

体外模拟实验法评价湘南某矿区大米中重金属的人体健康风险

兰砥中¹, 雷鸣^{1*}, 周爽¹, 廖柏寒², 崔岩山³, 尹乃毅³, 沈跃⁴

(1.湖南农业大学资源环境学院,长沙 410128; 2.中南林业科技大学林学院,长沙 410004; 3.中国科学院大学资源与环境学院,北京 100049; 4.农业部环境保护科研监测所,天津 300191)

摘要:为了评价大米中重金属对人体健康风险的影响,在湘南某矿区和非矿区采集大米样品,运用人工模拟实验方法,评价大米中Pb、Zn、Cu、Cd和As的摄入量 and 生物可给量。结果表明:矿区大米重金属Pb、Zn、Cu、Cd和As的含量分别为2.03、30.08、6.57、2.34、3.80 mg·kg⁻¹,非矿区大米重金属含量分别为1.03、8.65、1.52、0.15、0.30 mg·kg⁻¹,成人和儿童因食用矿区大米而摄入的Pb(789.23、562.00 μg·d⁻¹)、Zn(11 701.12、8 332.16 μg·d⁻¹)、Cu(2 555.73、1 819.89 μg·d⁻¹)、Cd(910.26、648.18 μg·d⁻¹)和As(1 478.20、1 052.60 μg·d⁻¹)超过因食用非矿区大米而摄入的Pb(400.67、285.31 μg·d⁻¹)、Zn(3 364.57、2 395.84 μg·d⁻¹)、Cu(591.18、420.97 μg·d⁻¹)、Cd(58.51、41.67 μg·d⁻¹)和As(116.70、83.10 μg·d⁻¹)。模拟成人和儿童胃阶段和小肠阶段,矿区大米中Pb、Zn、Cu、Cd和As的平均生物可给量都大于非矿区大米中重金属的平均生物可给量;模拟胃阶段矿区大米中Pb、Zn、Cu、Cd和As的平均生物可给量都大于模拟小肠阶段重金属的平均生物可给量。在模拟胃消化阶段,矿区大米中Cd的生物可给量分别是每周可耐受摄入量的3.11倍(成人)和4.42倍(儿童);在模拟小肠阶段,对于成人矿区大米中Pb、Cd和As的生物可给量没有超过每周可耐受摄入量,而对于儿童矿区大米中Pb和Cd的生物可给量都超过了每周可耐受摄入量。因此,矿区成人和儿童通过食用该区域大米将会对其身体产生健康风险,其中对儿童的健康危害更加明显。

关键词: 矿区;大米;体外模拟实验法;重金属;生物可给量;健康风险

中图分类号:X820.4 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2014)10-1897-07 doi:10.11654/jaes.2014.10.004

Health Risk Assessment of Heavy Metals in Rice Grains from A Mining-Impacted Area in South Hunan by in Vitro Simulation Method

LAN Di-zhong¹, LEI Ming^{1*}, ZHOU Shuang¹, LIAO Bo-han², CUI Yan-shan³, YIN Nai-yi³, SHEN Yue⁴

(1.College of Resources and Environment, Hunan Agriculture University, Changsha 410128, China; 2.College of Forestry, Central South University of Forestry and Technology, Changsha 410004, China; 3.College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 4.Agro-Environmental Protection Institute, Ministry of Agriculture, Tianjin 300191, China)

Abstract: Human health risk of heavy metals(Pb, Zn, Cu, Cd and As) in rice grains collected from a mining-impacted area and a non-contaminated area in South Hunan Province was assessed using in vitro simulation method in the present study. The contents of Pb,Zn,Cu,Cd and As in rice grains were respectively 2.03 mg·kg⁻¹, 30.08 mg·kg⁻¹, 6.57 mg·kg⁻¹, 2.34 mg·kg⁻¹ and 3.8 mg·kg⁻¹ from the mining-impacted area and 1.03 mg·kg⁻¹, 8.65 mg·kg⁻¹, 1.52 mg·kg⁻¹, 0.15 mg·kg⁻¹ and 0.30 mg·kg⁻¹ from the non-contaminated area. The acceptable daily intakes(ADI) of Pb, Zn, Cu, Cd and As for an adult and a child through the consumption of the rice grains from the mining-impacted area were Pb789.23 μg·d⁻¹ and 562.00 μg·d⁻¹, Zn 11 701.12 μg·d⁻¹ and 8 332.16 μg·d⁻¹, Cu 2 555.73 μg·d⁻¹ and 1 819.89 μg·d⁻¹, Cd 910.26 μg·d⁻¹ and 648.18 μg·d⁻¹, and As 1 478.20 and 1 052.60 μg·d⁻¹, much higher than those from non-contaminated area(Pb 400.67 μg·d⁻¹ and 285.31 μg·d⁻¹, Zn 3 364.57 μg·d⁻¹ and 2 395.84 μg·d⁻¹, Cu 591.18 μg·d⁻¹ and 420.97 μg·d⁻¹, Cd 58.51 μg·d⁻¹ and

