

Health Risk Assessment of Rice Manganese in a Metallic Mining Area

Xue'e Wu, Fusong Han, Hui Wu, Shengguo Xue*

School of Metallurgy and Environment, Central South University, Changsha Hunan
Email: [*sgxue@csu.edu.cn](mailto:sgxue@csu.edu.cn), [*sgxue70@hotmail.com](mailto:sgxue70@hotmail.com)

Received: May 28th, 2015; accepted: Jun. 16th, 2015; published: Jun. 19th, 2015

Copyright © 2015 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

Abstract

Manganese content in the local rice and the rice dietary of residents in a metallurgy area were investigated on-the-spot. Based on the Monte-Carlo uncertainty analysis of the risk model for health hazard recommended by the USEPA, Mn carcinogenic risk of different populations was evaluated with Crystal ball software. All the results showed that manganese might not be one of the risk factors for an adult exposed through rice consumption.

Keywords

Rice, Manganese (Mn), Health Risk Assessment, Metallic Mining Area

金属矿冶区稻米锰的健康风险分析

吴雪娥, 韩福松, 邬 卉, 薛生国*

中南大学冶金与环境学院, 湖南 长沙

Email: [*sgxue@csu.edu.cn](mailto:sgxue@csu.edu.cn), [*sgxue70@hotmail.com](mailto:sgxue70@hotmail.com)

收稿日期: 2015年5月28日; 录用日期: 2015年6月16日; 发布日期: 2015年6月19日

摘要

通过对湖南某金属矿冶区稻米锰含量和当地居民膳食结构进行系统调查, 考察调查区域的农产品安全现

*通讯作者。

状。依据美国EPA推荐的非致癌污染物健康风险模型进行Monte-Carlo不确定性分析,采用Crystal ball软件对研究区域居民膳食结构进行模拟分析,评估不同人群长期食用当地大米的锰致癌风险。结果表明:该矿冶区居民食用当地大米,锰的健康风险较低,但应警惕儿童易感人群的锰健康风险。

关键词

稻米, 锰, 健康风险分析, 金属矿冶区

1. 引言

有色金属工业在促进当地经济发展的同时,也带来了一系列严重的环境问题[1]。矿山开采排放的酸性废水和尾矿中的Cu、Zn、Pb、As和Cd等金属元素进入环境介质,导致矿区周边土壤重金属污染日趋严重,严重影响当地农作物的产量和品质,进而通过食物链途径威胁着人体健康[2][3]。水稻是目前世界上(尤其是东南亚)最主要的粮食作物之一,也是重金属通过食物链进入人体的主要途径。因此,金属矿冶区稻米的健康风险问题备受环境科研人员的关注[4]。有研究表明,环境污染严重地区的农田种植的稻米重金属含量超标严重较高,当地居民长期食用自产大米容易导致重金属慢性中毒[5]。雷鸣等调查湖南稻米中Pb、Cd和As含量,发现铅锌矿区的稻谷样品中的As、Pb和Cd含量较高,而市场销售的大米Cd污染尤其严重[6]。锰是人类必需的微量元素之一,然而摄入过量则引起锰中毒。体内锰过量主要影响神经系统,导致类帕金森氏综合症,也会影响生殖系统、免疫系统和心血管系统[7]。国内外科研人员对铅、锌、镉、砷等重金属元素的健康风险研究较多,而对金属矿冶区稻米的锰健康风险关注相对较少。

湖南省稻谷产量占全国总产量的12.7%,大米是当地居民膳食结构的主要品种[8]。对于大多数居民来说,大米可能是重金属进入人体的主要途径,稻米的食物安全问题直接关系到当地居民的公共安全和身心健康[9][10]。本文通过对湖南某金属矿冶区开展居民膳食结构和当地种植大米的锰含量状况进行系统调查,评估不同人群长期食用当地大米的锰致癌风险,为掌握当地稻米食品安全状况、保障居民饮食安全、合理调控健康风险和农作物种植结构调整提供科学依据和决策参考。

2. 研究方法

2.1. 调查区域概况

湖南某矿冶区的有色金属资源丰富,尤以沉积碳酸锰矿及其次生氧化锰矿称著,矿区开采冶炼已有90多年历史,素有“中国锰都”之称,该矿冶区水稻种植以单季稻为主。以该矿冶区主要居民区为中心,采用随机抽样调查方式,开展居民膳食结构调查。调查内容包括居民性别、年龄、体重、一年有多少天以大米(或米粉)为主食以及一天食用大米(或米粉)的量。其中,儿童的膳食情况由其家长提供。

