

华东某铀矿区稻米中放射性核素铀污染特征及健康风险评价^{*1}

向龙¹ 刘平辉^{1,2*} 杨迎亚¹

(1. 东华理工大学地球科学学院, 江西 南昌 330031;

2. 东华理工大学核资源与环境教育部重点实验室, 江西 南昌 330031)

【摘要】:为查明华东某铀矿区稻米中放射性核素铀污染现状及健康风险问题,测定铀矿区和对照区共136件稻米样品中放射性核素U含量,采用单因子污染指数法评价放射性铀污染,并开展U元素健康风险评价。结果表明:(1)研究区稻米中U含量平均值为 $1.46 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$,各亚区稻米中U含量平均值从大到小顺序为:开采矿井区>水冶场区>含矿未采区>废弃矿井区>江西省背景值>对照区;(2)稻米单因子污染指数为1.25,属于轻度污染。其中,开采矿井区和水冶厂为轻度污染,废弃矿井区和对照区未受污染;(3)首次计算提出江西省大米U元素致癌风险最大斜率系数为 $1.04 \times 103 (\text{d} \cdot \text{kg}) \cdot \text{mg}^{-1}$ 。各亚区稻米中成人和儿童致癌风险指数高低顺序均为:开采矿井区>水冶厂>含矿未采区>废弃矿井区>对照区。儿童直接饮食稻米具有一定的致癌风险;开采矿井区和水冶厂区的成人存在一定致癌风险,含矿未采区和废弃矿井区以及对照区均无致癌风险。

【关键词】:铀矿区; 稻米; 铀污染; 风险评价; 华东

【中图分类号】:Q95 **【文献标识码】:**A **【文章编号】:**1004-8227(2017)03-0419-09

DOI: 10.11870/cjlyzyyhj201703012

铀矿开采除了一般矿山所具有的对环境的影响外,还有它本身的特殊性,这就是铀矿石和“三废”(废水、废气、废渣)都具有放射性和辐射危害^[1]。这些废石和“三废”均含有大量的放射性物质和重金属,在降雨冲刷、风化作用等自然因素和矿石运输、选冶等人为因素的综合作用下,容易对矿区周围环境造成放射性危害。国内外对重金属污染评价报道相对较多,且集中于对城市土壤^[2],矿区河流水

¹ 收稿日期:2016-06-27; 修回日期:2016-12-13

基金项目:国家自然科学基金项目(41261081) [National Natural Science Foundation of China (Grant No.41261081)]; 江西省研究生创新基金项目(YC2015-S268) [Graduate Innovation Fund Project of Jiangxi Province (YC2015-S268)]; 江西省自然科学基金(2011ZBAB203009) [Natural Science Foundation of Jiangxi Province (2011ZBAB203009)]

作者简介: 向 龙(1990~),男,硕士研究生,主要研究方向为环境地球化学。E-mail:2636303582@qq.com

***通讯作者** E-mail:pinghui_liu@126.com

系和沉积物重金属环境效应^[3,4]等的研究,而对铀矿区放射性核素污染评价的研究较少。谢玲琳等^[5]研究发现湖南七一五铀矿的开采和冶炼导致铀、钍、镭等放射性元素与砷元素对环境(特别是对水土环境)的污染和破坏,且直接影响到矿山周边居民的正常生产与生活;广东下庄铀矿和伴生放射性矿物资源(包括稀土矿、钽铌矿和铅锌矿)也存在类似污染问题^[6,7]。喀麦隆、葡萄牙、匈牙利等国研究人员对铀矿区开展了放射性核素的分布调查,研究结果表明长期以来不合理的铀矿开采与相对落后的水冶技术致使矿区周围居民年接收核辐射总剂量高出世界平均水平2倍多;铀矿区附近居民血液中白细胞的DNA受到明显破坏,有较高的致癌风险;铀矿开采对周围生态系统产生了环境污染效应^[8~10]。铀矿区内的放射性核素铀可能通过土壤-水稻系统而在稻米中富集,并通过食物链和直接食用而进入人体,进而损害人的肝、肾和生殖系统,使内分泌系统紊乱并能引发癌症^[11]。近年来,水稻食品安全问题一直以来备受学者关注^[12],有关重金属在土壤-水稻系统中积累转运的研究很多^[13,14],但是对于铀矿区稻米中放射性铀污染报道较少。

研究区是我国迄今为止发现的最大规模火山岩型铀矿床,地处大型塌陷式火山盆地中,已有超过半个世纪铀矿石开采和选冶历史。矿区内有近10万人居住,除少量铀矿生产工作人员外,主要为农民,矿区主要农作物为水稻,水稻可以一年两熟到三熟。已有研究表明,铀矿区水稻土壤和地表水中放射性核素U含量较高,采矿区和水冶厂区受到不同程度的铀污染^[15,16]。铀矿区55件稻米样品Pb含量均低于国家粮食标准^[17],仅有10.53%的稻米样品中Cd含量超出国家粮食标准^[18]。59件稻米样品中67.80%的Cr含量超出国家标准^[19]。因而矿区以稻米为主食的居民健康可能已受到常规重金属Cd、Cr的影响。本文在已有研究基础上,重点对矿区稻米中放射性核素铀进行调查,并开展健康风险评价,对加强研究区粮食质量安全和保护公民身体健康具有重要意义,也为整个矿区环境治理工作提供基础数据。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于江西省抚州市乐安县与崇仁县交界处,115°45′~116°10′E,27°25′~27°40′N。地貌特征属于构造侵蚀-剥蚀的中低山、丘陵类型。最高山峰海拔为1219 m,相对高差400~1000 m。属亚热带湿润季风气候区、四季分明、日照充足、雨量充沛。年日照时数1579 h,年平均气温15.9℃,无霜期达240 d,年均降雨量为1713 mm。植被发育,地表水系较发达,地下水丰富。区域交通条件便利,公路、铁路通达研究区,属经济欠发达地区。

