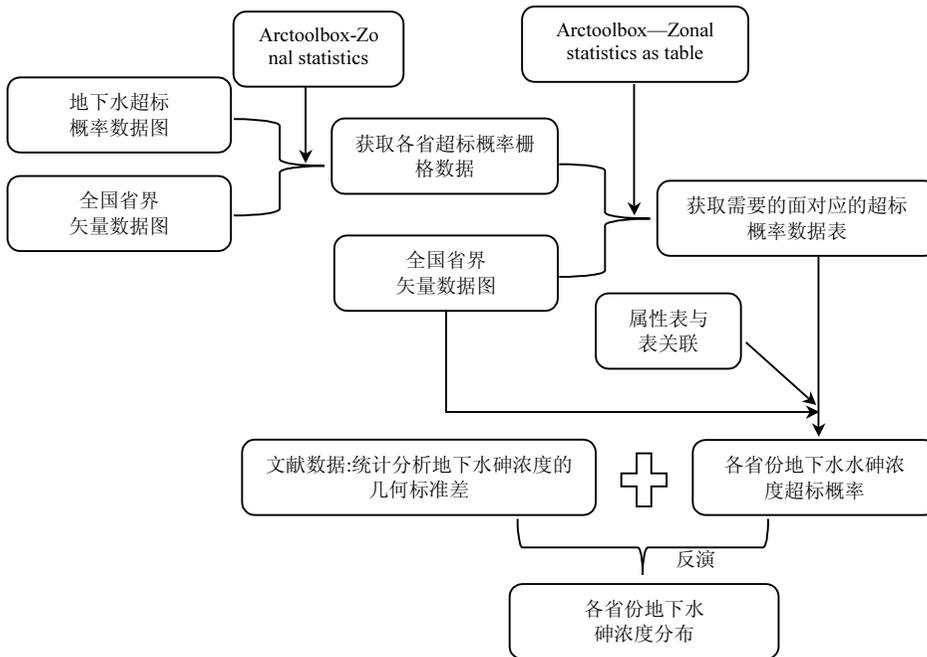


图 1 计算中国地下水砷浓度分布技术路线

Fig.1 The technology roadmap of calculating the arsenic concentration in groundwater throughout china

假定地下水砷浓度分布呈对数正态分布 [23-26],通过如下公式即可计算各省市地下水砷浓度分布的几何均值.

根据对数正态分布的特性可知:

$$\ln(GM)+\varphi^{-1}(100\%-r)\times\ln(GSD)=\ln(10) \quad (4)$$

式(4)中:GM 为各地地下水砷浓度分布的几何均值,GSD 为几何标准差;r(%)为各省市地下水砷浓度超标概率;φ 为标准正态分布的累计概率函数,即 φ⁻¹(100%-r)部分可以转换为如下形式:

$$\varphi^{-1}(100\%-r)=\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{100\%-r}e^{-\frac{t^2}{2}}dt \quad (5)$$

综上,GM 的计算公式如式(6)所示:

$$GM=e^{\frac{\ln(10)-\ln(GSD)\times\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{100\%-r}e^{-\frac{t^2}{2}}dt}{\varphi^{-1}(100\%-r)}} \quad (6)$$

根据上述公式计算几何均值,需要几何标准差.虽然已经有许多文献报道了我国地下水砷浓度分布的几何标准差,但是考虑到样本量大小及测量方式等原因,本文选取了 Ning 等 [27] 在内蒙古巴门地区所做的调查数据计算了几何标准差.研究者在 1991~1997 年间共测量 7 个城镇共 14866 口水井的水砷浓度,样本量较大.该文报道了井水砷浓度分布的算术均值为 36.7μg/L,标准误差为 0.7μg/L,因此可以通过式(7)~式(9)计算得到估算几何标准差为 3.85μg/L.

$$S = SE \times \sqrt{N} \quad (7)$$

$$CV = \frac{S}{AM} \quad (8)$$

$$GSD = e^{\sqrt{\ln(CV^2+1)}} \quad (9)$$

式中: S 为标准差, SE 为标准误差, N 为样本量, CV 为变异系数, AM 为算数均值.为计算全国整体地下水砷浓度分布的几何均值,用公式(10)对面积进行了校正.

$$GM_{total} = \sum \frac{GM \times s}{S_{total}} \quad (10)$$

式中: GM_{total} 为全国整体地下水的水砷浓度分布的几何均值; s 为各省市面积; s_{total} 为全国面积,数据由 2015 年中华人民共和国统计年鉴获得^[28].

