

doi:10.7515/JEE201505009

永城市浅层地下水氟化物健康风险评价及其富集原因分析

左俊, 符超峰

(长安大学地球科学与资源学院, 西安 710054)

摘要: 为了解永城市浅层地下水中氟化物对居民健康的危害和富集原因, 运用美国环保局 (USEPA) 推荐的健康风险评价模型对永城市 8 个乡镇浅层地下水氟化物进行健康风险评价, 得出各乡镇浅层地下水氟化物所致个人健康风险均介于 $1E-08 \sim 2E-08$ (每年), 且各乡镇浅层地下水氟化物所致个人健康年风险与对应各乡镇实际氟骨病发病率具有较好的相关性, 相关系数 $R=0.73076$; 将商丘市其他各县区出露基岩面积、地形、地下水盖层岩性等方面与永城市进行对比分析, 得出偏酸性基岩的风化、地势低洼, 浅层地下水盖层岩性偏粘粒为永城市浅层地下水氟富集的主要原因。

关键词: 商丘市; 永城市; 氟化物; 健康风险评价; 浅层地下水

中图分类号: X523; X141 **文献标志码:** A **文章编号:** 1674-9901(2015)05-0323-07

The fluoride health risk assessment of shallow groundwater and analysis the main reason of fluorine enrichment in Yongcheng

ZUO Jun, FU Chao-feng

(The School of Earth Science and Resources, Chang'an University, Xi'an 710054, China)

Abstract: In order to understand the harm of residents health and the reason of enrichment about the fluoride in shallow groundwater of Yongcheng, the fluoride health risks of eight towns in Yongcheng are assessed by the health risk assessment model recommended by the U.S. Environmental Protection Agency (USEPA), suggested that the fluoride-induced personal health risks in townships are between $1E-08 \sim 2E-08$ (a^{-1}) and have a high correlation with the actual incidence of fluorosis (correlation coefficient $R=0.73076$); Comparative analysis of these three aspects about the area of exposed bedrock, landform and groundwater cap rock in Shangqiu other counties with Yongcheng, concluded that the main reason of fluorine enrichment in Yongcheng is the differentiation of acidic bedrock, low-lying and fine lithology of shallow groundwater cap, etc.

Key words: Shangqiu; Yongcheng; fluorosis; health risk assessment; shallow groundwater

氟是一种人体必需的微量元素, 适量的氟化物摄入对人体是有益的, 可以降低龋齿的发病率, 并能促进骨骼发育, 如若摄入不足则会使得龋齿的发病率大大增加 (李静等, 2006; 郜红建等, 2010), 而过量的氟是一种全身性毒物, 不仅表现在对骨骼和牙齿的损害, 对非骨骼组织也有广

泛的毒性作用 (边归国, 2008)。饮水是人体摄入氟的主要途径之一, 如果区域地下水等饮用水源存在氟化物浓度过高或者过低的情况, 那么都可能会导致地方性氟病的发生。

我国有 1226 个病区县, 受危害人口超过 2 亿人, 成为地氟病受害较为严重的国家之一 (郜红建

收稿日期: 2015-08-31

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41140028, 41340043)

通讯作者: 符超峰, E-mail: fucf@chd.edu.cn

等, 2010)。商丘市是我国氟化物污染较为严重的地市, 根据最新的关于商丘市浅层地下水环境质量调查分析结果可知, 商丘各县区浅层地下水中氟化物均是主要超标项目之一, 而其中超标率(超标检测井数/总检测井数)最高, 高达90%的是永城市(陈顺胜等, 2013)。永城市农村地区由于净水等基础设施缺乏, 仍然以氟化物高超标的浅层地下水作为主要的饮用和灌溉水源, 这些高超标氟化物长期地影响着该区居民的身体健康。目前, 关于永城市地下水水质情况的调查和研究较多(许可等, 2010; 臧红霞等, 2010; 许猛等, 2012; 陈顺胜等, 2013), 但是将水质指标与水源地居民身体健康直接相联系的健康风险评价研究仍未有见刊。