1.2 样品采集与分析

结合刘平辉等^[15]土壤采样点,根据矿区矿井分布、开采现状,矿石选冶活动等因素,参考区内地形、道路、稻田分布等实际情况布点,将研究区划分为四个采样亚区,如图1所示:含矿未采区、开采矿井区、废弃矿井区、水冶场区。用四分法采样,以保证取样的科学性;同时尽可能使稻米取样点与土壤取样点重合。于2014年7月中旬至8月期间,即铀矿区中季稻成熟时节共计采取稻谷样132件,在同一成熟期内采集稻米样可有效减少水稻品种差异及熟制对U含量可能产生的影响,并在距铀矿区直线距离约60 km的邻县采集4件稻米样作为对照。每个点采集约1 kg稻谷,作好记录,带回室内晾晒、烘干并脱粒送检测试。

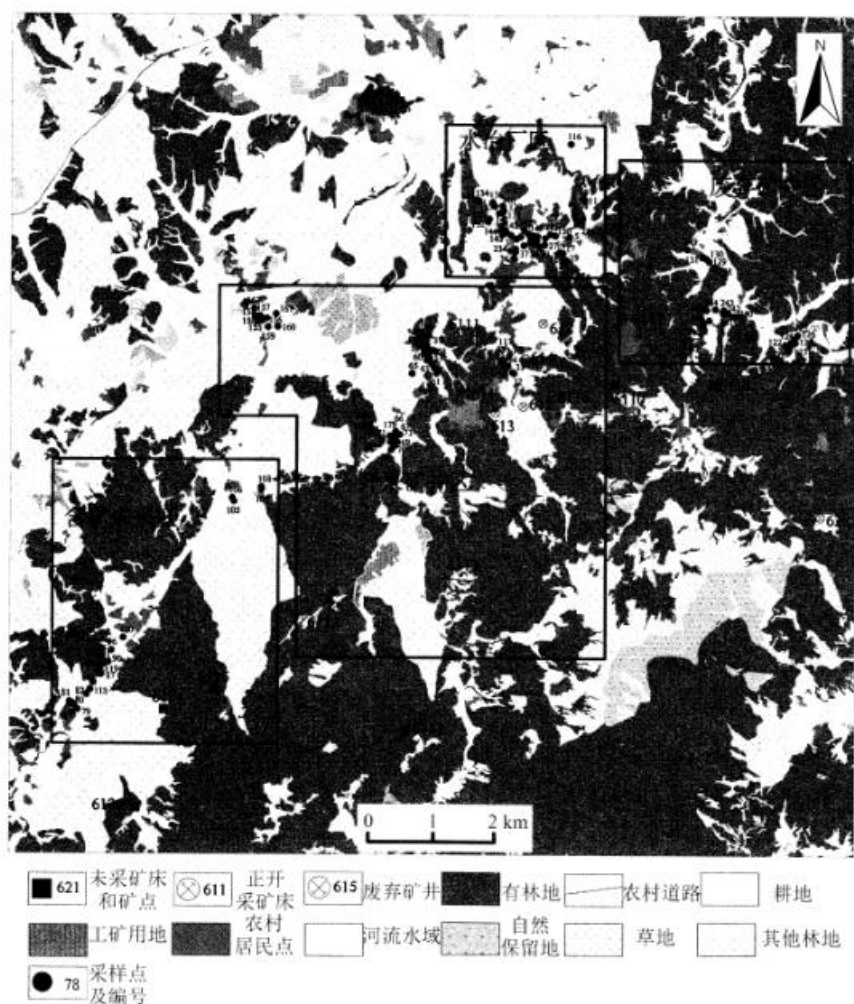


图1 研究区稻米取样图
Fig.1 Map of Rice Sampling in the Study Area

样品分析由国土资源部武汉矿产资源监督检测中心完成。X-Series II 电感耦合等离子体质谱仪(美国 Thermofisher Scientific 公司)所有器皿均用 20%硝酸浸泡,用高纯水冲洗备用。各单元标准溶液均购自国家标准物质中心;标准参考物质:GBW10010 (GSB-1) 大米成分标准物质, GBW10045 (GSB-23) 湖南大米成分标准物质均购自国家标准物质中心。

1.3 研究方法

1.3.1 稻米中铀污染评价方法

选取江西省大米 U 含量背景值^[20]和研究区内含矿未采区稻米中 U 含量平均值作为稻米中 U 元素单因子污染评价标准^[21], 并比较不同评价标准下铀矿区稻米污染状况。含矿未采区样点距目前没有开采活动的 6125、6124、620 及 621 号矿床、矿点较远, 该区 20 个样点局部呈北东—南西分布。到目前为止无任何采矿活动, 能较好地反映铀矿区稻米中 U 含量的本底值, 代表性较强。单因子污染评价法计算公式为:

$$P_i = C_i/S_i \quad (1)$$

式中: P_i 为稻米中 i 污染物的单因子污染指数; C_i 为稻米中污染物 i 实测含量($\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$); S_i 为稻米中污染物 i 评价标准($\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$)。单因子指数分级标准见表 1。

表 1 单因子指数分级标准

Tab.1 Single Factor Index Valuation Criteria

P_i	$P_i \leq 1$	$1 < P_i \leq 2$	$2 < P_i \leq 3$	$P_i > 3$
污染程度	未受污染	轻度污染	中度污染	重度污染

1.3.2 稻米摄入的健康风险评价方法

环境介质中重金属可通过手-口直接摄入、呼吸吸入、皮肤接触吸入三种暴露途径进入人体^[22], 本研究仅设定农产品通过手-口直接摄入的暴露途径, 并采用 EPAMMSOILS 模型中食物摄入的暴露评价方程^[23], 计算重金属平均日摄入量:

$$\text{CDI} = (C \times \text{IngR} \times \text{EF} \times \text{ED} \times \text{BA}) / (\text{BW} \times \text{AT}) \quad (2)$$

式中:CDI 为污染物经谷类产品摄入的平均日摄取量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$)。参照 US EPA 暴露因子手册和经实地调查, 其他具体参数及解释见表 2。