1.3 几何标准差灵敏度参数分析

在暴露评价过程中,假设地下水砷浓度呈对数正态分布,通过分布超过基准 $10\mu\text{g/L}$ 的概率分布用式(4)~式(6)反演计算了几何均值.在这个计算中几何标准差采用了文献数据,给上述反演计算带来了不确定性.因此本文对几何标准差进行灵敏性分析.在 $[-20\%, +20\%]$ 的范围改变几何标准差,通过公式(11)计算其灵敏性.

$$\text{灵敏度参数} = \frac{\text{地下水砷浓度绝对变化量}}{\text{分布几何标准差绝对变化量}} \quad (11)$$

1.4 风险计算

基于毒性评价与暴露评价,地下水中砷的致癌风险(R)可以通过公式(12)~(14)进行计算:

$$C_{water} \sim \ln(GM, GSD) \quad (12)$$

$$ADD = \frac{C_{water} \times IR_{water} \times EF \times Ed}{AT \times BW} \quad (13)$$

$$R = CSF \cdot ADD \quad (14)$$

式中: C_{water} 为地下水中砷浓度,呈现对数正态分布,几何均值和几何标准差由暴露评价中结果获得.公式(13)中的 ADD (average daily dose)为单位体重的日均暴露量, IR_{water} 为日饮水量,男性日饮水量为 2.0L ,女性日饮水量为 1.7L . EF 为暴露频率时间量纲转换,取 360 天/年^[29], Ed 为暴露期,根据世界卫生组织发布的 2015《世界卫生统计》^[30]中,中国男性平均寿命 74 岁,女性平均寿命 77

岁; AT 为人的平均暴露时间,取 $70a$,即 $25500d$ ^[29], BW 为平均体重,根据国际卫计委《中国居民营养与慢性病状况报告(2015)》^[31]中数据,中国男性平均体重为 66.2kg ,女性平均体重 57.3kg .公式(14)中, CSF 为致癌强度,本文中采用 $1.5 \times 10^{-3} \text{per}\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})$ 的皮肤癌致癌斜率及表 1 中其他终点致癌斜率计算人群患皮肤癌、膀胱癌、肺癌、及联合毒性(膀胱癌和肺癌联合)的风险.

计算全国人群整体风险时,对各地区人口进行了校正,计算公式如下所示:

$$R_{total} = \sum \frac{R \times P}{P_{total}} \quad (15)$$

式中: R_{total} 为全国人群整体致癌风险; P 为各省份人口数; P_{total} 为全国人口总数,人口数由 2015 年中华人民共和国统计年鉴获得^[28].

1.5 基准值

根据毒性评价结果,可根据如下公式^[15]制定地下水砷浓度的基准值:

$$\text{基准值} = \frac{Rupper \times AT \times BW}{CSF_{total} \times IR_{water} \times EF \times Ed} \quad (16)$$

$$CSF_{total} = CSF_w \times R_w + CSF_m \times R_m \quad (17)$$

式中: $Rupper$ 为可接受致癌风险,在致癌物质风险评价中,其可接受致癌风险通常设定为 $10^{-6} \sim 10^{-4}$ ^[32],考虑到地下水砷处理技术成本的限制,美国环境署在制定地下水砷的标准时,将水砷的可接受风险设定为 10^{-4} ,即 $Rupper$ 为 10^{-4} .由于女性和男性的致癌强度不同,因此根据中国人群男女比例,用公式(17)校正计算人群的致癌强度 CSF_{total} .其中 CSF_w 为女性某一毒性终点的致癌斜率, CSF_m 为男性某一毒性终点的致癌斜率, R_w 为中国人口中女性所占比例, R_m 为中国人口中男性所占比例.根据中国统计局公布的 2015 中国人口数据, R_m 取值 51.2% , R_w 取值 48.8% ^[28].

2 结果与讨论

2.1 暴露评价

为了获得我国人群经由地下水途径摄入砷的暴露数据,通过 ArcGIS 软件展开地下水超标概率栅格数据,在中国底图上共有 6330×3647 个数据,将中国地图的矢量图与超标概率图叠加,经 zonal 功

能,得到中国各省市的地下水砷浓度超标概率.假定中国地下水砷浓度呈对数正态分布,结合计算所得的几何标准差,用式(4)~式(6)计算得到地下水砷浓度分布的几何均值,结果如表 2 所示.