2.2. 样品采集与测定

选择金属矿冶区周边农田土壤为调查区域,采用网格布点法,500 m × 500 m 设置一个采样单元。将未脱壳的稻谷在实验室手工脱壳,米粒置于烘箱中75℃~80℃烘干,将大米样磨成粉末,再将样品置于烘箱中于75℃~80℃继续烘干,混匀装袋贮存备测。大米Mn含量采用逆王水(HNO₃:HCl = 3:1)消解体系-电感耦合等离子光谱发射光谱仪(美国Perkin Elmer公司,Optima5300DV)进行总量测定。分析过程中加入国家标准物质进行质量控制。

2.3. 健康风险评价

健康风险评价(Health Risk Assessment, HRA)将环境污染与人体健康相联系,定量描述环境中有毒有

害物质对人体健康安全造成损害的风险[11]。根据美国环境保护局(Environment Protection Agency, EPA)提出的非致癌污染物所致健康危害的风险模型为:

$$R_{iR}^n = (D_{ig} \times 10^{-6}) \div (RfD_{ig} \times 73) \tag{1}$$

$$D_{ig} = C \times IR \div BW \tag{2}$$

式(1)中, R_{iR}^n 为非致癌污染物 i 经食入途径产生的平均致癌个人年风险(a^{-1}); D_{ig} 为非致癌物经食入途径的单位体重日均暴露剂量($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$); RfD_{ig} 为非致癌污染物 i 经食入途径的调整剂量($mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$), Mn 的参考剂量为 $0.02 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$; 73 为平均寿命(a)(按照 2011 年《世界卫生组织统计资料》统计中国人均预期寿命 73 岁来计算)。式(2)中, C 为大米的 Mn 的含量, $mg \cdot kg^{-1}$; IR 为大米日均摄入量, kg; BW 为人体重, kg。

对于非致癌性化学污染物, 英国皇家协会、瑞典环境保护局及荷兰建设环境部等[12]推荐的化学污染物对人体健康危害的最大可接受水平为 10^{-6} a^{-1} , 因此以 10^{-6} a^{-1} 作为非致癌性化学污染物的最大可接受年风险水平。

应用基于 Monte Carlo 模拟技术的 Crystal Ball 软件对大米 Mn 的致癌个人年风险进行模拟, 每次模拟过程循环次数均选择 10,000 次。在 Monte Carlo 模拟过程中, 由于 100% 的百分位数是个理论极值, 因此在风险评估过程中, 通常采用均值、95%、97.5% 和 99.5% 高暴露位点作为指标进行分析[13]。

2.4. 数据处理

通过 Microsoft Office Excel 2010 建立数据库录入数据, 采用 SPSS 20.0 软件进行统计分析, 运用 Crystal Ball 软件对研究区域居民大米锰摄入量进行健康风险评价。

3. 结果与分析

3.1. 矿冶区稻米的锰含量状况

研究区域农田共采集 57 个稻米样品, 其中, 只有两个稻米样品未检出锰, 检出率达 96.5%。稻米含量范围为 ND-100.3 mg/kg , 平均值为 30.4 mg/kg , 中位数为 24.0 mg/kg [稻米锰含量经单样本 Kolmogorov-Smirnov 检验呈非正态分布($P < 0.01$)]。国家标准限值中未给出大米中 Mn 的限值标准, 因此不能评判大米样品中 Mn 的超标率。大米样品中 Mn 的含量分布如图 1, 可知, 有 14 个样品超过 50 mg/kg , 将近 25%。大米 Mn 含量较高, 主要是由于锰矿开采冶炼过程中产生的“三废”排放, 重金属元素通过大气沉降和地表径流进入土壤环境, 导致水稻地上部分锰含量升高。