表 2 评价模型参数

Tab.2 Parameters of Assessment Models

评价参数	参数解释	成人参考值	儿童参考值	数据来源
C	污染物含量($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)	实测含量	实测含量	本研究
IngR	稻米的日摄入量($\text{kg} \cdot \text{d}^{-1}$)	0.50	0.30	实地调研
BW	受体体重(kg)	70	16	文献 ^[24]
ED	暴露时间(a)	30	10	文献 ^[24]
BA	生物可利用分数		1%	文献 ^[25]
EF	暴露频率($\text{d} \cdot \text{a}^{-1}$)		365	文献 ^[25]
AT	平均接触时间(a)		$\text{ED} \times 365$	文献 ^[25]

农产品健康风险评价模型包括重金属非致癌风险模型和致癌风险模型^[26, 27]:

(1) 农产品摄入的非致癌健康风险指数计算公式如下:

$$HQ_i = CDI/RfD_i \quad (3)$$

$$HI = \sum_{i=1}^n HQ_i \quad (4)$$

式中: HQ_i 表示重金属 i 单项非致癌风险指数; HI 表示重金属综合非致癌风险指数; RfD_i 为重金属 i 暴露参考剂量, 表示在单位时间, 单位体重摄取的不会引起人体不良反应的污染物最大量 ($\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$)。 HQ_i 或 $HI > 1$ 表明该污染物可引起人体的致癌风险, 而致癌风险指数越大则表明该污染物对人体健康风险越大; HQ_i 或 $HI < 1$ 表明该污染物不会引起人体的致癌风险。

(2) 农产品摄入的致癌健康风险指数计算公式如下:

$$CR_i = CDI \times SF_i \quad (5)$$

$$TCR = \sum_{i=1}^n CR_i \quad (6)$$

式中: CR_i 表示重金属 i 的单项致癌风险指数, CDI 为污染物经谷类产品摄入的平均日摄入量 ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$), SF_i 表示人体暴露于一定剂量某种污染物下产生致癌效应的最大斜率系数 ($\text{d} \cdot \text{kg}) \cdot \text{mg}^{-1}$ 。 CR_i 低于美国环保局 (EPA) 推荐的区间 $10^{-6} \sim 10^{-4}$ (人体可耐受的致癌风险) 则不具备致癌风险。 TCR 表示重金属综合致癌风险指数; 若 TCR 低于区间 $10^{-6} \sim 10^{-4}$ (即每 1 万~100 万人中可能有 1 个癌症患者), 则认为该物质不具备致癌风险。 本文采用 USEPA 推荐的计算模型方法, 计算符合江西省实际的污染物经谷类产品的平均日摄入量 (CDI), 利用相对严格的国际辐射防护委员会 (ICRP) 推荐可接受风险水平, 通过 $SF_i = CDI/CR_i$ 计算出江西省稻米中 U 元素的致癌斜率系数 (SF) 为 $1.04 \times 10^3 (\text{d} \cdot \text{kg}) \cdot \text{mg}^{-1}$ (见表 3), 该 SF 值可作为评价铀矿区稻米中 U 元素致癌风险的最大斜率系数。

表 3 江西省 U 元素的 SF 值

Tab.3 SF Value of U Element in Jiangxi Province

元素	$CDI (\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1})$	CR_i	$SF_i ((\text{d} \cdot \text{kg}) \cdot \text{mg}^{-1})$
U	4.79×10^{-8}	5×10^{-5}	1.04×10^3

2 结果与讨论

2.1 研究区稻米中放射性核素铀含量分析

各亚区稻米中 U 含量特征统计及分析结果见表 4, 研究区 132 件稻米样品放射性核素 U 含量最低值为 $0.28 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 最高值为 $7.90 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。平均含量为 $1.46 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 分别是江西省大米 U 含量背景值和对照区大米中 U 含量平均值的 2.18 倍和 2.43 倍。132 件稻米样品超标率分别为 84.09%和 85.61%。

表 4 各区域稻米中铀含量以及变异系数
Tab.4 Uranium Content and Coefficient of Variation in Rice

区域	样本	平均值($\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$)	最大值($\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$)	最小值($\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$)	标准差	变异系数/%
整个研究区	132	1.46	7.90	0.28	1.11	76.03
含矿未采区	20	1.17	2.38	0.45	0.47	40.17
开采矿井区	46	1.81	7.90	0.35	1.32	72.93
废弃矿井区	20	0.96	2.28	0.28	0.56	58.33
水冶厂区	46	1.46	6.40	0.30	1.18	80.82
对照区	4	0.60	0.75	0.30	0.20	33.33
江西省大米背景值		0.67				

其中, 含矿未采区 20 件稻米样品放射性核素 U 含量最低值为 $0.45 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 最高值为 $2.38 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 平均含量为 $1.17 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 分别是江西省大米背景值和对照区 U 含量平均值的 1.74 倍和 1.95 倍。该亚区虽有 6125、6124、620 及 621 号矿床或矿点, 但目前均未开采, 变异系数也较小。已有研究表明该区土壤中 U 含量平均值为 $6.02 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 分别是江西省土壤中 U 含量背景值和国家土壤中 U 含量背景值的 1.37 倍和 1.99 倍^[15]。由于水稻籽实中重金属主要来源于土壤、大气、灌溉水^[28]等, 其中起主要作用的是土壤和灌溉水。该区所取稻样 U 含量高于江西省背景值可能是由于该区土壤和地表水 U 含量较高。因此, 为定量评价采矿活动是否对研究区稻米的 U 含量造成影响, 本文选取含矿未采区稻米 U 含量平均值作为单因子指数的评价标准。

开采矿井区 46 件稻米样品放射性核素 U 含量最低值为 $0.35 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 最高值为 $7.90 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。平均含量为 $1.81 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 分别是含矿未采区稻米中 U 含量平均值、江西省大米 U 含量背景值和对照区大米中 U 含量平均值的 1.55 倍、2.70 倍和 3.02 倍。以前述三个含量值为参照, 46 件稻米样品超标率分别为 67.39%、97.83%和 97.83%。稻米中 U 含量最高值区域位于 6122 号采矿井附近, 611 号矿井附近也有高值出现, 可以认为开采矿井区稻米中 U 含量主要受到采矿活动影响。