表 2 中国各省市地下水砷浓度超标概率及浓度几何均值

Table 2 Probability of arsenic concentrations exceeding the 10 $\mu\text{g/L}$ threshold and geometric mean of arsenic in groundwater in China

省份	超标概率 (%)	浓度几何均值($\mu\text{g/L}$)	省份	超标概率 (%)	浓度几何均值($\mu\text{g/L}$)
黑龙江省	25.9	2.805	广东省	19.2	2.002
新疆维吾尔自治区	29.6	3.389	海南省	22.4	2.395
山西省	21.1	2.260	吉林省	27.6	3.048
宁夏回族自治区	30.2	2.260	辽宁省	24.2	2.597
西藏自治区	19.6	2.122	天津市	35.0	4.706
山东省	31.9	3.851	青海省	25.3	2.735
河南省	31.9	3.861	甘肃省	24.7	2.658
江苏省	38.5	6.216	陕西省	20.6	2.215
安徽省	29.6	3.391	内蒙古自治区	28.3	3.159
湖北省	22.0	2.349	重庆市	12.8	1.597
浙江省	18.1	1.991	河北省	23.9	2.559
江西省	19.5	2.111	上海市	38.0	5.951
湖南省	18.3	2.006	北京市	20.0	2.357
云南省	13.0	1.611	台湾省	17.8	1.969
贵州省	15.0	1.751	港澳特别行政区	15.6	1.795
福建省	14.9	1.746	四川省	13.5	1.648
广西壮族自治区	18.2	1.746			

表 3 中国各省市人群暴露于地下水的砷暴露量

Table 3 Average daily dose to arsenic in groundwater of Chinese population

省份	男性暴露量 [$\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$]	女性暴露量 [$\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$]	省份	男性暴露量 [$\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$]	女性暴露量 [$\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$]
黑龙江省	0.089	0.094	广东省	0.063	0.067
新疆维吾尔自治区	0.107	0.114	海南省	0.076	0.081
山西省	0.071	0.076	吉林省	0.096	0.103
宁夏回族自治区	0.071	0.076	辽宁省	0.082	0.087
西藏自治区	0.067	0.071	天津市	0.149	0.158
山东省	0.122	0.130	青海省	0.086	0.092
河南省	0.122	0.130	甘肃省	0.084	0.089
江苏省	0.196	0.209	陕西省	0.070	0.075
安徽省	0.107	0.114	内蒙古自治区	0.100	0.106
湖北省	0.074	0.079	重庆市	0.050	0.054
浙江省	0.063	0.067	河北省	0.081	0.086
江西省	0.067	0.071	上海市	0.188	0.200
湖南省	0.063	0.067	北京市	0.074	0.079
云南省	0.051	0.054	台湾省	0.062	0.066
贵州省	0.055	0.059	港澳特别行政区	0.057	0.060
福建省	0.055	0.059	四川省	0.052	0.055
广西壮族自治区	0.055	0.059	全国平均	0.088	0.093

由上表可知,中国各省市地下水砷浓度超标概率介于 13%~38.5%之间,云南、贵州等地超标概率较低,江苏、上海、河南等地超标概率较高.中国各省份地下水砷浓度几何均值介于 1.597~6.216 $\mu\text{g/L}$ 之间,浓度最低的城市是重庆,浓度最高的城市是江苏.从整体看,中国南方大部分地区水砷浓度几何均值均在 2.1 $\mu\text{g/L}$ 之下,新疆、内蒙古等内陆省份及天津、江苏等沿海地区地下水砷浓度稍高,其几何均值在 3 $\mu\text{g/L}$ 之上,最高为 6 $\mu\text{g/L}$ 左右.经面积校正,根据式(10)计算得到全国整体地下水砷浓度分布的几何均值为 2.773 $\mu\text{g/L}$.

经式(13)计算各省市男性、女性的暴露于地下水砷的单位体重日均暴露量,结果如表 3 所示.

由上表可知,中国各省市男性人群暴露于地下水砷的单位体重日均暴露量介于 0.05~0.196 $[\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})]$ 之间,女性人群日均暴露量介于 0.054~0.209 $[\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})]$ 之间,全国男性人群日均暴露量为 0.088 $[\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})]$,女性人群日均暴露量为 0.093 $[\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})]$.

若以 10^{-4} 作为水砷的可接受致癌风险,根据公式(16)计算了针对不同健康终点的我国水砷建议基准浓度(假设地下水砷为饮用水砷的唯一来源).以皮肤癌、膀胱癌、肺癌为终点的基准值分别为 7.52 $\mu\text{g/L}$,1.04 $\mu\text{g/L}$ 和 1.20 $\mu\text{g/L}$,低于目前我国和美国 EPA 的标准值 10 $\mu\text{g/L}$.依照此基准,我国整体地下水砷浓度分布超过不同健康终点基准值的概率分别为 19.61%、85.47%及 90.62%.