本研究整理了前人调查和监测的永城市浅层地下水中氟化物浓度最新数据, 运用美国环保局(USEPA)推荐的健康风险评价模型对该区浅层地下水中氟化物进行健康评估, 并将商丘市其他各县区出露基岩面积、地形、地下水盖层岩性等方面与永城市进行对比, 分析影响永城市浅层地下水氟化物富集的主要因素, 以期地为地氟病防治提供理论依据。

1 研究区概况

永城市位于 $33^{\circ}42' \sim 34^{\circ}18'N$, $115^{\circ}58' \sim 116^{\circ}40'E$,

地处华北平原东南缘, 豫东淮河冲积平原北部, 属淮河流域。受暖温带半湿润半干旱大陆性季风气候的控制, 区内多年平均降雨量为819 mm, 且年内降雨量不均, 多集中在7、8月份, 可占全年降雨量的50%~60%; 多年平均蒸发量为1687.8 mm, 蒸发量最大时期常出现在以干燥少雨多风天气为主的春季(徐凤梅等, 2006)。研究区地势较为平坦, 地面自西北向东南微倾, 比降为 $1/4000 \sim 1/5000$, 地表岩性主要以全新统冲积层、更新统冲积-湖积层的亚粘土、粘土、砂土为主。区域内浅层地下水坡降 $1/5500 \sim 1/6500$, 流向基本上同现代地形倾斜方向一致, 水平运动相对较弱, 以垂直运动为主(李贵明, 2008); 埋深 $1.5 \sim 4.0$ m, 由于埋深浅, 蒸发成为浅层地下水主要的排泄途径; 盖层岩性以亚粘土, 亚砂土为主(陈玉茹和马传明, 2013); 补给主要靠区内王引河、沱河、浍河、包河四条河流渗透和大气降水。采样地分布见图1。

2 氟化物健康风险评价

2.1 材料与方法

2.1.1 数据来源

永城市浅层地下水各样地氟化物含量数据来自于《永城地氟病区氟的地球化学环境研究》, 其中涉及永城市8个采样地, 40个水样数据。

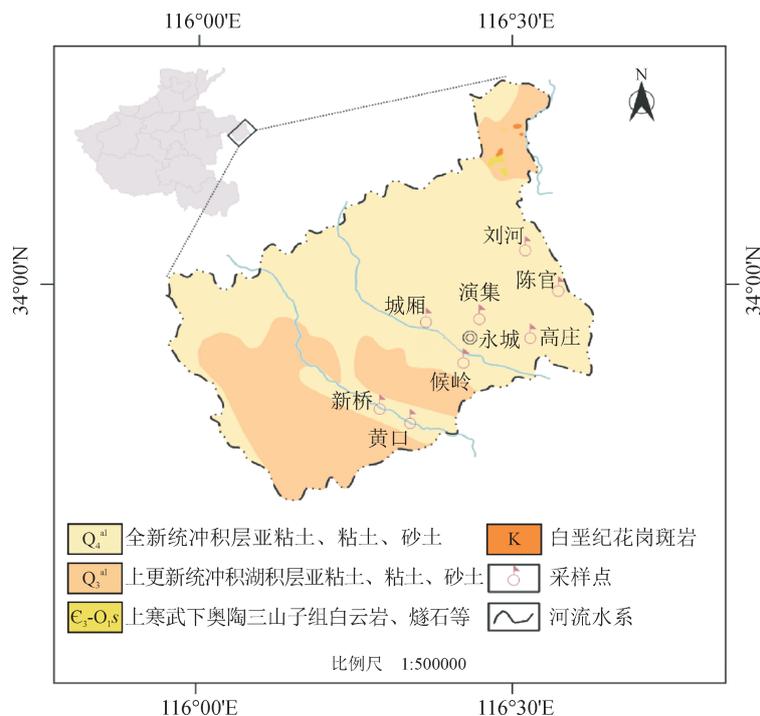


图1 永城市采样地分布图

Fig.1 Location of sampling sites in Yongcheng

2.1.2 评价方法

健康风险评价即是定量描述污染物对人体健康的危害(覃忠书和黎明强, 2008)。本研究采用的定量方法为美国环保局(USEPA)推荐的健康风险评价模型。具体来说, 该模型又根据污染物性质分为致癌物与非致癌物健康风险评价两类模型。由于本文研究对象氟化物为一种非致癌污染物, 故选择其中的非致癌健康风险评价模型进行数据处理, 模型公式(USEPA, 1991, 1992)为:

$$R_{ig}^n = (D_{ig} \times 10^{-6} / RfD_{ig}) / 70 \quad (1)$$

$$D_{ig} = C \times 2.2 \times T \times T_e / (70 \times T_a) \quad (2)$$

式中 R_{ig}^n 为非致癌污染物 i 经食入途径所致健康危害的个人平均年风险, a^{-1} (每年); D_{ig} 为非致癌污染物 i 经食入途径的单位体重日均暴露剂

量, $mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$; RfD_{ig} 为非致癌污染物 i 的食入途径参与剂量, $mg^{-1}(kg \cdot d)^{-1}$; 70 为人类平均寿命, a (年); 根据相关文献(覃忠书和黎明强, 2008; 黄艳红等, 2010; 刘俊岭等, 2010)对风险评价过程中涉及的参数进行取值: T 取 $365 d \cdot a^{-1}$, T_e 非致癌物 = 30 a, 日均饮水量为 2.2 L, 人均体重为 70 kg, T_a 非致癌物质 = $30 \times 365 d$; 氟化物食入途径参与剂量 $0.06 mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$ 。

2.2 结果与分析

永城市各乡镇浅层地下水氟化物平均浓度见表 1(李绍生等, 2011), 将表 1 氟化物平均浓度数据代入上述模型进行计算, 得出各乡镇浅层地下水氟化物所致平均个人健康年风险(表 2)。

表 1 永城市各乡镇浅层地下水中氟化物平均浓度
Tab.1 Average concentrations of fluoride in shallow groundwater of the towns in Yongcheng

乡镇	城厢	刘河	陈官庄	高庄	演集	黄口	新桥	候岭
样品个数	5	5	4	5	8	4	2	7
氟化物平均浓度 ($mg \cdot L^{-1}$)	2.53	1.90	1.65	1.92	1.60	1.23	2.10	1.67

表 2 永城市各乡镇浅层地下水氟化物所致平均个人健康年风险 (a^{-1})

Tab.2 Average health risks of fluoride in shallow groundwater of the towns in Yongcheng

乡镇	城厢	刘河	陈官庄	高庄	演集	黄口	新桥	候岭
平均个人年风险	2.01E-08	1.51E-08	1.31E-08	1.52E-08	1.27E-08	9.76E-09	1.67E-08	1.33E-08

由表 2 可知, 永城市各乡镇浅层地下水中氟化物所致平均个人健康年风险从小到大依次为城厢、新桥、高庄、刘河、候岭、陈官庄, 演集和黄口。全市各乡镇浅层地下水氟化物所致平均个人健康年风险均处在 $1E-08 \sim 2E-08$, 即每年每亿人口中有 1~2 人(概率)因浅层地下水氟化物致病致死, 低于国际辐射防护委员会(ICRP)推荐的有毒有害物质健康危害风险最大可接受水平($5.0E-05 \cdot a^{-1}$) (黄艳红等, 2010)。对李绍生等(2011)所做的实地问卷调查数据分析可知, 城厢、新桥、高庄、刘河、候岭、陈官庄, 演集和黄口氟骨病实际犯病率分别为 5.63%、1.37%、4.01%、2.51%、2.51%、0, 0 和 0.52%。将上述运用模型计算所得各乡镇浅层地下水氟化物所致个人健康年风险理论值与对应各乡镇氟骨病实际犯病率相比较, 发现两者具有较好的相关性, 相关系数 $R=0.73076$ (图 2), 说明该评价模型所计算的理论与实际情况具有很好的一致性, 证明了该评价模型具有较好的科学性和实用性。需要说明的是, 计算所得各