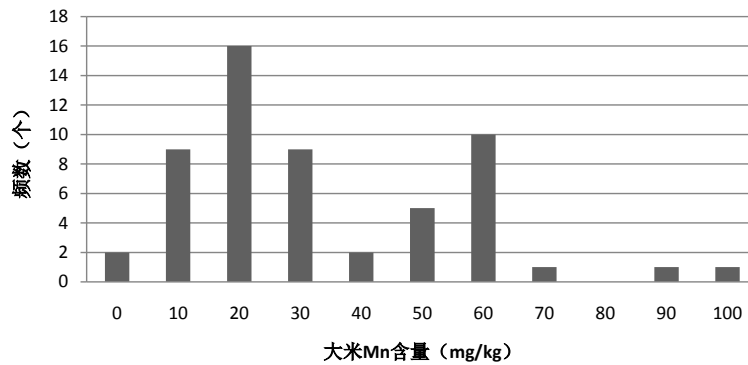


Figure 1. The frequency of Mn content in rice samples

图 1. 稻米样品的锰含量分布

3.2. 不同人群膳食的大米摄入量

根据当地居民膳食结构调查结果,结合《中国居民膳食营养素参考摄入量》[14],将调查人群按照年龄、性别分为2~7、8~12岁儿童组,20~50岁男、女性组,51~65岁男、女性组,65岁以上男、女性组共8组。本次调查获得668名居民,年龄分布范围2~86岁。由于调查中13~19岁年龄组的样本数较少,因此不对其进行分析。调查人群中,儿童84人,占调查总人数的14.3%;成人584人,占调查总人数的87.3%,男性、女性各292人。调查问卷统计结果见表1。其中,20~50岁成年人群是当地社会经济发展中的主要从业人群,人数较多,约占调查人数的50%。

该地区居民全年均以大米为主要食物种类,不同年龄性别组的日均大米摄入量差异较大。20~50岁年龄组男性大米食用量最大,2~7岁儿童最小。同年龄层中,成年男性的膳食量远高于成年女性(表2)。其大小顺序为:20~50岁男性 > 65岁以上男性 > 50~65岁男性 > 50~65岁女性 > 65岁以上女性 > 20~50岁女性 > 8~12岁儿童 > 2~7岁儿童。成年男性中,随着年龄增加,其大米食用量逐渐减少,这可能与成年男性的工作强度和体力消耗相关;而成年女性中20~50岁女性的大米摄食量则低于50~65岁女性,这可能与年轻女性注重自身形象、节食减肥、体力劳动较少相关。

在调查人群中,成年人的日均大米摄入量为0.293 kg,其中男性的日均大米摄入量为0.333 kg,女性的日均大米摄入量均值为0.253 kg,男性和女性之间差异显著(经独立样本Kolmogorov-Smirnov检验呈非正态分布, $P < 0.01$,存在显著差异)。成年人群按照年龄不同分为3个群组,其中,成年男性的大米膳食摄入量随年龄增加有减少的趋势(经独立样本Kolmogorov-Smirnov检验呈正态分布, $P > 0.01$),成年女性的大米膳食摄入量随年龄增加波动较大(经独立样本Kolmogorov-Smirnov检验呈正态分布, $P > 0.01$)。

3.3. 不同人群食用大米的锰健康风险

基于Monte-Carlo不确定性分析,通过采集有限的样本来预测总体的情况,运用Crystal ball软件对锰的致癌风险进行分析。根据研究区域稻米的Mn含量和非致癌污染物所致健康危害的风险模型,对每一个浓度对应的平均致癌年风险进行计算,对所有风险值的概率分布进行分析,得到金属矿冶区居民通过食用当地大米摄入Mn的不同年龄/性别群组的个人平均致癌年风险模拟结果(图2)。

Table 1. Characteristic of different populations in investigated area

表1. 调查区域不同人群分布特性

组别	2~7岁儿童	8~12岁儿童	20~50岁男性	20~50岁女性	50~65岁男性	50~65岁女性	>65岁男性	>65岁女性
人数	52	32	164	182	78	64	50	46
BW/kg	20.7	32	66.7	54	61.8	58.2	62.1	53.5
占比/%	7.4	4.6	23.4	26.0	11.1	9.1	7.1	6.6

Table 2. Per capita rice intake of different populations in investigated area (Unit: kg/day)

表2. 调查区域不同人群的人均大米摄入量(单位: kg/天)

	2~7岁儿童	8~12岁儿童	20~50岁男性	20~50岁女性	50~65岁男性	50~65岁女性	>65岁男性	>65岁女性
最小值	0.05	0.1	0.125	0.1	0.1	0.1	0.075	0.075
最大值	0.45	0.35	1.0	0.5	0.75	0.6	0.5	0.4
均值	0.12	0.16	0.38	0.24	0.33	0.32	0.29	0.20
中位数	0.10	0.15	0.28	0.20	0.30	0.30	0.28	0.19
Std	0.095	0.057	0.25	0.13	0.15	0.15	0.14	0.093