废弃矿井区 20 件稻米样品放射性核素 U 含量最低值为 $0.28 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 最高值为 $2.28 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。平均含量为 $0.96 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 略低于含矿未采区稻米中 U 含量平均值。分别是江西省大米 U 含量背景值和对照区大米中 U 含量平均值的 1.43 倍和 1.60 倍, 以前述两个含量值为参照, 20 件稻米样品超标率分别为 60%和 65%, 且有 35%的样品 U 含量超过含矿未采区稻米中 U 含量平均值。在一定范围内, 水稻籽实中重金属的含量与土壤中重金属的含量呈正相关^[29]。稻田土壤中 U 含量随着土壤深度的增加含量逐渐降低, 且表层土壤 U 含量约为深部各层土壤的 2~6 倍, 说明 U 元素在土壤中的迁移距离短, 富集在表层^[30]。由于表层土壤受到人为耕作及灌溉影响导致土壤扰动频繁, 接触氧气机会增多, 表生条件下 U 元素通常以 U^{6+} 存在并形成, 容易形成易溶于水的络合物, 因而具有较强迁移能力^[16]。稻田又需要经常灌溉, U 元素容易随径流流走, 也会导致表层土壤中 U 含量分布不均匀, 故该亚区稻米中 U 平均含量较低, 且主要集中在河流中游河段的稻田中。表明采矿活动结束带来的铀源供应停止和人为耕作活动是废弃矿井区稻米 U 含量特征的主要原因。

水冶厂区 46 件稻米样品放射性核素 U 含量最低值为 $0.30 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 最高值为 $6.40 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 平均含量为 $1.46 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 分别是含矿未采区稻米中 U 含量平均值、江西省大米 U 含量背景值和对照区大米中 U 含量平均值的 1.25 倍、2.18 倍和 2.43 倍。以前述 3 个含量值为参照, 46 件稻米样品超标率分别为 50%、78.26%和 80.43%。该区人口相对稠密, 稻米中放射性核素 U 含量事关该区广大民众的身心健康和切身利益, 影响因素复杂。研究表明该亚区地表水中 U 含量平均值为 $51.45 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 高于其他亚区, 且单因子污染指数评价结果为重度污染^[16]。区内敞口无后挡板自卸式重型矿石运输汽车造成的矿石洒落及水冶厂排水系统年久失修造成选冶废水直接渗漏, 导致土壤积累 U 含量较高的废水并处于还原状态中, 从而使生长的水稻 U 含量异常升高。该区稻米 U 含量整体偏高的特征是废水—土壤—水稻生态链在人为选冶、运输等影响下综合作用的结果。

2.2 研究区稻米中放射性核素铀污染评价

采用江西省稻米中 U 含量背景值以及含矿未采区稻米中 U 含量平均值为标准进行污染程度评价, 结果见表 5, 结果表明:

表 5 不同评价标准下稻米中铀污染单因子指数评价结果
Tab.5 Single Factor Index Evaluation Results of Rice in Study Area

区域	P_1			P_2		
	平均值	最大值	最小值	平均值	最大值	最小值
整个研究区	2.18	11.79	0.42	1.25	6.75	0.24
开采矿井区	2.70	11.79	0.52	1.55	6.75	0.30
废弃矿井区	1.43	3.40	0.42	0.82	1.95	0.24
水冶厂区	2.07	9.55	0.45	1.19	5.47	0.26
对照区	0.90	1.12	0.45	0.51	0.64	0.26

注: P_1 表示以江西省大米中铀含量背景值为评价标准; P_2 表示以含矿未采区平均铀含量为评价标准。

(1) 以江西省大米中 U 含量背景值为评价标准表明研究区稻米中 U 含量的单因子污染指数均值为 2.18, 属于中度污染。除对照区未达到污染水平外, 其他三个亚区为轻度或中度污染, 部分样品达到重度污染水平, 对照区部分稻米样点达到轻度污染水平。三个亚区稻米中铀污染单因子指数均值高低顺序为: 开采矿井区>水冶场区>废弃矿井区;

(2) 以含矿未采区稻米中 U 含量平均值为评价标准表明整个研究区稻米中 U 含量的单因子污染指数均值为 1.25, 属于轻度污染。除对照区稻米样点外, 其他 3 个亚区均有部分样品单因子指数达到轻度或重度污染水平。3 个亚区稻米中 U 元素污染单因子指数均值高低顺序为: 开采矿井区>水冶场区>废弃矿井区; 其中, 开采矿井区和水冶厂区单因子污染指数均值表明两亚区整体污染水平为轻度污染, 废弃矿井区和对照区未受污染;

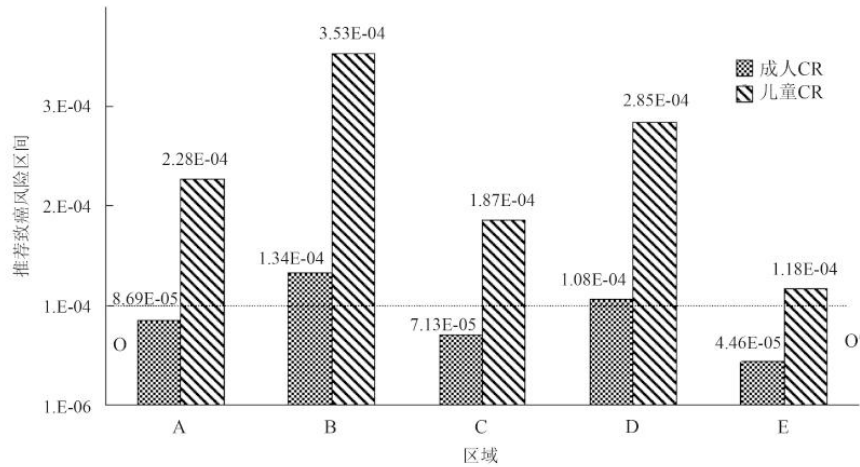
鉴于评价铀矿区稻米中放射性核素铀污染特殊性, 江西省大米中 U 含量背景值为 90 年代调查所得, 年代较为久远, 为突出采矿及铀矿选冶对矿区稻米 U 含量影响, 使评价结果更加合理, 结合刘平辉等^[15]对该铀矿区水稻土壤中 U 含量平均值的分析, 选取含矿未采区稻米中 U 含量平均值为单因子污染评价标准, 相比于以江西省大米背景值为标准的评价结果, 整体上降低了整个研究区及各亚区的污染水平, 突出了铀矿开采活动的影响, 更符合铀矿区的实际意义。