收稿日期:2014-04-09

基金项目:国家863项目子课题(2012AA101404-5);环保部公益基金(201009047);国家自然科学基金(21007014/B0702)

作者简介:兰砥中(1989—),男,硕士研究生,研究方向为环境科学。E-mail:176608309@qq.com

*通信作者:雷鸣 E-mail:leiming8297@163.com

41.67 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$, and As 116.70 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ and 83.10 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$), respectively. Both gastric phase and intestinal stage stimulation showed that average bio-availability of Pb, Zn, Cu, Cd and As in rice grains was much higher from the mining impacted area than from the non-contaminated area, with greater bioavailability at the simulated gastric phase than at simulated intestinal stage. The bioavailability of Cd at simulated gastric phase was 3.11 times (for an adult) and 4.42 times (for a child) as much as that of the biologically tolerable weekly intake. At the simulated intestinal stage, the bio-availability of Pb, Cd, and As in rice grains from the mining impacted area was lower than the tolerable weekly intake for adults, but exceeded that for children. These findings show that consuming rice grains from mining-impacted area would pose health risk to human beings, specially children.

Keywords: mining-impacted area; rice; in vitro simulated method; heavy metals; amount of bio-availability; health risk

我国是世界上水稻产量最高的国家之一,全国约有 65%的人口以大米为主食。然而和其他粮食作物相比,水稻更易受到重金属的污染。抽检结果表明,稻米中 Pb 的超标率为 28.4%,Cd 的超标率为 10.3%,As 和 Hg 的超标率分别为 2.8%和 3.4%^[1-3]。长期摄入被重金属污染的食物将对人体健康产生一定的负面影响,严重者会引发癌症^[4-5],如日本的“骨痛病”就是食用镉超标的食物而引起。当前,分析与评估大米中重金属元素含量与人类健康的关系倍受关注^[5-8]。评价食用重金属污染大米导致的人体健康风险评估模式有很多,如生物有效性简化提取法、生理原理提取法、体外肠胃法、德国标准研究院法、荷兰应用科学研究院胃肠法和人体肠道微生物生态模拟系统^[9],但由于实验周期长、费用高以及伦理方面等原因,许多评价方法在运用上受到限制。体外模拟法(In vitro)能够有效模拟肠胃的物理化学环境,获得污染物进入人体后相对生物有效性或生物可给性的可靠数据。20世纪 90 年代初体外模拟法开始受到广泛重视,结合动物实验发现该方法有一定的实用性^[10]。简单的体外模拟实验最初是营养学测定食物中铁的生物有效性,Ruby 等^[11-12]对该方法进行了改进,其后 Artursson 等^[13]加强了对肠胃环境的模拟,而 Yang 等^[14]则简化了该方法,使该方法的运用日趋成熟。由于体外模拟实验方法具有快速、费用低廉、结果重现性好、易于复杂实验的简单化设计、适合大批量样品的快速测定等优点而深受研究人员的欢迎,目前国内有运用人工模拟胃方法来评价土壤重金属生物可给性或健康评价的报道^[15-18]。本研究在湘南某铅锌矿区周围采集大米样品,在非矿区采集大米样品作为对照样品,运用体外模拟实验测定大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给性,通过成人和儿童食用矿区和非矿区大米而摄入重金属量及其生物可给量来评价食用大米所导致的健康风险,为科学评价矿区土壤风险和食用矿区重金属污染大米的健康风险提供依据。

1 材料与方法

1.1 主要仪器与试剂

采用经改造的 ZRS-8G 型智能药物溶出仪(包括 6 个反应器、水浴槽和搅拌器,天津大学无线厂),氩气供应系统,气体流量计和 pH 计组成的基于生理学的体外模拟实验系统;Agilent 7500 型电感耦合等离子体质谱仪(安捷伦科技有限公司)。胃蛋白酶(产品号:P 7000)、胰酶(产品号:P 7500)和胆盐(产品号:B 8631),均为 Sigma 公司产品。有机酸包括柠檬酸、苹果酸、乳酸和醋酸,均为分析纯,由北京中柏化工创业有限公司提供。

1.2 研究区域样品的采集

在湘南某铅锌矿区周边农田随机采集水稻稻谷 15 个样品(简称矿区大米),该矿区于 1985 年发生特大山洪,造成东河流域东坡的 120 万 t 尾砂坝冲垮,导致该区域耕地和水塘覆盖一层尾渣。事故发生后,陆续的调查表明该区域的农田土壤和农作物都受到严重的重金属复合污染^[19-21]。同时在湘南非矿区农田采集水稻稻谷 5 个样品作为对照(简称非矿区大米)。