2.2 灵敏度分析

中国 33 个省市(注:港澳合并)水砷浓度在几何标准差变化的区间内的灵敏度参数均值及标准差如图 4 所示.几何标准差在 $\pm 20\%$ 范围里波动时,各省市水砷浓度灵敏性参数变化介于 -26.41%与-23.29%之间,其变化幅度均小于 30%,整体差异在可接受的范围之内,因此几何标准差在反演过程中是不敏感参数^[33],本研究中根据文献值确定几何标准差反演地下水砷浓度的做法可取.需要注意的是,本文的几何标准差的灵敏性分析的适用范围是在 $\pm 20\%$ 的范围内.在某些极端情境下,极高异常值可能会影响地下水中砷的

几何标准差,进而影响风险值.

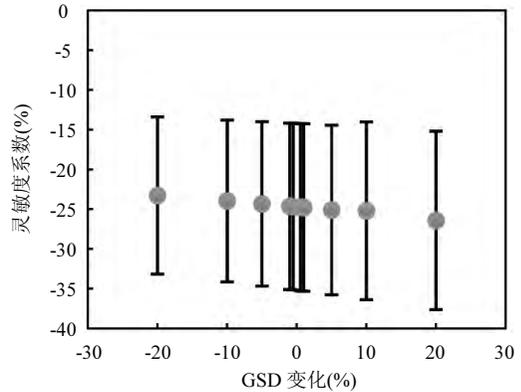


图 2 几何标准差灵敏度分析结果

Fig.2 Sensitivity analysis of geometric standard deviation

2.3 风险评价

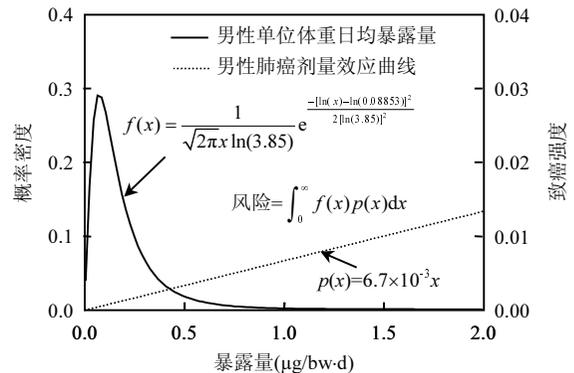


图 3 黑龙江省男性单位体重日均暴露量分布与男性患肺癌的剂量效应曲线

Fig.3 Distribution of average daily dose to arsenic in groundwater and dose-response curve of lung cancer in man of Heilongjiang Province

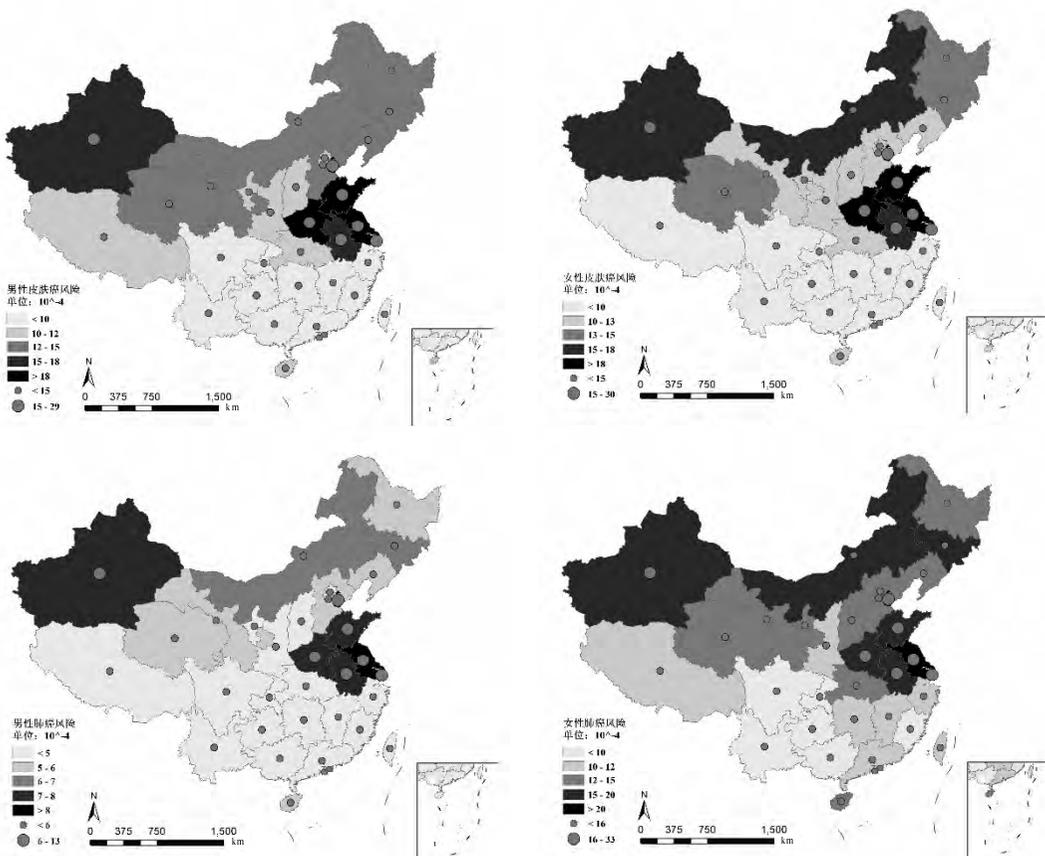
由于环境中的致癌物质浓度往往较低,无阈值的致癌物质在低浓度范围内往往采用低剂量线性外推,因此通过计算我国人群地下水砷的暴露量分布和线性剂量关系的累积积分,可以获得我国人群致癌风险^[34].以黑龙江省男性肺癌风险为例,图 3 曲线代表黑龙江省男性暴露于地下水砷的日均暴露量,直线代表男性肺癌的剂量效应曲线,二者累积积分即为风险,风险计算模式如图 3 所示.分别计算中国各省市地下水砷的皮肤癌、

