

南方 6 省稻米总汞含量调查及其膳食暴露评估

宋 雯¹, 陈志军^{2*}, 朱智伟³, 钱永忠², 王 敏², 徐辰武¹

(1.扬州大学农学院生物统计与试验设计教研室,江苏 扬州 225009;2.中国农业科学院农业质量标准与检测技术研究所/农产品质量与食品安全重点开放实验室,北京 100081;3.中国水稻研究所,杭州 310006)

摘 要:为评价中国南方 6 省稻米中总汞污染现状,于 2009 年在江西、湖北、湖南、广东、广西和四川 6 省抽样检测了 1 321 份稻米样品,结合中国居民 20 个性别年龄组人群的稻米消费量和体重信息,采用非参数概率方法对稻米中总汞的膳食暴露量进行了评估。总汞含量采用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)测定,检出限(LOD)为 0.000 8 mg·kg⁻¹。结果表明,稻米的总汞含量在地区间存在着差异,虽然有 76.2%的样本总汞含量(0.000 8~0.063 4 mg·kg⁻¹)高于检出限,但仅有 2.3%的样本超出了最高限量(ML 0.02 mg·kg⁻¹)。将评估结果比照 JECFA 推荐的总汞暂定每周耐受摄入量(PTWI)5 μg·(kg bw)⁻¹,我国居民食用这 6 省稻米产生的汞暴露风险较小。但在 P99.9 的高百分位水平下,14 岁以下人群的摄入量相对较高,占 PTWI 的 41.5%~62.9%,其中 2~4 岁儿童和 4~7 岁男童的摄入量占 PTWI 的 60%以上,潜在风险较大。建议应对稻米中重金属汞的含量进行追踪监测。

关键词: 稻米;总汞;膳食暴露;概率评估

中图分类号:X820.4 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2011)05-0817-07

Survey and Dietary Exposure Assessment of Total Mercury in Milled Rice Farmed in 6 Provinces of Southern China

SONG Wen¹, CHEN Zhi-jun^{2*}, ZHU Zhi-wei³, QIAN Yong-zhong², WANG Min², XU Chen-wu¹

(1. Group of Biostatistics and Experiment Design, College of Agriculture, Yangzhou University, Yangzhou 225009, China; 2. Institute of Quality Standard & Testing Technology for Agro-Product/Key Laboratory of Agro-product Quality and Safety, Chinese Academy of Agricultural Sciences, Beijing 100081, China; 3. China National Rice Research Institute, Hangzhou 310006, China)

Abstract: The study aims to investigate the occurrence of total mercury in milled rice from 6 provinces of Southern China during harvest in 2009, and determine the dietary exposure of target population using a non-parameter probabilistic model with information on rice consumption and body weight. Altogether 1 321 milled rice samples were collected from Jiangxi, Hubei, Hunan, Guangdong, Guangxi and Sichuan Provinces. Total mercury was measured by inductively coupled plasma-mass spectrometry(ICP-MS), and the limit of detection(LOD) for it was 0.000 8 mg·kg⁻¹. The analytical results showed that 76.2% of the samples contained detectable concentrations of total mercury, which ranged from 0.000 8 to 0.063 4 mg·kg⁻¹, but levels were generally low, with only 2.3% of the samples having concentrations above 0.02 mg·kg⁻¹, the maximum level(ML). On the other hand, there was an apparent regional difference found for the concentrations of total mercury in milled rice. The provisional tolerable weekly intake(PTWI) of mercury, as recommended by Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives(JECFA) is 5 μg·(kg bw)⁻¹. The estimated exposure values for populations of interest were compared to the PTWI. For the relevant population, this study confirmed the low probability of health risks from total mercury via the milled rice from the 6 provinces of Southern China. But exposure to total mercury for the population below 14 years old at P99.9 represented 41.5%~62.9% of the PTWI. While for children aged 2~4 years and boy aged 4~7 years, their estimated exposure at P99.9 were all over 60% of the PTWI. Considering the potential risk, this study suggests that a yearly monitoring program for total mercury in milled rice is necessary.