2.3 研究区稻米中放射性核素铀摄入的健康风险

结合表 2、表 3 的评价参数, 利用式 (3)、(5) 计算得到各亚区稻米中 U 元素的日均摄入量 (CDI) 和单项致癌风险指数 (CR_i), 结果见表 6, 图 2。各亚区稻米中 U 元素 CR_i 指数儿童均高于成人。成人和儿童的 CR_i 指数高低顺序均为: 开采矿井区>水冶厂区>含矿未采区>废弃矿井区>对照区。各亚区儿童直接饮食稻米具有一定的致癌风险; 开采矿井区和水冶厂区成人致癌风险超出 EPA 推荐的致癌风险区间, 含矿未采区和废弃矿井区以及对照区的成人均不存在致癌风险。

表 6 各研究区稻米中铀摄入量及致癌风险指数
Tab.6 Intake of Uranium and Risk of Cancer Index by Rice in Study Areas

分区	CDI (mg·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)		SF _i (d·kg)·mg ⁻¹	CR _i		EPA 安全区间
	成人	儿童		成人	儿童	
含矿未采区(A)	8.36×10 ⁻⁸	2.19×10 ⁻⁷	1.04×10 ³	8.69×10 ⁻⁵	2.28×10 ⁻⁴	10 ⁻⁶ ~10 ⁻⁴
开采矿井区(B)	1.29×10 ⁻⁷	3.39×10 ⁻⁷		1.34×10 ⁻⁴	3.53×10 ⁻⁴	
废弃矿井区(C)	6.86×10 ⁻⁸	1.80×10 ⁻⁷		7.13×10 ⁻⁵	1.87×10 ⁻⁴	
水冶厂区(D)	1.04×10 ⁻⁷	2.74×10 ⁻⁷		1.08×10 ⁻⁴	2.85×10 ⁻⁴	
对照区(E)	4.29×10 ⁻⁸	1.13×10 ⁻⁷		4.46×10 ⁻⁵	1.18×10 ⁻⁴	



注：OO'为人体可耐受致癌风险警戒线，高于该警戒线区间的值表示人体不可耐受的致癌风险，低于该警戒线区间的值表示人体可耐受致癌风险

图 2 各区域成人和儿童CR对比

Fig.2 CR Comparison of Adults and Children in Different Regions

结合已有对稻米中Cr、Pb、Cd等常规重金属污染评价结果,选取人口较多、耕地分布广、水稻土及地表水中U元素污染较严重的水冶厂区46件稻米中重金属Pb、Zn、Cu、Cr、Cd、As、U进行重金属非致癌和致癌风险评价,探讨常规重金属和放射性核素的综合健康风险问题,以为整个矿区重金属健康风险评价提供思路和借鉴。参考已有研究,依据重金属毒性特点,将Pb、Zn、Cu、Cr定为非致癌重金属,Cd、As、U为致癌重金属(模型参数见表6),按照式(3)~(6)计算分别得到水冶厂区稻米中成人和儿童的非致癌单项健康风险指数(HQ)、非致癌综合危险指数(HI)、致癌单项健康风险指数(CR)、致癌综合风险指数(TCR),结果见表7。从表7可以得出:HQ,高低顺序为:Cu>Zn>Cr>Pb;儿童均高于成人,均小于1;HI:儿童高于成人,均小于1。因而成人和儿童均不存在非致癌风险。CR,高低顺序为:U>As>Cd;儿童均高于成人;As、Cd低于EPA推荐的最大风险区间,不存在致癌风险;U高出EPA推荐的最大风险区间,对儿童和成人均存在致癌风险;TCR:儿童高于成人,高于EPA推荐的最大风险区间,均存在一定致癌风险。不难发现,选取的水冶厂区常规重金属Pb、Zn、Cu、Cr均不存在非致癌风险,研究的三种具有致癌风险元素中,U元素对成人和儿童致癌风险贡献分别高达64.22%和63.98%,为最主要致癌风险元素,因而本文侧重对铀矿区稻米中U元素的致癌风险研究。

表 7 模型参数SF和RfD的值

Tab.7 Value of SF and RfD of Model Parameters

元素	RfD/mg·(kg·d) ⁻¹	SF/(kg·d)·mg ⁻¹	参数来源
Pb	3.50×10 ⁻³		EPA, 2004
Zn	3.00×10 ⁻¹		EPA, 2005
Cu	4.00×10 ⁻²		EPA, 1991
Cr	1.50		EPA, 1998
As		1.5	文献[26]
Cd		6.1	文献[26]
U		1.04×10 ³	本研究