肺癌、膀胱癌及其联合毒性终点健康风险,结果分布如图4所示.图中背景颜色代表风险分级,颜色越深,风险越大.图上的红色圆点代表各省份风险数值,圆点直径越大,风险越大.

全国范围内,男性由于地下水砷暴露带来的皮肤癌、肺癌、膀胱癌风险范围分别为 $7.56 \times 10^{-5} \sim 2.94 \times 10^{-4}$, $3.38 \times 10^{-4} \sim 1.31 \times 10^{-3}$ 和 $5.65 \times 10^{-4} \sim 2.2 \times 10^{-3}$, 男性联合风险(膀胱癌和肺癌联合)范围为 $8.52 \times 10^{-4} \sim 3.32 \times 10^{-3}$. 女性由于地下水砷暴露带来的皮肤癌、肺癌、膀胱癌风险范围分别为 $7.73 \times 10^{-5} \sim 3.01 \times 10^{-4}$, $8.55 \times 10^{-4} \sim 3.33 \times 10^{-3}$ 和 $5.41 \times 10^{-4} \sim 2.1 \times 10^{-3}$, 女性联合风险(膀胱癌和肺癌)范围为 $1.32 \times 10^{-3} \sim 5.15 \times 10^{-3}$, 女性风险普遍偏高. 大部分地区皮肤癌致癌风险在饮用水水砷可接受风险水平 10^{-4} 范围之内, 而大部分肺癌、膀胱癌及其联合致癌风险值均超出了可接受风险水平. 从地域角度来看, 风险较高的省份有江苏、上海、天津等沿海地区及新疆、内蒙古、陕西等内陆

地区.

为计算各毒性终点的全国平均风险, 本文采用各省份人口数校正期望风险, 人口数由统计年鉴获得^[28]. 经人口校正, 全国男性由地下水中砷暴露带来的皮肤癌、肺癌和膀胱癌的风险期望值分别为 1.32×10^{-4} , 5.88×10^{-4} 和 9.83×10^{-4} , 男性膀胱癌和肺癌联合的期望风险为 1.48×10^{-3} ; 全国女性由地下水中砷暴露带来的皮肤癌、肺癌、膀胱癌风险期望值为 1.35×10^{-4} , 1.49×10^{-3} 和 9.42×10^{-4} , 女性膀胱癌和肺癌联合的风险期望值为 2.31×10^{-3} , 女性风险均高于男性. 在风险计算公式中女性常数项参数略高于男性, 以皮肤癌为终点时男性女性的致癌强度相同, 以肺癌和联合毒性(膀胱癌和肺癌联合)两个终点计算时, 女性的致癌强度要高于男性, 因此上述三个终点女性风险均高于男性. 以膀胱癌为毒性终点时, 女性的致癌强度低于男性, 综合常数项因素, 因此最后的膀胱癌风险计算结果显示为女性略低于男性.