Keywords: milled rice; total mercury; dietary exposure; probabilistic assessment

收稿日期 2010-11-20

基金项目 国家科技支撑计划(2009BADB7B06)

作者简介 宋 雯(1984—),女,江苏常州人,博士研究生,主要从事农产品质量安全评估和试验统计学研究。E-mail: wengweng101@gmail.com

* 通讯作者 陈志军 E-mail: zhijunchen.yx@live.cn

重金属汞在环境中广泛分布,对人体并无已知的益处,且长期暴露会对人体产生慢性蓄积毒性,造成神经、心血管和免疫系统损害^[1]。胎儿对汞暴露引发的损害可能更为敏感^[2-3],而他们发育中的大脑尤其易受影响^[4]。在现实生活中,虽然环境中的汞元素含量会受采矿和施用含汞化肥等行为的影响而显著升高,并通过呼吸、饮水等途径进入人体,但相对于其他暴露途径,膳食是人体摄入汞元素的主要方式。为了保护人体的健康,IECFA 推荐用暂定每周耐受摄入量(PTWI)来衡量人体重金属的安全暴露量,并设定总汞的 PTWI 值为每周 $5 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$ ^[5]。

在水生系统中,由于微生物能把无机汞转化为人体更易吸收且毒性更强的有机汞^[6],已有的关于汞污染的研究大多把关注点放在水产品上^[7-9]。但在中国的饮食结构中,稻米的消费量在总膳食中所占的比重是相当大的^[10],且水稻的栽培模式使重金属汞在稻米中的富集成为可能^[11],因此有必要对稻米汞污染的现状进行膳食暴露评估。

以往我国对总汞摄入量的研究大都基于总膳食调查开展。李筱薇等综合中国 3 次总膳食研究的数据(1990,1992 和 2000 年),以成年男子为例,得出了中国各地区膳食总汞的摄入量有所下降的结论^[12]。Stephen 等在 2000 年通过对香港中学生的总膳食研究,发现其总汞的暴露量低于 PTWI,膳食暴露的风险较小^[13]。上述研究都是基于总膳食调查展开的,关注的人群较少,对单个食品或初级农产品的专注度不够,且都是基于世卫组织推荐的点评估方法,对汞元素在食品或初级农产品中分布的变异性(variability)和评估结果的不确定性(uncertainty)的认识有待提高。

为此,本文特以江西、湖北、湖南、广东、广西和四川这 6 省的稻米为研究对象,结合中国居民稻米消费和体重数据,以非参数概率方法对 20 个性别年龄组人群的稻米总汞膳食暴露量进行评估,并将评估结果与以往总膳食研究得到的总汞摄入量信息进行了比较,以期对相关公共卫生政策和质量标准的制定提供有益的参考信息。

1 材料与方法

1.1 样本采集

本研究于 2009 年的收获季节,通过田间现场抽样和委托县农业主管部门抽样两种方式,分别在江西、湖北、湖南、广东、广西和四川各抽样 61、137、580、70、193 份和 280 份,共计 1 321 份稻谷样品,其

中:早稻 467 份,中稻 543 份,晚稻 311 份。据国家统计局的数据显示,2004—2008 年,上述 6 省水稻的播种面积占全国的 53.3%,产量占全国的 50.6%,其中又以湖南省的种植面积及其产量为最^[14]。因此,加大了在湖南省的采样比例。在对样品及样品包装检查无异常后,分为待检样、复检样两个样品入库待化学分析。

1.2 样品的前处理与测定

将稻谷经过出糙、磨精之后,得到精米,再将精米用小型粉碎机磨粉,过 40 目筛后贮于干净塑料瓶或塑料袋中备用。

消解过程参考国标 GB/T 5009.17—2003 中的湿法消解进行。称取 0.5 g 粉碎均匀的样品与 8.0 mL 硝酸溶液混合,加热至 110 °C 消化到 1 mL 左右,冷却后加入 2 mL 双氧水溶液,再经 110 °C 消化至 1 mL 左右,取下定容至 50 mL,上机待测。检测仪器使用美国赛默飞世尔公司生产的 ICP-MS(X Series)。