表 8 稻米重金属健康风险评价结果
Tab.8 Assessment Results of Health Risk of Rice

元素	CDI (mg·kg ⁻¹ ·d ⁻¹)		HQ		HI×10 ⁻²		CR×10 ⁻⁵		TCR×10 ⁻⁴		EPA
	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童	安全区间
Pb	6.86×10 ⁻⁶	1.80×10 ⁻⁵	1.96×10 ⁻³	5.14×10 ⁻³							
Zn	1.70×10 ⁻³	4.46×10 ⁻³	5.67×10 ⁻³	1.49×10 ⁻²	1.33	3.51					
Cu	2.28×10 ⁻⁴	5.98×10 ⁻⁴	5.69×10 ⁻³	1.50×10 ⁻²							
Cr	1.26×10 ⁻⁵	3.30×10 ⁻⁵	8.40×10 ⁻⁶	2.20×10 ⁻⁵							10 ⁻⁶ ~10 ⁻⁴
As	2.30×10 ⁻⁵	6.04×10 ⁻⁵					3.45	9.06			
Cd	3.79×10 ⁻⁶	9.94×10 ⁻⁶					2.31	6.06	1.61	4.22	
U	9.95×10 ⁻⁸	2.61×10 ⁻⁷					10.3	27.1			

我国的健康风险评价起步于 20 世纪 90 年代, 人体各项暴露参数是决定健康风险评价准确性和科学性的关键因素之一。目前我国还未发布一套标准或者手册供参考, 在参数优化等方面多引用国外的资料^[31]。由于我国尚未制定放射性核素铀的致癌的斜率系数和最大可接受风险水平, 在评价时主要采用瑞典环保局、荷兰建设环保部和英国皇家协会推荐的可接受风险水平($1 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$), US EPA 推荐的健康风险可接受区间($1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-4} \text{ a}^{-1}$) 以及国际辐射防护委员会(ICRP)推荐的最大可接受风险($5 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$)。黄德娟等^[32]对该铀矿区人体致癌调查表明, 癌症发生率为 0.3225%, 主要与铀矿井的氡有关。本研究以居民摄入大米是否具有致癌风险为健康风险评价的出发点, 提出江西省大米 U 元素健康风险致癌风险斜率系数为 $1.04 \times 10^3 (\text{d} \cdot \text{kg}) \cdot \text{mg}^{-1}$, 评价表明研究区儿童直接饮食稻米具有一定的致癌风险, 开采矿井区和水冶厂区成人直接饮食稻米具有一定的致癌风险, 含矿未采区和废弃矿井区以及对照区的成人均不存在致癌风险。选取水冶厂区重金属进行综合风险评价也验证了这一结论。同时, 也一定程度上说明研究区 Cd、Cd 等常规重金属虽然存在一定污染现状, 但是均不存在非致癌风险, 致癌风险也主要由 U 元素引起。大量研究也表明重金属生物毒性不仅与其总量及有效态含量有关, 各形态分布也起着关键作用, 不同形态产生不同的环境效应, 直接影响到重金属的毒性、迁移及在自然界的循环^[33, 34]。因此由污染状况是否直接引起健康风险问题需要更深入研究。

综上可知, 研究区稻米中铀含量高低受到一系列开采铀矿活动的影响, 并与 U 元素在灌溉水—土壤—稻米系统中迁移富集规律有关, 受土壤、地表水中 U 含量影响较大。癌症的原因 80%~90%由环境引起, 约 35%与膳食有关, 尽管研究区癌症发病率主要与铀矿井氡有关, 但是通过稻米中 U 元素通过手—口途径直接摄入导致的健康风险也应该引起重视。在考虑铀矿井析出的氡气致癌风险的基础上, 各亚区以水稻为主食导致的居民致癌风险也要引起足够重视。儿童尚处于生长成熟阶段, 身体机能等各方面还不健全, 因此应更多采取合理针对措施, 以减少对儿童的健康风险。鉴于此, 建议从以下几个方面提出防治措施: (1) 定期进行儿童健康状况调查, 建立基础健康数据库, 加强对 Cd、Cr 等常规元素的监测; (2) 改善矿石运输条件, 修缮水冶设备, 改进水冶技术; (3) 加快废弃尾矿堆放场地建设, 禁止露天堆放。同时, 由于相同条件下不同的水稻品种及同一品种的不同器官、不同生长期, 吸收重金属的生理生化机制各异, 故其重金属元素的累积量差异较大^[35]。研究区属于亚热带湿润型季风气候区, 以水稻种植为主, 一年两熟, 有机肥料施用剂量和水稻品种存在差异, 今后应进一步开展对不同水稻品种和同一品种不同器官的 U 含量差异研究。

3 结论

(1) 研究区稻米中 U 含量平均值为 $1.46 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 分别是江西省大米 U 含量背景值和对照区稻米 U 含量平均值的 2.18 倍和 2.43 倍; 各亚区稻米中 U 含量平均值高低顺序为: 开采矿井区 ($1.81 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$) > 水冶场区 ($1.46 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$) > 含矿未采区 ($1.17 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$) > 废弃矿井区 ($0.96 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$) > 江西省背景值 ($0.67 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$) > 对照区 ($0.60 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$)。

(2) 以含矿未采区稻米中 U 平均含量为评价标准表明整个研究区稻米属于轻度污染。开采矿井区和水冶厂区属于轻度污染, 废弃矿井区和对照区未受污染; 建议改善矿石运输车辆条件, 改进水冶技术及新修水利设施; 同时加快废弃尾矿堆放场地建设, 禁止露天堆放等方面来防止矿区 U 污染。

(3) 计算得出了江西省大米 U 元素致癌风险斜率系数为 $1.04 \times 10^3 \text{ (d} \cdot \text{kg)} \cdot \text{mg}^{-1}$ 。各亚区稻米中成人和儿童致癌风险指数高低顺序均为:开采矿井区>水冶厂区>含矿未采区>废弃矿井区>对照区。研究亚区儿童直接饮食稻米具有一定的致癌风险;含矿未采区和废弃矿井区以及对照区的成人致癌风险均未超出致癌风险区间,开采矿井区和水冶厂区超出致癌风险区间。应加强对儿童健康状况调查,建立基础健康数据库,尽早做好预防来降低饮食稻米带来的健康风险。

参考文献:

[1] 毕忠伟, 丁德馨, 段仲沅. 铀矿开采对环境的影响及治理的特殊性[J]. 安全与环境工程, 2004, 11(4): 40 - 42.