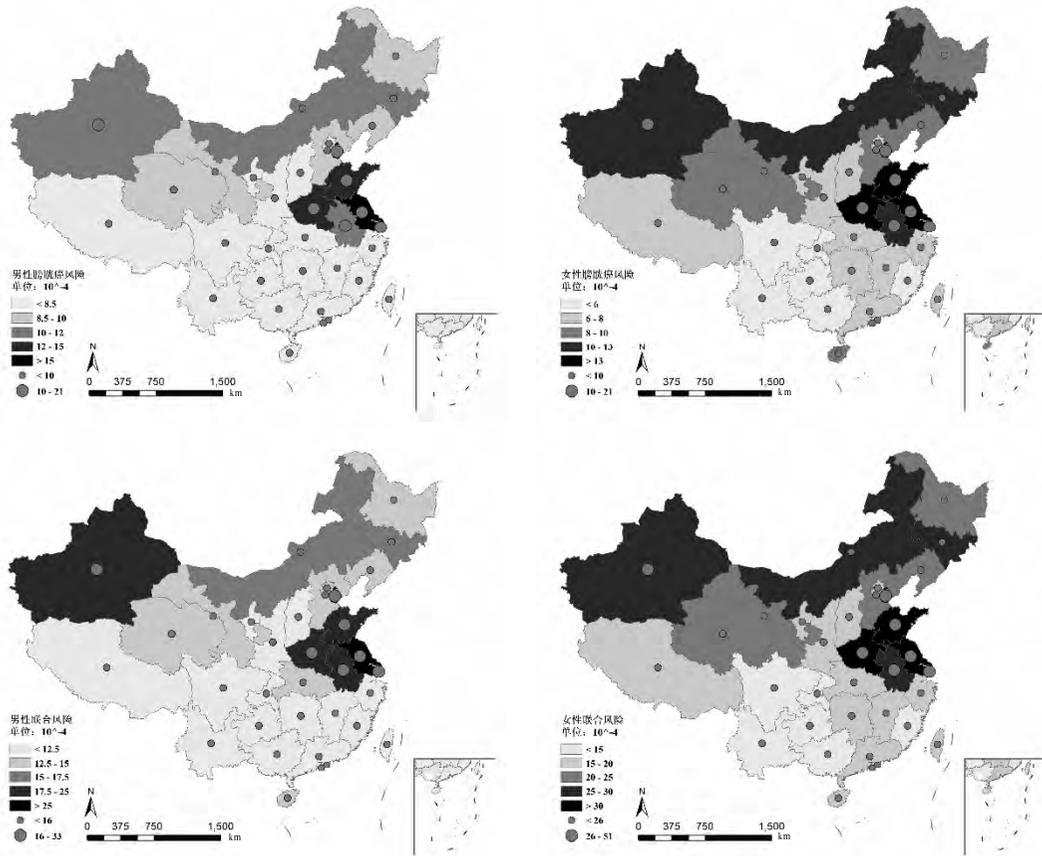


图4 中国各省份地下水砷暴露导致风险分布

Fig.4 Riskdistribution of arsenicviagroundwater exposure pathway in China

2.4 不确定性分析

2.4.1 暴露途径的不确定性分析 张兆吉等^[9]的研究中指出,我国 70%人群以地下水作为饮用水水源,三分之二的城市开采使用地下水.但也有相当一部分城市、地区和人群使用地表水作为供水源,地表水中砷的浓度较低,污染问题较轻.以江苏省为例^[35],南京、江宁、浦口、江阴等地居民饮用来自长江的地表水,无锡市居民饮用来自太湖的贡湖和梅梁湾的湖水,而丰县、沛县、宿迁、睢宁、新沂等地居民饮用水源来自地下水.而分布在北方的松辽平原、黄淮海平原、西北地区盆地以及江汉平原上的省份多以地下水为饮用水源^[36].各地区居民饮用水源情况不一,因此本文默认全国人群均以地下水为饮用水源,并依此计算重金属砷通过饮用水(即地下水)途径带来的致癌风险,这一假设可能对不以地下水为主

要水源的城市或者地区的风险评价结果偏高.