1.3 实验方法

大米中重金属总浓度的分析方法:取 0.500 0 g 大米样品于 50 mL 消解管中,加入 5 mL 优级纯硝酸放置过夜,次日将消解管插入消解仪的消解孔中,设置消解温度为 80 $^{\circ}\text{C}$,缓慢加热,持续 30 min,升温至 120 $^{\circ}\text{C}$,保持 1 h,消解样品;升温至 190 $^{\circ}\text{C}$,赶酸至 1~2 mL 左右;冷却后用超纯水定容至 25 mL,然后用滤纸过滤到干净的 PE 塑料瓶中,待检测。用 F 型火焰原子吸收分光光度计测定水稻中 Pb、Cu、Zn 的含量,使用石墨炉及原子荧光分光光度计测定水稻中 Cd 及 As 的含量。

体外模拟法(In vitro):主要采用 Ruby 等^[22]提出的实验方法,同时参考 Rodriguez 等^[23]的方法,进行了改进^[15-18]。

1.3.1 模拟胃阶段

分析每批样品时,先配制模拟胃液 4.00 L,内含 0.15 mmol·L⁻¹ NaCl,加入柠檬酸 2.00 g、苹果酸 2.00 g、乳酸 1.68 mL、醋酸 2.00 mL 和胃蛋白酶 5.00 g,用 12.00 mol·L⁻¹ HCl 将 pH 值调到 1.50;在 6 个反应器中加入 600.00 mL 模拟胃液,在各反应器中加入过 0.25 mm 筛的待测大米 6.00 g,在反应液中通入 1.00 L·min⁻¹ 氩气,以创造厌氧环境,100.00 r·min⁻¹ 搅动 1.0 h;之后用针筒吸取 20.00 mL 反应液,10 000.00 r·min⁻¹ 离心,0.45 μm 过滤,采用 ICP-MS 分析滤液中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量。

1.3.2 模拟肠阶段

用 NaHCO₃ 饱和溶液将反应液 pH 值调至 8.0,在每个反应器中加入胰酶 0.36 g、胆盐 1.20 g,通入 1.00 L·min⁻¹ 氩气,100 r·min⁻¹ 搅动 4.0 h。每隔 15 min 测定反应液 pH 值,若升高则滴加 12.00 mol·L⁻¹ HCl 维持 pH 值为 8.0。在小肠阶段开始后 4.0 h 吸取 20.00 mL 反应液,10 000.00 r·min⁻¹ 离心,0.45 μm 膜抽滤,采用 ICP-MS 测定滤液中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量。

1.4 计算方法

大米中重金属 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 在模拟胃阶段或小肠阶段的生物可给性由公式(1)计算。

$$BA = \frac{C_W V_W}{C_S M_S} \times 100\% \quad (1)$$

式中:BA 为通过食用大米摄入重金属的生物可给性,%;C_W 为体外模拟实验的胃阶段或小肠阶段反应液中重金属的可溶态总量,mg·L⁻¹;V_W 为各反应器中反应液的体积,L;C_S 为大米样品中重金属的总量,mg·kg⁻¹;M_S 为加入反应器中大米样品的质量,kg。

人体平均每日通过大米途径摄入的重金属量由公式(2)计算。

$$W_m = C_m \times W \quad (2)$$

式中:W_m 为通过食用大米摄入的重金属量,μg·d⁻¹;C_m 为大米中重金属的含量,mg·kg⁻¹;W 为每日食用大米量,成人为 389 g·d⁻¹ [24],儿童为 277 g·d⁻¹ [25-26]。

每日摄入体内重金属中可被吸收的重金属量由公式(3)计算。

$$W_A = W_m \times BA \quad (3)$$

式中:W_A 为日均摄入体内重金属的生物可给性,μg·d⁻¹;W_m 为重金属元素的日摄入量,μg·d⁻¹;BA 为大米中重金属的生物可给性,%。

2 结果与分析

2.1 大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量

非矿区和矿区大米中重金属 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量如表 1 所示。矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 含量范围分别为 1.55~2.43、38.53~61.42、6.95~14.21、1.77~2.89、4.10~4.43 mg·kg⁻¹,明显高于非矿区大米样品中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的平均含量。与国家食品卫生标准(GB 2762—2012)相比,矿区大米中 Pb 含量是标准的 10 倍,Cd 含量是标准的 11.7 倍,按照大米中无机 As 占总 As 的 50%来计算 [25],矿区大米中无机 As 的含量(1.90 mg·kg⁻¹)是国家食品卫生标准的 9.5 倍。