【BI Z W, DING D X, DUAN Z Y. The Specificity of impact and harnessing induced by uranium mining[J]. Safety and Environmental Engineering, 2004, 11(4): 40 - 42. 】

[2] 陈秀端, 卢新卫, 赵彩凤, 等. 西安市二环内表层土壤重金属空间分布特征[J]. 地理学报, 2011, 66(9): 1281 - 1288.

【CHEN X D, LU X W, ZHAO C F, et al. The spatial distribution of heavy metals in the urban topsoil collected from the interior area of the second ring road, Xi'an[J]. Acta Geographica Sinica, 2011, 66(9): 1281 - 1288. 】

[3] 胡冠九, 陈素兰, 蔡 熹, 等. 江苏省化工园区污水处理厂污泥重金属污染及生态风险评价[J]. 长江流域资源与环境, 2015, 24(1): 122 - 127.

【HU G J, CHEN S L, CAI X, et al. Evaluation on the potential ecological risks of heavy metal pollution in sludge from the sewage treatment plants in chemical industry parks of Jiangsu Province[J]. Resources and Environment in the Yangtze Basin, 2015, 24(1): 122 - 127. 】

[4] 杨 军, 陈同斌, 雷 梅, 等. 北京市再生水灌溉对土壤、农作物的重金属污染风险[J]. 自然资源学报, 2011, 26(2): 209 - 217.

【YANG J, CHEN T B, LEI M, et al. Assessing the effect of irrigation with reclaimed water: the soil and crop pollution risk of heavy metals[J]. Journal of Natural Resources, 2011, 26(2): 209 - 217. 】

[5] 谢玲琳, 申志军. 放射性元素和毒性重金属污染土壤的治理探讨—以湖南雄磺矿和七一五铀矿为例[J]. 地质灾害与环境, 2006, 17(2): 41 - 44, 94.

[6] 陈志东, 林 清, 邓 飞, 等. 广东省伴生放射性矿资源利用过程辐射水平调查[J]. 辐射防护通讯, 2002, 22(5): 29 - 32.

【CHEN Z D, LIN Q, DENG F, et al. Investigation of radiation levels in mines associated with radioactivity in Guangdong Province[J]. Radiation Protection Bulletin, 2002, 22(5): 29 - 32. 】

[7] 王卫星, 杨亚新, 王雷明, 等. 广东下庄铀矿田土壤的天然放射性研究[J]. 中国环境科学, 2005, 25(1): 120 - 123.

-
- 【WANG W X, YANG Y X, WANG L M, et al. Studies on naturalradioactivity of soil in Xiazhuang uranium ore field, Guangdong[J].China Environmental Science, 2005, 25(1): 120 - 123.】
- [8] SAÏDOU, BOCHUD F O, BAECHLER S, et al. Natural radioactivity measurements and dose calculations to the public: case of the uraniumbearing region of Poli in Cameroon[J]. Radiation Measurements, 2011, 46(2): 254 - 260.
- [9] LOURENÇO J, PEREIRA R, PINTO F, et al. Biomonitoring a human population inhabiting nearby a deactivated uranium mine[J].Toxicology, 2013, 305: 89 - 98.
- [10] SIKLOSZ Z, KERN Z, DEMENY A, et al. Speleothems and pine trees as sensitive indicators of environmental pollution —a case study of the effect of uranium-ore mining in Hungary[J]. Applied Geochemistry, 2011, 26(5): 666 - 678.
- [11] World Health Organization. Depleted uranium: sources, exposure and health effects[R]. Geneva: WHO, 2001.
- [12] ABEDIN M J, FELDMANN J, MEHARG A A. Uptake kinetics of arsenic species in rice plants[J]. Plant Physiology, 2002, 128(3):1120 - 1128.
- [13] RAHMAN M A, HASEGAWA H, RAHMAN M M, et al. Arsenic accumulation in rice (*Oryza sativa* L.) varieties of Bangladesh: a glass house study[J]. Water, Air, and Soil Pollution, 2007, 185(1/4): 53 - 61.
- [14] SAHRAWAT K L. Iron toxicity in Wetland rice and the role of other nutrients[J]. Journal of Plant Nutrient, 2005, 27(8): 1471 - 1504.
- [15] 刘平辉, 魏长帅, 张淑梅, 等. 华东某铀矿区水稻土放射性核素铀污染评价[J]. 土壤通报, 2014, 45(6): 1517 - 1521.
- 【LIU P H, WEI C S, ZHANG S M, et al. Contamination assessmentof radioactive element uranium in paddy soil of one uranium depositarea, east of China[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2014, 45(6):1517 - 1521.】
- [16] 向 龙, 刘平辉, 张淑梅. 华东某铀矿区地表水中放射性核素铀含量特征分析[J]. 地球与环境, 2016, 44(4): 455 - 461.
- 【XIANG L, LIU P H, ZHANG S M. Characteristics of uraniumcontent in surface water of a uranium mine in eastern China[J]. Earthand Environment, 2016, 44(4): 455 - 461.】
- [17] 魏长帅, 刘平辉, 袁 瑾, 等. 华东某铀矿区稻米中 Pb 含量特征及污染研究[J]. 地质学刊, 2015, 39(4): 673 - 677.
- 【WEI C S, LIU P H, YUAN J, et al. Pb contents and contaminationassessment of rice in a uranium mine, east China[J]. Journal ofGeology, 2015, 39(4): 673 - 677.】
- [18] 魏长帅, 刘平辉, 张淑梅. 华东某铀矿区稻米中 Cd 含量及空间分布特征研究[J]. 安徽地质, 2016, 26(1): 75 - 78.

【WEI C S, LIU P H, ZHANG S M. Study on Cd content and features of its spatial distribution in rice in a uranium mining area in east China[J]. Geology of Anhui, 2016, 26(1): 75 - 78. 】

[19] 魏长帅, 刘平辉, 张淑梅. 华东某铀矿区稻米中 Cr 元素含量及其空间分布特征研究[J]. 安徽农业科学, 2014, 42(12): 3709 - 3710.