乡镇浅层地下水氟化物所致个人健康年风险明显低于对应各乡镇氟骨病的实际犯病率, 原因可能来自多个方面: 首先, 地下水健康年风险为居民在一年中饮用该水质地下水犯病或者致死的概率, 而实际犯病率则是居民长期饮用该种水质地下水所造成的结果, 所以从这个角度来说, 两者在数值上存在数量级的差别是正常的; 其次, 风险评价只考虑了通过饮水途径摄入的氟, 而实际氟进入人体是多渠道的; 另外, 风险评价模型中不考虑个体差异、地区差异等因素, 将氟化物摄入途径参与剂量统一规定为 $0.06 mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$ 是不合理的, 适合该研究区的氟化物摄入途径参与剂量值还有待进一步深入研究。

3 氟化物富集原因分析

陈顺胜等(2013)对商丘市浅层地下水调查和监测所得数据显示, 商丘市各县区浅层地下水氟化物均有超标, 为主要的超标项目之一, 其中以永城市为最甚, 超标率高达 90%(图 3); 龚建

师等(2010)在研究淮河流域地氟病环境水文地质条件中给出了淮河流域地氟病的粗略分布范围,可以看出商丘市地氟病主要集中分布在商丘东南部。为了找出永城市浅层地下水氟富集的主要原因,我们从基岩出露情况、地形、地下水盖层岩性三个方面将永城市与商丘市的其他各县区进行比较分析。

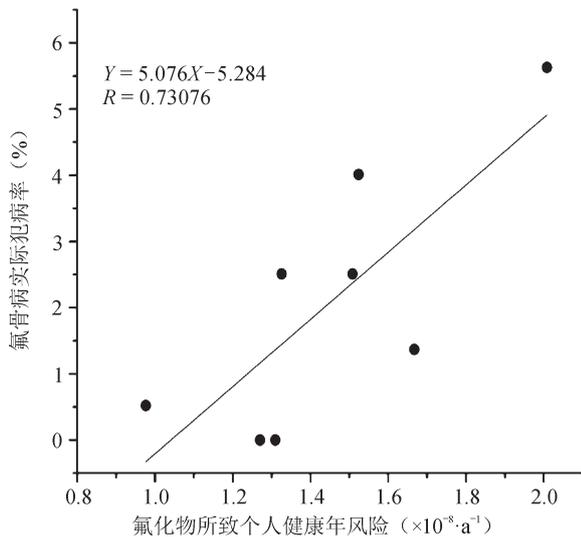


图2 氟化物所致个人健康年风险与氟骨病实际发病率相关性

Fig.2 The relevance between average health risk of fluoride and the actual attack rate of osteofluorosis