2.2 在模拟胃和肠阶段大米中重金属的生物可给性

表 2 是在模拟胃和肠阶段非矿区和矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给性。在模拟胃阶段,非矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给性分别为 86.42%~89.11%、85.77%~88.96%、23.44%~28.56%、30.21%~34.55%和 0.96%~1.02%;矿区中分别为 85.23%~90.45%、82.37%~86.14%、17.56%~23.51%、25.23%~36.44%和 0.97%~1.02%。虽然矿区大米中 Pb、Zn、Cd 的含量远高于非矿区大米,但在模拟胃阶段中非矿区与矿区大米中 Pb、Zn、Cd 的生物可给性十分接近。表明在模拟肠胃实验中大米中 Pb、Zn、Cd 的生物可给性并没有因为大米中重金属含量的增加而升高。在模拟小肠阶段,非矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给性分别为 29.33%~32.25%、6.96%~8.12%、82.23%~85.97%、8.67%~9.55%和 0.81%~0.88%;矿区大米分别为 25.64%~35.13%、3.85%~6.48%、

表 1 非矿区和矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量(mg·kg⁻¹)

Table 1 Contents of Pb, Zn, Cu, Cd, and As in rice grains from non-contaminated and mining-impacted areas(mg·kg⁻¹)

区域 Area	重金属含量 Contents of heavy metals				
	Pb	Zn	Cu	Cd	As
非矿区 Non-contaminated area	1.03±0.13	8.65±2.41	1.52±3.22	0.15±0.51	0.30±0.01
矿区 Mining-impacted area	2.03±0.57	30.08±7.64	6.57±4.17	2.34±1.17	3.80±0.20
食品卫生标准(GB 2762—2012)	0.2	—	—	0.2	0.2*

注:“—”表示标准中没有限值;*表示无机砷含量。

23.29%~29.41%、6.73%~9.42%和0.80%~0.86%。比较模拟胃和模拟肠阶段可发现,在模拟胃阶段,非矿区和矿区大米中 Pb、Zn、Cd 的生物可给性要比模拟肠阶段的高,而 Cu 却比模拟小肠阶段低。可能是肠胃酸性条件不同导致 Pb、Zn、Cd 和 Cu 的生物可给性的差异。在模拟胃阶段和模拟肠阶段^[7],非矿区和矿区大米中 As 的生物可给性都保持较低水平,意味着 As 在体外模拟实验中生物可给性不受酸性条件的影响。

2.3 通过食用大米而摄入重金属的量

表 3 是儿童和成人因食用非矿区和矿区大米而摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的量。由于国家食品卫生标准(GB 2762—2012)没有将 Zn 和 Cu 列为污染物指标,本研究没有考虑大米中 Zn 和 Cu 的每周可耐受摄入量(PTWI)。研究表明,Cd 的 PTWI 为 $7.00 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\text{BW}$,成人和儿童 Pb 的 PTWI 分别为 50.00 、 $25.00 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\text{BW}$,As 的 PTWI 为 $15.00 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\text{BW}$ ^[27]。对于体重 60 kg 的成人和 30 kg 的儿童来说,Cd 的每日摄入量分别不能超过 60.00 和 $30.00 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,Pb 的每日摄入量不能超过 428.57 和 $107.14 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$;As 的每日摄入量不能超过 128.57 和 $64.29 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 。

由表 3 可知,成人通过食用矿区大米日均摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量范围分别为 602.95 ~ 945.27 、 10413.53 ~ 15412.18 、 2003.35 ~ 3193.69 、 665.19 ~ 10466.1 、 1404.29 ~ $1579.34 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$;食用非矿区大米日均摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量分别为 379.30 ~ 412.57 、 3265.44 ~ 3478.20 、 512.56 ~ 633.23 、 52.63 ~

67.32 、 103.36 ~ $125.41 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 。成人通过食用矿区大米日均摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量分别是非矿区大米的 1.97、3.48、4.32、15.56、12.67 倍。与 PTWI 相比,成人因食用矿区大米而摄入 Pb、Cd 和 As 的量分别是 PTWI 的 1.84、15.17、11.50 倍,食用非矿区大米而摄入 Pb、Cd 和 As 的量则没有超过 PTWI^[27]。可见,成人因食用矿区大米而摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的量明显高于非矿区大米,且高于 PTWI。

儿童食用矿区大米日均摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量范围分别为 429.35 ~ 673.11 、 7415.29 ~ 10974.74 、 1426.55 ~ 2274.17 、 473.67 ~ 745.13 、 999.97 ~ $1124.62 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$;食用非矿区大米日均摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量分别为 270.09 ~ 293.78 、 2325.26 ~ 2476.77 、 364.98 ~ 450.91 、 37.48 ~ 47.94 、 73.60 ~ $89.30 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 。儿童因食用矿区大米日均摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的含量均超出非矿区大米。与 PTWI 相比,矿区儿童因食用矿区大米而摄入 Pb、Cd 和 As 的量分别是 PTWI 的 5.25、21.6、16.37 倍。综上可知,儿童食用矿区大米摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的量高于食用非矿区大米,并且高于 PTWI。