2.4.2 暴露数据的不确定性分析 本研究暴露评价的核心内容是基于地下水砷浓度呈对数正态分布的假设^[23-26],通过已有的全国范围地下水砷超标概率栅格数据,结合文献中获得的地下水砷浓度分布的几何均值,推算全国范围内地下水砷的分布情况.本文中采用了地下水砷分布呈对数正态分布的假设计算风险^[23-26],因此本文的计算存在由于这一假设导致的不确定性.此外,几何标准差参数的灵敏性分析结果显示当几何标准差在 $\pm 20\%$ 范围内波动时,并不会对结果产生过大影响,但如有极高异常值会导致地下水分布的几何均值和几何标准差变大,从而使风险偏大.另外,本文反演得到的中国各地地下水砷浓度分布的几何均值均是自然来源,不区分地方性砷中毒地区与普通地区.事实上,如新疆维吾尔自治区

区、内蒙古自治区等饮水型地方性砷中毒病区和高砷区^[37],地下水砷浓度会远远超出自然来源,因此本文在这些地区进行的地下水砷的健康风险评价结果可能偏低。

3 结论

3.1 本文根据中国地下水砷浓度超标概率栅格数据反演计算了中国各省市地下水砷的浓度分布,计算得到几何均值为 $1.597\sim 6.216\mu\text{g/L}$,经面积校正后的全国地下水砷浓度的几何均值为 $2.773\mu\text{g/L}$ 。全国男性人群日均暴露量为 $0.088\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$,女性人群日均暴露量为 $0.093\mu\text{g}/(\text{kg bw}\cdot\text{d})$ 。

3.2 本文首次计算了通过地下水暴露导致的全国砷健康风险。经人口校正,全国男性由地下水砷暴露带来的皮肤癌、肺癌、膀胱癌风险期望值为 1.32×10^{-4} , 5.88×10^{-4} 和 9.83×10^{-4} ,男性膀胱癌和肺癌的联合风险期望值为 1.48×10^{-3} ;全国女性由地下水砷暴露带来的皮肤癌、肺癌和膀胱癌风险期望值分别为 1.35×10^{-4} , 1.49×10^{-3} 和 9.42×10^{-4} ,女性膀胱癌和肺癌的联合风险期望值为 2.31×10^{-3} 。

参考文献:

- [1] Dibner, B. *Agricolaon Metals* [M]. Norwalk: Burndy Library, 1958:10-25.
- [2] Tseng W P, Chu H. M, How S. W, et al. Prevalence of skin cancer in an endemic area of chronic arsenicism in Taiwan [J]. *Natl. Cancer Inst*, 1968,40:453-463.
- [3] Cebrian M.E, Albores A, Aquilar M, et al. Chronic arsenic poisoning in the North of Mexico [J]. *Hum.Toxicol*, 1983,2: 121-133.
- [4] Chakra A K, Saha K C. Arsenical dermatosis from tubewell water in West Bengal [J]. *Indian J. Med.*, 1987,85:326-334.
- [5] Zaldivar R. Arsenic contamination of drinking water and food-stuffs causing endemic chronic poisoning [J]. *Beitr Pathol*, 1974, 151:384-400.
- [6] C-J. Chen, C-W. Chen, M-M. Wu, et al. Cancer potential in liver, lung, bladder and kidney due to ingested inorganic arsenic in drinking water [J]. *Br. J. Cancer*, 1992,66:888-892.
- [7] IPCS (International Programme on Chemical Safety). Arsenic and arsenic compounds [EB/OL]. Available from URL:<http://www.inchem.org/docum-ents/ehc/ehc/ehc224.html>, 2001.
- [8] WHO (World Health Organization). Arsenic in drinking-water: Background document for development of WHO Guidelines for Drinking-water Quality [R]. Switzerland: WHO Press, 2011.
- [9] 张兆吉,费宁红,陈宗宇.华北平原地下水可持续利用调查评价 [M]. 北京:地质出版社, 2009:35-40.
- [10] 金银龙.中国地方性砷中毒分布调查(总报告) [J]. *卫生研究*, 2003,32(6):519-540.
- [11] Rasool A, Farooqi A, Masood S, et al. Arsenic in groundwater and its health risk assessment in drinking water of Mailsi, Punjab, Pakistan [J]. *Human And Ecological Risk Assessment*, 2016,22:187-202.
- [12] ATSDR (Agency for Toxic Substances and Disease Registry). Toxicological profile for arsenic (update) [R]. U.S. Atlanta: Public Health Service, Department of Health and Human Services, 2007.
- [13] Brammer H, Ravenscroft P. Arsenic in groundwater: A threat to sustainable agriculture in South and South-east Asia [J]. *Environment International*, 2009,35(3):647-654.
- [14] Wongsasuluk P, Chotpatarat S. Human health risk assessment associated with arsenic (As) in drinking shallow groundwater wells at ubon ratchathani province, Thailand [C]. Singapore: 2011 2nd International Conference on Environmental Science and Technology IPCBEE vol.6 (2011) © (2011) IACSIT Press, 2011.
- [15] U.S. EPA (Environmental Protection Agency). Toxicological review of inorganic arsenic, In Support of Summary Information on the Integrated Risk Information System (IRIS) [R]. Washington, DC: U.S. Environmental Protection Agency, 2010.
- [16] Yang L, Peterson P J, Williams P, et al. The relationship between exposure to arsenic concentrations in drinking water and the development of skin lesions in farmers from inner Mongolia, China [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2002,24: 293-303.
- [17] Kwok R K, Mendola P, Liu Zhiyi, et al. Drinking water arsenic exposure and blood pressure in healthy women of reproductive age in Inner Mongolia, China [J]. *Toxicology and Applied Pharmacology*, 2007,222:337-343.
- [18] Wade T J, Xia Yajuan, Wu Kegong, et al. Increased Mortality Associated with Well-Water Arsenic Exposure in Inner Mongolia, China [J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2009,6:1107-1123.
- [19] Rodríguez-Lado L, Sun Guifan, Berg M, et al. Groundwater Arsenic Contamination Throughout China [J]. *SCIENCE*, 2013,341:866-868.
- [20] Morales K H, Ryan L, Kuo T L, et al. Risk of internal cancers from arsenic in drinking water [J]. *Environ. Health Perspect.*, 2000,108:655-661.
- [21] NRC (National Research Council). Arsenic in drinking water (2001update) [R]. Washington, DC :National Academy Press,