【WEI C S, LIU P H, ZHANG S M. Study on the Cr contents and spatial characteristics of rice in the area of a uranium mine, East China[J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2014, 42(12): 3709 - 3710. 】

[20] 吴锦海, 任礼华, 袁政安, 等. 上海主要食品中微量放射性元素的含量[J]. 微量元素与健康研究, 1993, 10(4): 31 - 32.

【WU J H, REN L H, YUAN Z A, et al. Contents of trace radioactive elements in main foods in Shanghai[J]. Studies of Trace Elements and Health, 1993, 10(4): 31 - 32. 】

[21] 沈体忠, 朱明祥, 肖杰. 天门市土壤-水稻系统重金属迁移积累特征及其健康风险评估[J]. 土壤通报, 2014, 45(1): 221 - 226.

【SHEN T Z, ZHU M X, XIAO J. Characteristics of migration and accumulation of heavy metals in soil-rice system of Tianmen and its health risk assessment[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2014, 45(1): 221 - 226. 】

[22] 唐荣莉, 马克明, 张育新, 等. 北京城市道路灰尘重金属污染的健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2012, 32(8): 2006 - 2015.

【TANG R L, MA K M, ZHANG Y X, et al. Health risk assessment of heavy metals of street dust in Beijing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, 32(8): 2006 - 2015. 】

[23] 杨刚, 沈飞, 钟贵江, 等. 西南山地铅锌矿区耕地土壤和谷类产品重金属含量及健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2011, 31(9): 2014 - 2021.

【YANG G, SHEN F, ZHONG G J, et al. Concentration and health risk of heavy metals in crops and soils in a zinc-lead mining area in southwest mountainous regions[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2011, 31(9): 2014 - 2021. 】

[24] US EPA. Risk assessment guidance for superfund volume I human health evaluation manual (Part A)[R]. EPA/540/1-89/002, Washington, D.C.: U.S. Environmental Protection Agency, 1989: 35 - 52.

[25] US EPA. Superfund public health evaluation manual[R]. EPA/540/1-86/060, Washington, D.C.: U.S. Environmental Protection Agency, 1986: 1 - 52.

[26] 段海静, 蔡晓强, 阮心玲, 等. 开封市公园地表灰尘重金属污染及健康风险[J]. 环境科学, 2015, 36(8): 2972 - 2980.

【DUAN H J, CAI X Q, RUAN X L, et al. Assessment of heavy metal pollution and its health risk of surface dusts from parks of Kaifeng, China[J]. Environmental Science, 2015, 36(8): 2972 - 2980.】

[27] 刘发欣. 区域土壤及农产品中重金属的人体健康风险评估[D]. 雅安: 四川农业大学硕士学位论文, 2007.

【LIU F X. The regional health risk assessment of heavy metals in the agricultural products and soil[D]. Ya'an: Master Dissertation of Sichuan Agricultural University, 2007.】

[28] 李玉清, 周雪梅, 姜国辉, 等. 含镉水灌溉对水稻产量和品质的影响[J]. 灌溉排水学报, 2012, 31(4): 120 - 123.

【LI Y Q, ZHOU X M, JIANG G H, et al. Influence of irrigation with different concentrations of Cadmium solution on rice yield and quality[J]. Journal of Irrigation and Drainage, 2012, 31(4): 120 - 123.】

[29] 韩爱民, 蔡继红, 屠锦河, 等. 水稻重金属含量与土壤质量的关系[J]. 环境监测管理与技术, 2002, 14(3): 27 - 28, 32.

【HAN A M, CAI J H, TU J H, et al. Correlation of heavy metals contained in paddy rice and soil quality[J]. The Administration and Technique of Environmental Monitoring, 2002, 14(3): 27 - 28, 32.】

[30] 朱晓杰. 铀矿山典型场地中铀分布特征及形成机理研究[D]. 南昌: 东华理工大学硕士学位论文, 2013.

【ZHU X J. The study of distribution characteristics of uranium in typical field of uranium mine and formation mechanism[D]. Nanchang: Master Dissertation of East China University of Technology, 2013.】

[31] 杨彦, 陆晓松, 李定龙. 我国环境健康风险评估研究进展[J]. 环境与健康杂志, 2014, 31(4): 357 - 363.

【YANG Y, LU X S, LI D L. Research progress of environmental health risk assessment in China[J]. Journal of Environment and Health, 2014, 31(4): 357 - 363.】

[32] 黄德娟, 徐巍越, 周青, 等. 铀矿辐射对人体致癌病情调查报告[J]. 中国辐射卫生, 2007, 16(2): 185 - 186.

【HUANG D J, XU W Y, ZHOU Q, et al. The investigation on human cancer caused by the radiation of uranium mine[J]. Chinese Journal of Radiological Health, 2007, 16(2): 185 - 186.】

[33] 商和平, 李洋, 张涛, 等. 畜禽粪便有机肥中 Cu、Zn 在不同农田土壤中的形态归趋和有效性动态变化[J]. 环境科学, 2015, 36(1): 314 - 324.

【SHANG H P, LI Y, ZHANG T, et al. Form tendency and bioavailability dynamics of Cu and Zn in different farm soils after application of organic fertilizer of livestock and poultry manures[J]. Environmental Science, 2015, 36(1): 314 - 324.】

[34] SASTRE J, HERNÁNDEZ E, RODRÍGUEZ R, et al. Use of sorption and extraction tests to predict the dynamics of the interaction of trace elements in agricultural soils contaminated by a mine tailing accident[J]. Science of the Total Environment, 2004, 329(1/3):261 - 281

[35] 周 歆, 周 航, 胡 淼, 等. 不同杂交水稻品种糙米中重金属 Cd、Zn、As 含量的差异研究[J]. 中国农学通报, 2013, 29(11): 145 - 150.

【ZHOU X, ZHOU H, HU M, et al. The difference of Cd, Zn and As accumulation in different hybrid rice cultivars[J]. Chinese Agricultural Science Bulletin, 2013, 29(11): 145 - 150. 】