2.4 不同消化阶段大米中重金属的生物可给量

表 4 是在不同消化阶段非矿区和矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给量。在模拟成人胃阶段,矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给量 (700.05 、 10351.72 、 532.17 、 186.40 、 $14.62 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)均大于非矿区大米中重金属的生物可给量 (352.79 、

表 2 非矿区和矿区大米在模拟胃和肠阶段的生物可给性(%)

Table 2 Bioavailability of heavy metals in rice grains in stomach and intestine(%)

区域 Area	模拟胃阶段 Stomach phase					模拟小肠阶段 Intestinal phase				
	Pb	Zn	Cu	Cd	As	Pb	Zn	Cu	Cd	As
非矿区 Non-contaminated area	88.05±0.08	88.26±0.08	26.32±0.05	33.24±0.02	1.00±0.02	31.86±0.05	7.86±0.05	85.54±0.03	9.31±0.02	0.84±0.01
矿区 Mining-impacted area	87.50±1.02	84.48±3.40	20.81±2.03	36.16±2.78	1.00±0.03	32.20±0.70	5.80±0.80	27.88±0.67	8.91±0.08	0.83±0.01

表 3 非矿区和矿区儿童和成人通过食用大米而摄入重金属的量($\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)

Table 3 Intake of heavy metals by adults and children from rice grains through ingestion pathway($\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)

年龄段 Age	区域 Area	重金属摄入量 Contents of heavy metals				
		Pb	Zn	Cu	Cd	As
成人 Adults	非矿区 Non-contaminated area	400.67±8.78	3364.57±58.64	591.18±32.24	58.51±3.49	116.70±1.25
	矿区 Mining-impacted area	789.23±10.10	11701.12±221.32	2555.73±63.42	910.26±20.98	1478.2±1.84
	PTWI*	428.57	—	—	60.00	128.57
儿童 Children	非矿区 Control area	285.31±5.22	2395.84±32.42	420.97±18.12	41.67±1.33	83.10±2.33
	矿区 Mining-impacted area	562.00±12.25	8332.16±188.95	1819.89±56.41	648.18±14.56	1052.60±1.25
	PTWI*	107.14	—	—	30.00	64.29

注:*表示每周可耐受量换算得到的每日可耐受量。

2 969.63、155.60、19.45 和 1.17 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$),其中 Cd 和 As 的生物可给量分别是非矿区的 9.58、12.50 倍。矿区大米中 Pb 的生物可给量超过了 PTWI,而非矿区大米中 Pb、Cd 和 As 的生物可给量没有超过 PTWI。在模拟成人小肠阶段,矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给量(254.13、710.47、715.87、45.92、12.14 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)均大于非矿区大米中重金属的生物可给量(127.65、264.52、505.70、5.45、0.97 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$),其中 Cd 和 As 的生物可给量是非矿区的 8.43、12.51 倍。非矿区和矿区大米中 Pb、Cd 和 As 生物可给量均没有超过 PTWI。

在模拟儿童胃阶段,矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给量(498.49、7 371.27、378.94、132.73 和 10.41 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)均大于非矿区大米的生物可给量(251.21、2 114.62、110.80、13.85、0.83 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$),且 Pb、Cd 和 As 生物可给量均超过了 PTWI;在模拟儿童小肠阶段,矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给量(180.96、505.91、509.75、32.69、8.64 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)均大于非矿区大米的生物可给量(90.90、188.36、360.10、3.88、0.69 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$),且其中 Pb 和 Cd 都超过了 PTWI 的限量值。

3 讨论

非矿区和矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的生物可给性在模拟胃消化阶段比在模拟小肠阶段高,可能与胃部的酸性环境有关。在模拟小肠阶段,小肠液呈碱性导致大米中重金属的生物可给性下降。由于人体消化道对食物的吸收功能主要体现在小肠阶段,在整个体外模拟实验中,模拟小肠阶段大米中重金属的有效性占有更重要的地位。研究表明,影响人