- 2011.
- [22] U.S. EPA (Environmental Protection Agency). Recommendations for and documentation of biological values for use in risk assessment [R]. Cincinnati, OH: Environmental Criteria and Assessment Office, 1988.
- [23] Aigner E J, Leone A D, Falconer R L. Concentrations and enantiomeric ratios of organochlorine pesticides in soil from the U.S. Corn Belt [J]. Environ. Sci. Technol., 1998,32:1162–1168.
- [24] Gordon S M, Callahan P J, Nishioka M G, et al. Residential environmental measurements in the National Human Exposure Assessment Survey (NHEXAS) pilot study in Arizona: Preliminary results for pesticides and VOCs [J]. J. Expos. Anal. Environ. Epidemiol., 1999,9:456–470.
- [25] Kim S K, Oh J R, Shim W J, et al. Geographical distribution and accumulation features of organochlorine residues in bivalves from coastal areas of South Korea [J]. Mar. Pollut. Bull., 2002,45:268–279.
- [26] An Wei, Hu Jian-ying, Yao Fang. A method of assessing ecological risk to night heron, *nycticorax nycticorax*, population persistence from dichlorodiphenyltrichloroethane exposure [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2006,25(1):281–286.
- [27] Zhixiong Ning, Danelle T, et al. Residential exposure to drinking water arsenic in Inner Mongolia, China [J]. Toxicology and Applied Pharmacology, 2007,222:351–356.
- [28] 中华人民共和国国家统计局. 中国统计年鉴 [R]. 北京: 中国统计出版社, 2015.
- [29] 董兆敏. 典型有害化学物质健康风险评价技术与应用研究 [D]. 北京: 北京大学, 2013.
- [30] 世界卫生组织, 世界卫生统计年鉴 [R]. 瑞士: 世界卫生组织出版集团, 2015.
- [31] 国家卫生计生委, 中国居民营养与慢性病状况报告(2015 年) [R]. 北京: 国家卫生计生委, 2015.
- [32] U.S. EPA (Environmental Protection Agency). Guidelines for Carcinogen Risk Assessment [R]. 2005,70FR17765–17817.
- [33] Zhaomin Dong, Jianying Hu. Development of Lead Source-specific Exposure Standards Based on Aggregate Exposure Assessment: Bayesian Inversion from Biomonitoring Information to Multipathway Exposure [J]. Environmental Science and Technology, 2012,46(2):1144–1152.
- [34] 胡建英, 安伟, 曹红斌, 等. 化学物质的风险评价 [M]. 北京: 科学出版社, 2010.
- [35] 梁蒙. 江苏省主要集中式饮用水源地水质调查分析及保护对策的研究 [D]. 南京: 南京农业大学, 2011.
- [36] 中华人民共和国水利部. 地下水动态月报 [R]. 北京: 水利部地下水监测中心, 2016.
- [37] 沈雁峰, 孙殿军, 赵新华. 中国饮水型地方性砷中毒病区和高砷区水砷筛查报告 [J]. 中华地方病学杂志, 2005,24(2):172–175.

作者简介: 邓安琪(1992-),女,黑龙江哈尔滨人,北京大学城市与环境学院硕士研究生,主要从事重金属的环境风险评价。