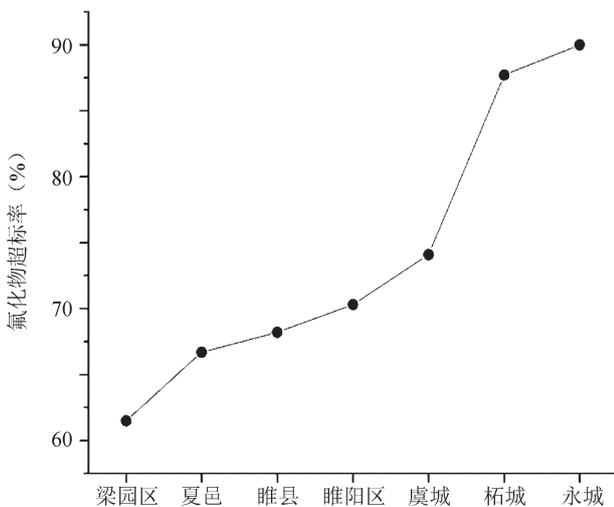


图3 商丘市各地区浅层地下水氟化物超标率

Fig.3 The exceed standard rate of fluoride in shallow groundwater in Shangqiu

3.1 基岩与氟富集

前人研究显示同地区的基岩中氟的含量要比地下水中的氟含量高许多倍,岩石风化后氟可

以被地下水溶解,这就意味着岩石是地下水中氟的一个主要来源(龚建师等,2010),基岩中氟的富集程度可能直接影响着该区地下水中氟含量的高低。氟在岩浆中是以挥发组分存在,挥发组分由于其熔点低,往往到岩浆分异晚期才慢慢结晶下来,所以岩浆分异晚期形成的酸性岩相对于早期结晶的基性岩氟含量要高很多。从商丘市50万地质图(图4)上发现,整个商丘市只有永城市有一定的基岩出露。岩性为:上寒武统一下奥陶统三山子组白云岩、燧石;白垩纪花岗斑岩、黑云花岗斑岩、斜长花岗斑岩,钾长花岗斑岩。由上述分析可知,永城市出露的白垩纪几类花岗斑岩都是重要的氟化物载体,在地表易于遭受风化,又加之商丘市河流总体流向为西北向东南(永城境内部分河流从北部基岩区流向南部地区)(图4),基岩遭受风化后,氟化物随地表径流迁移赋存于低洼处,并逐步往地下水中富集,导致地下水中氟化物含量升高。这是永城市浅层地下水氟化物高于其他县区的主要原因之一。

3.2 地形与氟富集

商丘市地形图上显示,商丘市呈现西北高、东南低的地形,高差在30 m左右,自然坡降1/4500~1/6000。根据前人研究,商丘浅层地下水水位也表现出西北高东西低的状态,区域地下水流向基本同地形倾斜方向一致(李贵明,2008)。从图5地形图看出,永城市为商丘地区的最低点即地形上的洼地,同时商丘市河流总体流向为西北向东南(图4),所以永城市既是地表径流的排泄区又是地下水的排泄区。有研究认为(李绍生等,2011;赵伟,2011):(1)区域内地表水会将岩石分化分离出的氟以及土壤中的氟通过地表径流搬运到低洼处堆积,然后随地表水下渗进入地下水;(2)地下水从补给区向排泄区径流的过程中,在水岩作用和蒸发浓缩的共同作用下,氟化物不断积累增加;(3)洼地由于地下水埋深较浅,蒸发强烈而加快地下水的浓缩,使得地下水中氟化物浓度升高。上述机理与过程说明了地形也是导致永城市浅层地下水氟富集的一个主要原因。

3.3 盖层岩性与氟富集

商丘市浅层地下水盖层岩性分布如图6所示(陈玉茹和马传明,2013),其中永城市浅层地

下水盖层岩性粒度总体最细, 以亚粘土、亚砂土为主。同一地区不同岩性的地下水盖层中往往富集的氟化物差别很大, 从大到小依次为粘土、亚粘土、亚砂土、极细砂、细砂、细中砂、粗砂(何世春, 1990)。主要原因是细粒的沉积物透水性差, 径流滞缓, 有利于氟化物储存, 同时又可使岩层或土层中的氟化物充分溶解; 再者, 细粒沉积物表面积大, 吸附能力强, 有利于氟化物等盐类的

保存, 而粗粒则因透水性好, 氟易于迁移; 盖层沉积物中氟化物浓度的升高将为地下水中氟化物含量上升提供条件。通过商丘地区浅层地下水盖层岩性对比可知, 永城市浅层地下水盖层岩性以粘粒为主也是造成其氟富集的一个重要因素。另外, 地下水的温度、pH 值、以及地下水中其他离子的浓度也是影响氟富集的因素(张威等, 2004)。