体健康风险评价除摄入体内重金属的生物有效性外,还有其他影响因子如个体差异和饮食习惯等。本研究主要是从重金属摄入量及其生物可给量来评价食用大米所导致的健康风险。由表 3 可知,食用矿区大米,成人和儿童摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的量明显超过非矿区的量,其中量值最大的是 Zn,分别为 11 701.12、8 332.16 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,其次是 Cu,分别为 2 555.73、1 819.89 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$,但国家食品卫生标准(GB 2762—2012)没有 Zn 和 Cu 的指标,因此本文主要评价大米中 Pb、Cd 和 As 所导致的健康风险。与 Pb、Cd、As 的 PTWI 相比,成人和儿童因食用矿区大米而摄入 Pb、Cd 和 As 的量分别是 PTWI 的 1.84、15.17、11.50 倍和 5.21、21.61、16.37 倍,表明食用矿区大米存在较大的健康风险。由表 4 可知,非矿区大米中 Pb、Cd 和 As 的生物可给量很低,而矿区大米中 Pb、Cd 和 As 的生物可给量较高,如在模拟成人和儿童胃消化阶段,Cd 的生物可给量分别是 PTWI 的 3.11 倍和 4.42 倍;在模拟成人小肠阶段,矿区大米中 Pb、Cd 和 As 的生物可给量没有超过 PTWI,而在模拟儿童小肠阶段,矿区大米中 Pb 和 Cd 的生物可给量都超过了 PTWI。综上可知,成人和儿童因食用矿区大米摄入重金属的总量都超过了 PTWI 值,表明食用矿区大米存在健康风险。

4 结论

(1)由于食用矿区大米,成人及儿童摄入了大量的重金属,成人和儿童因食用矿区大米而摄入 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的量明显高于非矿区,且高于每周可耐受摄入量。

(2)对于成人来说,在模拟胃阶段矿区大米中 Pb、

表 4 非矿区和矿区成人和儿童不同消化阶段重金属的生物可给量($\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)

Table 4 Bioavailable amount of heavy metals for children and adults in stomach and intestine($\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)

年龄段 Age	区域 Area	模拟胃阶段 Stomach phase					模拟小肠阶段 Intestinal phase				
		Pb	Zn	Cu	Cd	As	Pb	Zn	Cu	Cd	As
成人 Adults	非矿区 Non-contaminated area	352.79±9.77	2 969.63±54.33	155.6±24.32	19.45±3.24	1.17±0.20	127.65±3.21	264.52±11.23	505.70±33.43	5.45±0.82	0.97±0.08
	矿区 Mining-impacted area	700.05±12.11	1 0351.72±168.42	532.17±57.23	186.40±7.22	14.62±1.68	254.13±4.56	710.47±31.76	715.87±71.22	45.92±1.22	12.14±0.90
	PTWI	428.57	—	—	60.00	128.57	428.57	—	—	60.00	128.57
儿童 Children	非矿区 Non-contaminated area	251.21±8.44	2 114.62±32.13	110.80±9.78	13.85±2.11	0.83±0.10	90.90±1.82	188.36±5.66	360.10±34.22	3.88±0.37	0.69±0.02
	矿区 Mining-impacted area	498.49±12.67	7 371.27±45.61	378.94±25.14	132.73±6.12	10.41±2.10	180.96±2.34	505.91±25.45	509.75±30.14	32.69±1.03	8.64±0.41
	PTWI	107.14	—	—	30.00	64.29	107.14	—	—	30.00	64.29

注:“—”表示没有该值。Data not available.

Zn、Cu、Cd 和 As 的平均生物可给量分别是 700.05、10 351.72、532.17、186.40、14.62 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$, 其中 Cd 的生物可给量是每周可耐受摄入量值的 3.11 倍, 在模拟小肠阶段分别为 254.13、710.47、715.87、45.92、12.14 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 。

(3) 对于儿童来说, 在模拟胃阶段矿区大米中 Pb、Zn、Cu、Cd 和 As 的平均生物可给量分别是 498.49、7 371.27、378.94、132.73、10.41 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$, 其中 Cd 的生物可给量是每周可耐受摄入量值的 4.42 倍; 在模拟小肠阶段分别为 180.96、505.91、509.75、32.69 和 8.64 $\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$ 。

(4) 在体外模拟实验中, 成人因食用矿区大米在模拟小肠阶段摄入 Pb、Cd、As 的含量没有超过每周可耐受摄入量, 而在模拟胃阶段 Pb 和 Cd 的含量均超过每周可耐受摄入量; 儿童在模拟胃阶段和在模拟小肠阶段摄入 Pb 和 Cd 的含量都超过每周可耐受摄入量。食用该矿区大米会产生一定的健康风险, 就重金属的生物可给量来说, 对儿童健康危害更加明显。

参考文献:

- [1] EFSA. Opinion of the scientific panel on contaminants in the food chain on a request from the commission related to cadmium as undesirable substance in normal feed[J]. *The EFSA Journal*, 2004, 101: 1-36
- [2] 金亮, 李恋卿, 潘根兴, 等. 苏北地区土壤-水稻系统重金属分布及其食品安全风险评估[J]. *生态与农村环境学报*, 2007, 23(1): 33-39.
JIN Liang, LI Lian-qing, PAN Gen-xing, et al. Distribution of heavy metals in the soil-rice system and food exposure risk assessment of North Jiangsu, China[J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2007, 23(1): 33-39.
- [3] 杨宇, 张玉军. 国内外大米制品中重金属 Cd、Pb 含量研究[J]. *河南工业大学学报(自然科学版)*, 2009, 30(1): 29-32.
YANG Yu, ZHANG Yu-jun. An investigation of heavy metals, Cd and Pb in rice products in the world[J]. *Journal of Henan University of Technology(Natural Science Edition)*, 2009, 30(1): 29-32.
- [4] 仲维功, 杨杰, 陈志德, 等. 水稻品种及其器官对土壤重金属元素 Pb、Cd、Hg、As 积累的差异[J]. *江苏农业学报*, 2006, 22(4): 331-338.
ZHONG Wei-gong, YANG Jie, CHEN Zhi-de, et al. Differences in accumulation and distribution of Pb, Cd, Hg and As in rice cultivars and their organs (*Oryza sativa* L.)[J]. *Jiangsu J of Agr Sci*, 2006, 22(4): 331-338.
- [5] 李优琴, 李荣林, 石志琦. 市售大米重金属污染状况及健康风险评估[J]. *江苏农业学报*, 2008, 24(6): 977-978.
LI You-qin, LI Rong-lin, SHI Zhi-qi. Pollution and risk evaluation of heavy metals in rice[J]. *Jiangsu J of Agr Sci*, 2008, 24(6): 977-978.
- [6] 甄燕红, 成颜君, 潘根兴, 等. 中国部分市售大米中 Cd、Zn、Se 的含量及其食品安全评价[J]. *安全与环境学报*, 2008, 8(1): 119-122.
ZHEN Yan-hong, CHENG Yan-jun, PAN Gen-xing, et al. Cd, Zn and Se content of the polished rice samples from some Chinese open markets and their relevance to food safety[J]. *Journal of Safety and Environment*, 2008, 8(1): 119-122.
- [7] 常建军. 西宁市售大米汞、砷污染状况及健康风险评估[J]. *江苏农业科学*, 2010(3): 390-391.
CHANG Jian-jun. Mercury, arsenic pollution and health risk assessment in rice in Xining City[J]. *Jiangsu Agricultural Sciences*, 2010(3): 390-391.
- [8] 程旺大, 姚海根, 吴伟, 等. 镉胁迫对水稻生长和营养代谢的影响[J]. *中国农业科学*, 2005, 38(3): 528-537.
CHEN Wang-da, YAO Hai-gen, WU Wei, et al. Effect of cadmium on growth and nutrition metabolism in rice[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2005, 38(3): 528-537.
- [9] 朱永官. 农业环境中的砷及其对人体的健康风险[M]. 北京: 科学出版社, 2013: 120-122.
ZHU Yong-guan. Agricultural arsenic in the environment and the human health risk[M]. Beijing: Science Press, 2013: 120-122.
- [10] Ruby M V, Schoof R, Brattin E, et al. Advances in evaluating the oral bioavailability of inorganics in soil for use in human health risk assessment[J]. *Environ Sci Technol*, 1999, 33(21): 3697-3705
- [11] Ruby M V, Davis A, Link T E, et al. Development of an in vitro screening test to evaluate the in vivo bioaccessibility of ingested mine-waste lead[J]. *Environ Sci and Technol*, 1993, 27(13): 2870-2877
- [12] Ruby M V, Davis A, Schoof R, et al. Estimation of lead and arsenic bioavailability using a physiologically based extraction test[J]. *Environ Sci Technol*, 1996, 30(2): 422-430.
- [13] Artursson P, Karlsson J. Correlation between oral drug absorption in humans and apparent drug permeability coefficients in human intestinal epithelial (Caco-2) cells[J]. *Biochem Biophys Res Comm*, 1991, 175(3): 880-885.
- [14] Yang J, Mosby D E, Casteel S W, et al. Lead immobilization using phosphoric acid in a smelter-contaminated soil[J]. *Environ Sci Technol*, 2001, 35(17): 3553-3559.
- [15] 崔玉静, 张旭红, 朱永官. 体外模拟法在土壤-人途径重金属污染的健康风险评估中的应用[J]. *环境与健康杂志*, 2007, 24(9): 672-674.
CUI Yu-jing, ZHANG Xu-hong, ZHU Yong-guan. Health risk assessment of soil-oral exposure of heavy metal contaminated soil by in vitro method[J]. *Environ Health*, 2007, 24(9): 672-674.
- [16] 唐翔宇, 朱永官. 土壤中重金属对人体生物有效性的体外试验评估[J]. *环境与健康杂志*, 2004, 21(1): 183-185.
TANG Xiang-yu, ZHU Yong-guan. Advances in in vitro tests in evaluating bioavailability of heavy metals in contaminated soil via oral intake[J]. *Environ Health*, 2004, 21(1): 183-185.
- [17] 付瑾, 崔岩山. In vitro 系统评价胃肠液 pH 及土液比对铅、镉、砷生物可给性的影响[J]. *农业环境科学学报*, 2012, 31(2): 245-251.
FU Jin, CUI Yan-shan. In vitro model system to evaluate the influence of pH and soil-gastric/intestinal juices ratio on bioaccessibility of Pb, Cd and As in two typical contaminated soil[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2012, 31(2): 245-251.
- [18] 崔岩山, 陈晓晨. 土壤中镉的生物可给性及其对人体的健康风险