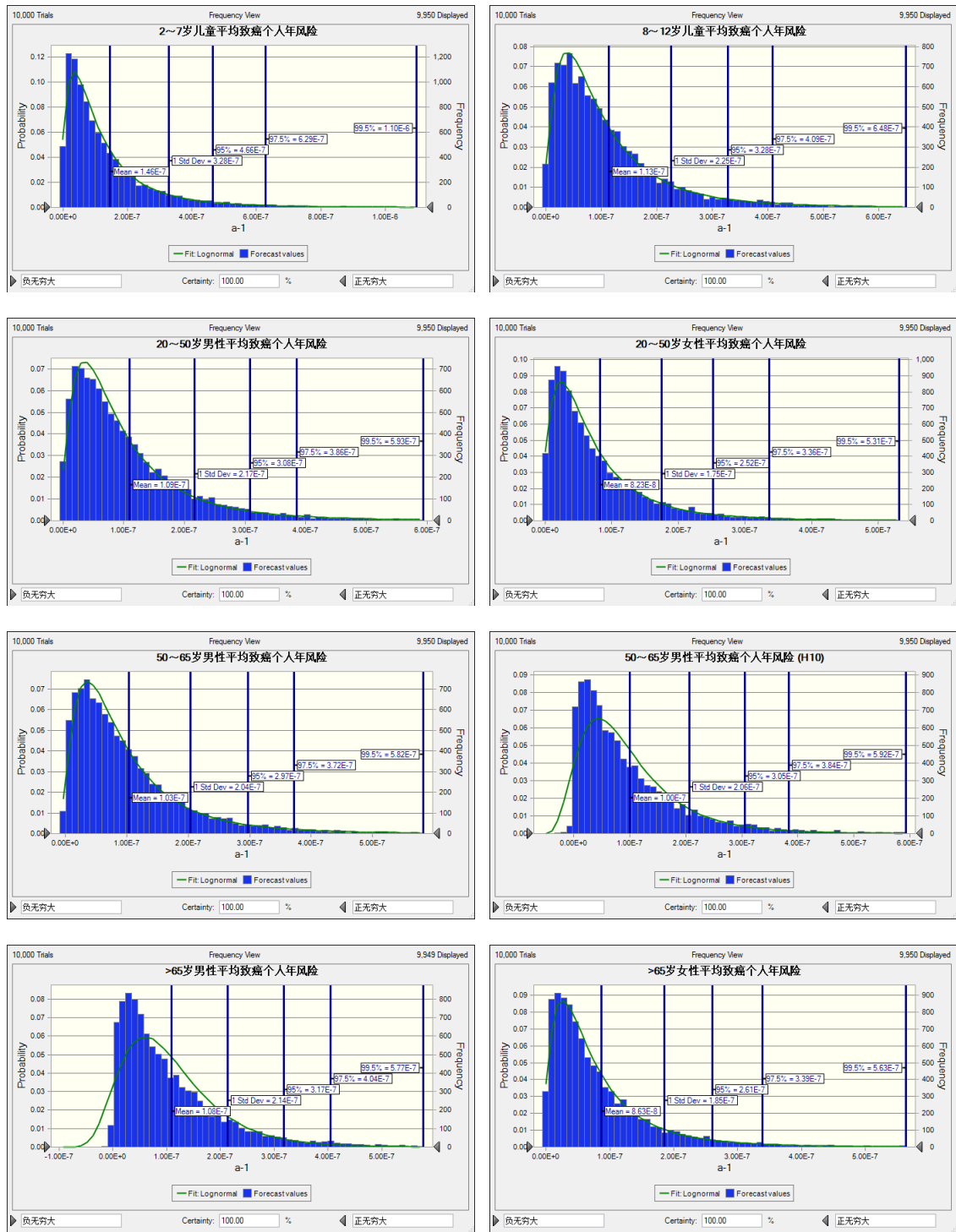


Figure 2. Probability distribution of average carcinogenesis personal annual risk of rice Mn intake of different age-sex populations

图 2. 不同年龄性别人群大米摄入的平均致癌个人年风险概率分布

由图 2 可知，2~7 岁儿童、8~12 岁儿童、20~50 岁男性、20~50 岁女性、51~65 岁男性、51~65 岁女性、65 岁以上男性、65 岁以上女性的平均致癌个人年风险均值为 $1.46E-7$ 、 $1.13E-7$ 、 $1.09E-7$ 、 $8.23E-8$ 、