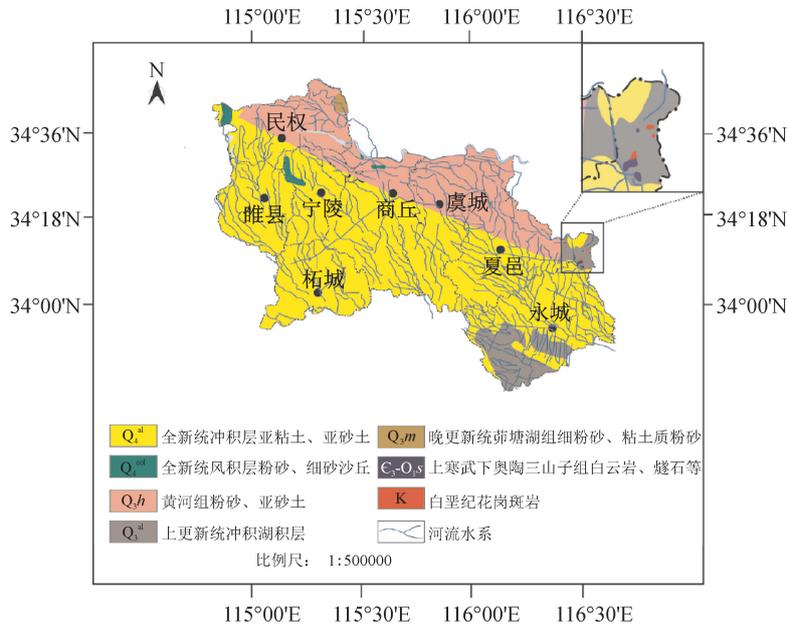


图 4 商丘地质及水系图
Fig.4 Geologic and river system map of Shangqiu

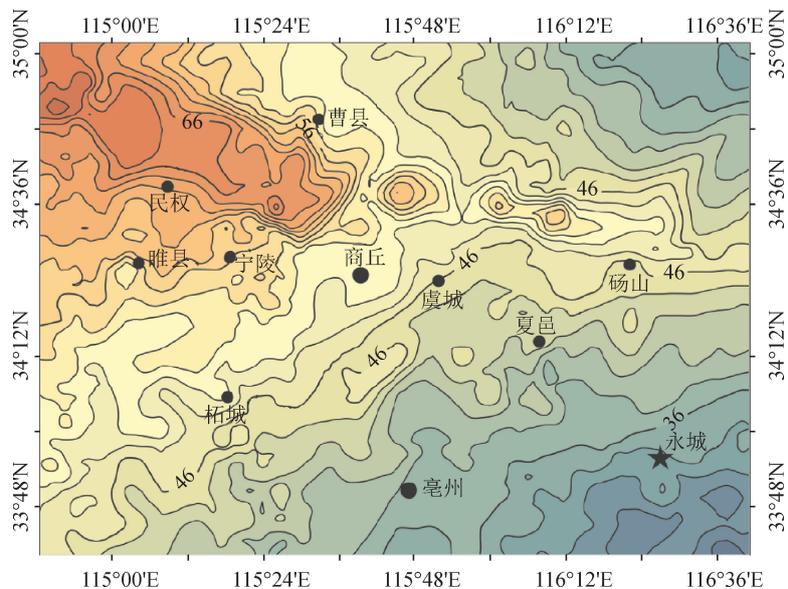


图 5 商丘市地形图
Fig.5 Topographic map of Shangqiu

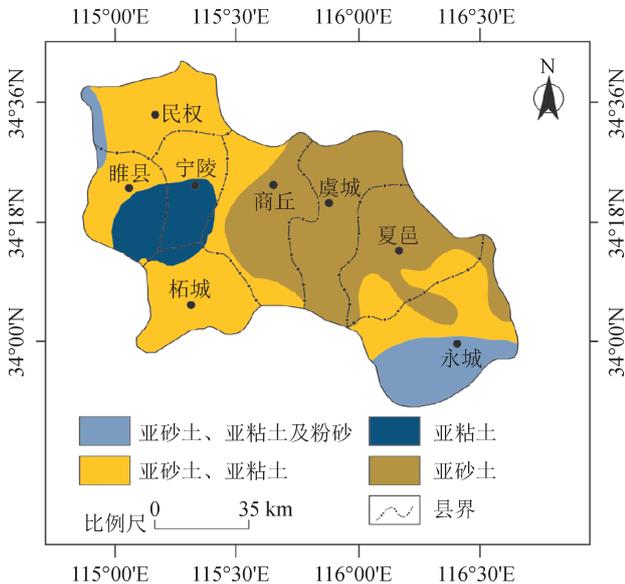


图6 商丘市浅层地下水盖层岩性分布图
Fig.6 Cover layer lithology distribution map of shallow groundwater in Shangqiu