- 评估[J]. 环境科学, 2010, 31(2):403-408.
- CUI Yan-shan, CHEN Xiao-chen. Bioaccessibility of soil cadmium and its health risk assessment[J]. *Environmental Science*, 2010, 31(2): 403-408.
- [19] Liao B H, Guo Z H, Probst A, et al. Soil heavy metal contamination and acid deposition: experimental approach on two forest soils in Hunan, Southern China[J]. *Geoderma*, 2005, 127(1):91-103.
- [20] 曾清如, 杨仁斌, 铁柏清, 等. 郴县东西河流域重金属污染农田的防治技术和生态利用模式[J]. 农业环境保护, 2002, 21(5):428-432.
- ZENG Qing-ru, YANG Ren-bin, TIE Bo-qing, et al. Control of pollution of heavy metals on farmland by ecological engineering in east and west valley in Chen County[J]. *Agro-environmental Protection*, 2002, 21(5):428-432.
- [21] Liu H Y, Probst A, Liao B H. Metal contamination of soils and crops affected by the Chenzhou lead/zinc mine spill (Hunan, China)[J]. *Sci Total Environ*, 2005, 339(1-3):153-166.
- [22] Ruby M V, Davis A, Schoof R, et al. Estimation of lead and arsenic bioavailability using a physiologically based extraction test[J]. *Environ Sci Technol*, 1996, 30(2):422-430.
- [23] Rodriguez R R, Basta N T, Casteel S W, et al. An in vitro gastrointestinal method to estimate bioavailable arsenic in contaminated soil and solid media[J]. *Environ Sci Technol*, 1999, 33(4):642-649.
- [24] 王陇德. 中国居民营养与健康状况调查之一: 2002 综合报告[M]. 北京: 人民卫生出版社, 2005:19, 32.
- WANG Long-de. Investigation of nutrition and health China residents: 2002 synthesis report[M]. Beijing: People's Medical Publishing House, 2005: 19, 32.
- [25] Heikens A. Arsenic contamination of irrigation water, soil and crops in bangladesh: Risk implications for sustainable agriculture and food safety in Asia[M]. Bangkok: Food and Agriculture Organization of the United Nations, Regional Office for Asia and the Pacific, 2006.
- [26] 郑云雁. 食品中污染物的中国国家标准及国际法典标准对比(一) 化学污染物(综述)[J]. 中国食品卫生杂志, 2002(2):47-53.
- ZHEN Yun-yan. Contaminants in food Chinese national standard and international standard contrast (a) chemical pollutants (review)[J]. *China Journal of Food Hygiene*, 2002(2):47-53.
- [27] JECFA (Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives). Joint FAO/WHO Committee on food Additives. Evaluation food additives and contaminants (Fifty-fifth report of the Joint FAO/WHO Expert Committee on food Additives). WHO Technical Report Series, 2000, No. 896.

欢迎订阅 2015 年《农业环境科学学报》

《农业环境科学学报》(原《农业环境保护》)是由农业部主管、农业部环境保护科研监测所、中国农业生态环境保护协会主办的全国性学术期刊。是中国科学引文数据库核心期刊、中文核心期刊、中国科技核心期刊, 列于被引频次最高的中国科技期刊 100 名之内并入选《中国学术期刊(光盘版)》。本刊还被国外多家著名检索机构收录, 如美国《化学文摘》(CA)和俄罗斯《文摘杂志》(AJ), 美国《剑桥科学文摘社网站: 水系统、水科学与渔业文摘、环境工程、水资源文摘及环境科学与污染管理》等 7 种国际检索系统列为来源期刊。本刊主要刊登农业生态环境科学领域具有创新性的研究成果, 包括新理论、新技术和新方法。读者对象为从事农业科学、环境科学、林业科学、生态学、医学和资源保护等领域的科技人员和院校师生。

《农业环境科学学报》为月刊, 每月 20 日出版, 大 16 开, 208 页, 每本定价 75.00 元, 全年定价 900.00 元。国内外公开发行, 全国各地邮局征订, 邮发代号 6-64。如读者在当地邮局漏订, 可通过邮局汇款至本刊编辑部补订。

编辑部地址: 天津市南开区复康路 31 号

邮编: 300191

电话: (022)23674336 传真: (022)23674336

电子信箱: caep@vip.163.com nyhkxxb@vip.163.com

网址: <http://www.aes.org.cn>