1.03E-7、1.00E-7、1.08E-7、8.63E-8 a⁻¹，均未超过最大可接受年风险水平(10⁻⁶ a⁻¹)，表明研究区域居民食用当地自产大米摄入 Mn 健康风险较低。然而，2~7 岁儿童的平均致癌个人年风险最大，8~12 岁儿童健康风险也不容忽视，65 岁以上女性的平均致癌个人年风险相对较低。不同人群平均致癌个人年风险大小顺序为：2~7 岁儿童 > 8~12 岁儿童 > 20~50 岁男性 > 65 岁以上男性 > 50~65 岁男性 > 50~65 岁女性 > 65 岁以上女性 > 20~50 岁女性。除了儿童外，成年男性、女性的致癌个人年风险与人均大米摄入量大小一致，说明同一重金属的致癌风险，除了大米中的重金属含量，也与大米摄入量紧密相关。但是 2~7 岁儿童在高暴露点位 99.5% 上的年风险大于 10⁻⁶ a⁻¹，说明食用当地大米对 2~7 岁儿童存在 Mn 健康风险，应特别注意儿童食用当地大米产生的锰健康风险。

4. 结论

1) 调查区域人群膳食结构中日均大米摄入量：20~50 岁男性 > 65 岁以上男性 > 50~65 岁男性 > 50~65 岁女性 > 65 岁以上女性 > 20~50 岁女性 > 8~12 岁儿童 > 2~7 岁儿童。

2) 调查区域农田生产稻米锰含量较高，平均值为 30.4 mg·kg⁻¹，约 25% 大米锰含量超过 50 mg·kg⁻¹。

3) 调查区域人群的致癌个人年风险均未超出最大可接受年风险水平，大米膳食摄入 Mn 的健康风险较低；但 2~7 岁儿童高暴露点位存在致癌风险。

基金项目

国家公益性(环保)行业科研专项(201109056)。

参考文献 (References)

- [1] Sheoran, A.S. and Sheoran, V. (2006) Heavy metal removal mechanism of acid mine drainage in wetlands: A critical review. *Minerals Engineering*, **19**, 105-116.
- [2] 刘志彦, 田耀武, 陈桂珠 (2010) 矿区周围稻米重金属积累及健康风险分析. *生态与农村环境学报*, **26**, 35-40.
- [3] Bhuiyan, M.A.H., Parvez, L. and Islam, M.A. (2010) Heavy metal pollution of coal mine-affected agricultural soils in the northern part of Bangladesh. *Journal of Hazardous Materials*, **173**, 384-392.
- [4] Abedinm, J., Feldmann, J. and Meharg, A.A. (2002) Uptake kinetics of arsenic species in rice plants. *Plant Physiology*, **128**, 1120-1128.
- [5] Patra, M., Bhowmik, N. and Bandopadhyay, B. (2004) Comparison of mercury, lead and arsenic with respect to genotoxic effects on plant systems and the development of genetic tolerance. *Environmental and Experimental Botany*, **52**, 199-223.
- [6] 雷鸣, 曾敏, 王利红, Williams, P., 孙国新 (2010) 湖南市场和污染区稻米中 As、Pb、Cd 污染及其健康风险评价. *环境科学学报*, **30**, 2314-2320.
- [7] 薛生国, 周晓花, 刘恒 (2011) 垂序商陆对污染水体重金属去除潜力的研究. *中南大学学报(自然科学版)*, **42**, 1156-1160.
- [8] China STAT (2007) China statistical yearbook-2007. <http://www.cajcd.edu.cn/pub/wml.html>
- [9] García, R.L., Leyva, P.J. and Jara, M.M.E. (2007) Content and daily intake of copper, zinc, lead, cadmium, and mercury from dietary supplements in Mexico. *Food and Chemical Toxicology*, **45**, 1559-1605.
- [10] Raghunath, R., Tripathi, R.M. and Suseela, B. (2006) Dietary intake of metals by Mumbai adult population. *Science of the Total Environment*, **356**, 62-68.
- [11] Sipter, E. (2008) Human health risk assessment of toxic metals. Semmelweis Egyetem, Hungary, 82.
- [12] 车飞 (2009) 辽宁省沈抚污灌区多介质重金属污染的人体健康风险评价. 硕士论文, 中国环境科学研究院, 北京.
- [13] 段文佳 (2011) 水产品中甲醛的暴露评估与风险管理研究. 硕士论文, 中国海洋大学, 青岛.
- [14] 中国营养学会 (2000) 中国居民膳食营养素参考摄入量. 中国轻工业出版社, 北京.