4 结论

通过永城市浅层地下水氟化物对当地居民的健康风险评价,以及对永城市氟化物富集因素的分析,得出以下结论:

(1) 永城市各乡镇浅层地下水氟化物所致个人健康年风险大小依次为城厢、新桥、高庄、刘河、候岭、陈官庄,演集和黄河口,数值上均处在 $1E-08 \sim 2E-08$,即每年每亿人口中有1~2人(概率)因氟化物致病致死。(2) 永城市各乡镇浅层地下水氟化物所致居民个人健康年风险与对应乡镇氟骨病的实际发病率具有较高的相关性,说明该评价模型理论计算值与实际情况具有较好的一致性,证明了该评价模型具有较高的科学性和实用性。(3) 永城市各乡镇浅层地下水氟化物所致个人健康年风险普遍低于对应乡镇的实际发病率,除客观原因外,也可能是风险评价模型中不考虑个体差异、地区差异等因素将氟化物摄入途径参与剂量统一规定为 $0.06 \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 所造成的,适合研究区的氟化物摄入途径参与剂量值还有待进一步深入研究。(4) 基岩风化释放氟、地形低洼、浅层地下水盖层岩性等三方面可能为研究区氟富集的主要因素。

参考文献

边归国. 2008. 无机氟化物对人体健康影响机理研究新进展[J]. *化工生产与技术*, 15(5):13-16. [Bian G G. 2008. New

progress of mechanism research on influence of fluoride to human body health [J]. *Chemical Production and Technology*, 15(5): 13-16.]

陈顺胜, 郑华山, 张海忠. 2013. 商丘市浅层地下水环境质量调查分析[J]. *治淮*, (12): 14-15. [Chen S S, Zheng H S, Zhang H Z. 2013. Investigation and analysis on the environmental quality of shallow groundwater in Shangqiu City [J]. *Harnessing the Huaihe River*, (12): 14-15.]

陈玉茹, 马传明. 2013. 商丘市浅层地下水易污性评价[J]. *安全与环境工程*, 20(1): 41-44. [Chen Y R, Ma C M. 2013. Shallow groundwater vulnerability assessment in Shangqiu City [J]. *Safety and Environmental Engineering*, 20(1): 41-44.]

郜红军, 张显晨, 张正竹, 等. 2010. 安徽省饮用水中氟化物含量及健康风险分析[J]. *中国环境科学*, 30(4): 464-467. [Gao H J, Zhang X C, Zhang Z Z, et al. 2010. Fluoride levels and its implications for health risk in drinking water in Anhui Province [J]. *China Environmental Science*, 30(4): 464-467.]

龚建师, 叶念军, 葛伟亚, 等. 2010. 淮河流域地氟病环境水文地质因素及防病方向的研究[J]. *中国地质*, 37(3): 633-639. [Gong J S, Ye L J, Ge W Y, et al. 2010. The relationship between fluorine in geological environment and endemic fluorosis in Huaihe River Basin [J]. *Geology in China*, 37(3): 633-639.]

何世春. 1990. 氟的富集规律[J]. *华东地质学院学报*, 13(1):88-97. [He S C. 1990. The concentrate law of flourine [J]. *Journal of East China College of Geology*, 13(1): 88-97.]

黄艳红, 常薇, 何振宇. 2010. 武汉市农村地区地下水健康风险评价[J]. *环境与健康杂志*, 27(10): 892-894. [Huang Y H, Chang W, He Z Y. 2010. Health risk assessment of rural groundwater in Wuhan, Hubei [J]. *Journal of Environment and Health*, 27(10): 892-894.]

李贵明. 2008. 河南省商丘市浅层地下水水质污染分区[C]. 中国煤炭学会矿井地质专业委员会 2008 年学术论坛. 中国甘肃兰州. [Li G M. 2008. Shallow groundwater quality pollution partition of Shangqiu, Henan [C]. China Coal Society, Academic BBS Mine Geology Professional Committee in 2008. Lanzhou of Gansu, China.]