所建检测方法对稻米中总汞的回收率为 86%~111%。最低检测限(limit of detection, LOD)为 $0.000 8 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,定量限(limit of quantification, LOQ)为 $0.002 6 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

1.3 未检出值的处理方法

由于痕量数据的客观存在及检测方法和仪器的局限,污染物检测结果中常常含有未检出值。这些未检出值可能是真实的 0 值,但更有可能是低于 LOD 的痕量值。为了尽可能利用这部分信息,本文采用普遍使用的替代法来对部分未检出值进行处理,分别将未检出值用 0、1/2 LOD 和 LOD 值进行替换^[15-16]。

1.4 膳食暴露评估的其他数据来源

(1)按 GB 2715—2005 和 NY 861—2004 的规定,稻米中重金属汞污染的最高限量(maximum limit, ML)为 $0.02 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

(2)评估所需的中国居民体重数据来自于《中国居民营养与健康状况调查报告之三——2002 居民体质与营养状况》公布的第 4 次总膳食调查数据^[17];居民稻米消费量调查数据来自于《中国居民营养与健康状况调查报告之二——2002 膳食与营养素摄入状况》^[10]。为区分人群特征,本研究将这两套数据进行整合,把目标人群分为 20 个性别年龄组(表 1)。

1.5 膳食暴露评估模型

对膳食暴露量的估计主要从调查个体的消费量、体重和检测食物中污染物含量等数据着手,评估的方法主要分为定性和定量两类^[18],其基本计算公式为:

表1 目标人群体重及其稻米消费量

Table 1 Body weights and dietary intake of rice of the subpopulation

年龄/岁	体重/kg		日平均稻米消费量/g·d ⁻¹	
	男	女	男	女
2~4	14.06	13.48	116.8	115.3
4~7	18.20	17.61	154.9	137.5
7~11	25.98	25.12	199.0	182.8
11~14	36.22	36.39	229.5	205.5
14~18	50.58	47.81	266.1	207.5
18~30	62.52	52.85	266.9	224.9
30~45	64.42	55.73	272.6	240.2
45~60	62.71	56.59	271.5	235.2
60~70	60.48	53.51	236.2	209.4
70~80	57.33	49.80	222.7	192.7

$$y = x \cdot c / w \quad (1)$$

式中 y 代表个体每日摄入的危害物量 $\mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$; x 代表食物的消费量 $\text{g} \cdot \text{d}^{-1}$; c 代表食物中危害物的含量 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; w 代表个体的体重 kg 。

不难想象,在食物的品种和危害物种类较多时,膳食暴露量的估计并不像公式(1)所示的那样简单。

目前,粮农组织推荐的评估方法是取消费量的高百分位数 $x_{97.5}$ 和污染物的最高含量 $c_{\max}$,除以平均体重 w_{mean} 。这是一种为保护绝大多数人而采用的定性的点评估方法。显然,该方法忽视了消费量和污染物含量的变异性和抽样的不确定性,容易造成暴露量的高估,使评估的结果过于保守^[19]。本研究使用当前国际上普遍采用的概率评估方法^[20-22],用随机抽样模拟的方式估计我国各性别年龄组的稻米汞膳食暴露量。由于 JECFA 推荐用暂定每周耐受摄入量(PTWI)来衡量人体重金属的摄入安全,本文将公式(1)稍作调整,将右侧部分乘以系数 7,以此计算个体在 1 周期间的暴露量:

$$y = 7 \cdot x \cdot c / w \quad (2)$$

1.6 模型算法及实现

经典的概率评估方法大致可以分为参数和非参数两类。本文采用的方法属于后者,即将一个大样本容量的原始观察数据集作为经验分布,直接从中进行随机抽样^[23]。由于需要对变异性(人群中无法消除的固有差异)和不确定性(源于知识和技术的认知不足)分别进行定量描述,将模拟过程分为 U 步和 V 步,大致步骤如下:

①将公式(2)中等号右侧的各变量分别依其原始数据,定义成离散的均匀分布,以确保每个数据在有

放回抽样时有相同的概率被抽到^[23]。

②U 步:按 Bootstrap 方法^[24]从离散的均匀分布中抽出 Bootstrap 样本。

③V 步:对上述 Bootstrap 样本进行 n 次 Monte Carlo 抽样,按公式(2)计算出 $y_i (i=1, 2, \dots, n)$,并给出这 n 个数的均值、百分位数等统计量,对变量的变异性进行描述。

④对 U 步和 V 步进行 m 轮重复,收集每一轮 V 步所得的均值、百分位数等统计量,再计算 m 轮后各个统计量的置信区间,对抽样的不确定性进行描述。

本研究将 1 321 个稻米总汞含量的检测数据作为 c 的经验样本,各性别年龄组的稻米消费量 x 和体重信息 w 用点值给出。将 n 和 m 分别设置为 100 000 和 2 000,共进行了 $100\,000 \times 2\,000 = 2 \times 10^8$ 次模拟。V 步中考察的统计量分别为均值、P50、P75、P90、P95、P97.5、P99 和 P99.9 百分位数,U 步则给出相应各统计量的 90%置信区间。

以上模拟过程在 SAS/IML 环境下完成。

2 结果与分析

2.1 检测结果与分析

从江西、湖北、湖南、广东、广西和四川 6 省抽检的 1 321 份稻米样品的总汞检测结果(表 2)表明:由于检出限较低($0.000\,8\text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$),稻米中总汞的检出率较高,累计达 76.2%($0.000\,8 \sim 0.063\,4\text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$),不同地区间存在差异。其中以江西省的检出率最高(100%),广东省最低(37.1%)。但比照 $0.02\text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的 ML 值,仅有 2.3%的样本超出限量,仅涉及湖北和广西两省。用 1/2 LOD 替代未检出值,所有样品的平均总汞含量为 $0.004\,8\text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,中位数为 $0.002\,3\text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$,众数为 $0.000\,4\text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。6 省中,湖北、广西稻米的平均总汞含量较高,其他各省的稻米平均总汞含量在 $0.004\text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以下。

汇总 1 321 份稻米的总汞含量数据(众数<中位数<平均数),可知南方 6 省稻米的总汞含量分布呈高度右偏。且众数出现在小于 LOD 值的区域,这都提示我们需要妥善处理未检出值。只有在对不同处理方式的适合性进行评价的基础上择优选用,才能保证膳食暴露评估结果的准确性。

2.2 替代法处理未检出值的效果评价

为评价替代法 3 种处理方式的效果,本研究分别用 0、1/2 LOD 和 LOD 值替代未检出值,得到 3 个不同的汞含量样本。再依每个样本,对 20 个性别年龄组

表 2 1 321 份稻米样品总汞含量的检测结果(2009 年)

Table 2 Summary of concentrations for total mercury in 1 321 milled rice samples(in 2009)

省份	检出率/%	范围/mg·kg ⁻¹	平均数/mg·kg ⁻¹	中位数/mg·kg ⁻¹	众数/mg·kg ⁻¹	超出 ML 的样本数
江西省	100	0.001 7~0.009 0	0.003 7	0.003 3	0.002 6	0
湖北省	91.2	<LOD~0.047 3	0.012 3	0.012 9	<LOD	8
湖南省	69.5	<LOD~0.020 0	0.002 1	0.001 2	<LOD	0
广东省	37.1	<LOD~0.019 3	0.002 4	0.000 4	<LOD	0
广西省	88.1	<LOD~0.063 4	0.011 3	0.008 9	<LOD	23
四川省	79.3	<LOD~0.011 9	0.003 1	0.002 9	<LOD	0