- 李静,谢正苗,徐建明. 2006. 我国氟的土壤环境质量指标与人体健康关系的研究概况[J]. *土壤通报*, 37(1): 194-199. [Li J, Xie Z M, Xu J M. 2006. Research progress in the relationship between soil environmental quality index of fluorine and human health in China [J]. *Chinse Journal of Soil Science*, 37(1): 194-199.]
- 李绍生,刘培云,马勇光,等. 2011. 永城地氟病区氟的地球化学环境研究[J]. *河南科学*, 29(3): 357-361. [Li S S, Liu P Y, Ma Y G, et al. 2011. Study on geochemical environment of fluorine in Yongcheng fluorosis areas [J]. *Henan Science*, 29(3): 357-361.]
- 刘俊玲,刘正丹,王怀记. 2010. 武汉农村饮用地下水砷、氟化物、硝酸盐含量及其健康风险评价[J]. *卫生研究*, 39(1): 112-113. [Liu J L, Liu Z D, Wang H J. 2010. Contents of arsenic, fluoride, nitrate and the health risk assessment of drinking groundwater in rural areas of Wuhan [J]. *Journal of Hygiene Research*, 39(1): 112-113.]
- 覃忠书,黎明强. 2008. 某农村饮用水源水健康风险评价[J]. *现代预防医学*, 35(8): 1416-1417. [Tan Z S, Li M Q. 2008. Health risk assessment of drinking water supply sources in a village [J]. *Modern Preventive Medicine*, 35(8): 1416-1417.]
- 徐凤梅,余卫东,康邵钧. 2006. 商丘市近44年蒸发量变化及其影响因子分析[J]. *气象科技*, 35(4): 500-502. [Xu F M, Yu W D, Kang S J. 2006. Evaporation variation and its relationship with meteorological factors in Shangqiu from 1961 to 2004 [J]. *Meteorological Science and Technology*, 35(4): 500-502.]
- 许可,冯翠红,魏永霞. 2010. 永城市水源地潜水含水层防污性能评价[J]. *人民黄河*, 32(6): 58-60. [Xu K, Feng C H, Wei Y X. 2010. Evaluation on the anti fouling property of the water source in Yongcheng City [J]. *Yellow River*, 32 (6): 58-60.]
- 许猛,周洋,许青松,等. 2012. 永城市煤炭开采与加工对地下水的污染及其防治措施[J]. *河南水利与南水北调*, (6):62-63. [Xu M, Zhou Y, Xu Q S, et al. 2012. The groundwater is polluted by coal mining and processing and the control measures [J]. *Henan Water Resources & South-to-North Water Diversion*, (6): 62-63.]
- 臧红霞,祝康,祝芳. 2010. 永城市浅层地下水水环境分析与评价[J]. *治淮*, (12): 29-31. [Zang H S, Zhu K, Zhu F. 2010. Analysis and evaluation of shallow groundwater in Yongcheng City [J]. *Harnessing the Huaihe River*, (12): 29-31.]
- 张威,傅新锋,张甫仁. 2004. 地下水中氟含量与温度、pH值、 $(Na^+K^+)/Ca^{2+}$ 的关系——以河南省永城矿区为例[J]. *地质与资源*, 13(2): 109-111. [Zhang W, Fu X F, Zhang F R. 2004. The relationship between the high fluorine content of groundwater and the pH value, water temperature and the ratio of $(Na^+K^+)/Ca^{2+}$: A case study of Yongcheng mine area [J]. *Geology and Resources*, 13(2): 109-111.]
- 赵伟. 2011. 地形地貌对豫东平原浅层高氟地下水分布的控制[J]. *湖南环境生物职业技术学院学报*, 17(2): 22-25. [Zhao W. 2011. Yudong Plain topography controls the distribution of high-fluorine groundwater [J]. *Journal of Hunan Environment-Biological Polytechnic*, 17(2): 22-25.]
- USEPA. 1991. Risk assessment guidance for superfund volume I humanhealth evaluation manual (Part B) [R]. EPA/540/R-89/003.
- USEPA. 1992. Guidelines for exposure assessment [R]. FRL-4129-5.