注 在计算平均数时,所有未检出值以 1/2 LOD(0.000 4 mg·kg⁻¹)替代。

的膳食暴露量进行了模拟分析。限于篇幅,在此仅列出这 3 种处理下 30~45 岁男性的膳食暴露量模拟结果(表 3),以作比较。

前人研究认为:以 0 替代未检出值会低估暴露量,而以 LOD 值替代则会产生高估^[25]。本文的结果虽也呈现出这种趋势,但仅在对 P99 和 P99.9 估计时,效应较为明显,对其他百分位数的估计并无很大的影响。这可能是由于本研究的 LOD 值(0.000 8 mg·kg⁻¹)较低,且涉及的未检出值小于总量的 50%(23.8%)造成的。为此,本研究参照美国环境保护局的建议^[15],选择以 1/2 LOD 值替代未检出值进行暴露评估。

2.3 南方 6 省稻米中总汞的膳食暴露评估

表 4 展示了南方这 6 省稻米中总汞膳食暴露量的估计结果,给出了 20 个性别年龄组人群在各自摄入分布下的均数、P50、P75、P90、P95、P97.5、P99 和 P99.9 的估计值(以平均数表示)及其 90%的置信区间。其中,变异性即是以上述 7 个百分位数的估计值来衡量,而不确定性则以其置信区间来衡量。由表可见,与 JECFA 推荐的总汞的 PTWI 为 5 μg·(kg bw)⁻¹相比,南方这 6 省稻米中总汞的膳食暴露风险在可接受范围内,但仍有进一步降低的必要。

风险评估常将关注点放在 P99.9 上^[26]。本研究中,在 P99.9 呈现出高暴露的是 14 岁以下人群(2~14 岁),暴露量达 2.076~3.145 μg·(kg bw)⁻¹,占 PTWI 的 41.5%~62.9%,暴露的水平较高。其中 2~4 岁的男女儿童及 4~7 岁的男童面临的风险较大,分别为 3.054、3.145 和 3.129 μg·(kg bw)⁻¹,分别占 PTWI 的 61.1%、62.9%和 62.6%,应引起有关部门的重视。研究表明,14 岁以上人群面临的风险相对较小,P99.9 风险水平的暴露量介于 1.423~1.934 μg·(kg bw)⁻¹之间,占 PTWI 的 28.5%~38.7%。

在前人对化学污染物诸如重金属镉^[27]、农药^[28]等的风险评估中,常发现不同年龄层次的暴露量或风险,往往在性别间有着一定的差异。而本研究并未得到类似的结论,相反却发现:18~30、60~70、70~80 岁这 3 组人群的暴露量在性别间基本无差异。这可能意味着我国居民对稻米中总汞的膳食暴露风险并没有特别的性别指向。

本研究表明:18 岁以上的成年男子因消费南方地区稻米而产生的每周总汞暴露量的均值为 0.379 μg·(kg bw)⁻¹。比照 2000 年中国总膳食研究的结果^[12],在与本研究范围相近的南方二区,成年男子从谷类食

表 3 30~45 岁男性的稻米总汞周暴露量的平均数及 90%的置信区间

Table 3 Comparison of statistics on estimated weekly intake(mean and 90% confidence interval) of 30~45 year males for total mercury in milled rice calculated by 3 different treatments to replace values below the LOD.

百分位数	处理 1/μg·(kg bw) ⁻¹	处理 2/μg·(kg bw) ⁻¹	处理 3/μg·(kg bw) ⁻¹
P50	0.068(0.064~0.073)	0.068(0.065~0.074)	0.068(0.065~0.073)
P75	0.164(0.148~0.178)	0.164(0.148~0.178)	0.164(0.148~0.178)
P90	0.430(0.397~0.465)	0.430(0.397~0.464)	0.430(0.397~0.465)
P95	0.549(0.527~0.569)	0.549(0.530~0.569)	0.549(0.527~0.569)
P97.5	0.600(0.581~0.646)	0.600(0.581~0.646)	0.600(0.581~0.646)
P99	0.790(0.679~0.909)	0.792(0.679~0.909)	0.793(0.679~0.909)
P99.9	1.552(1.214~1.878)	1.556(1.214~1.878)	1.558(1.214~1.878)

注 处理 1 未检出值以 0 替代,处理 2 未检出值以 1/2 LOD 值替代,处理 3 未检出值以 LOD 值替代。

物消费中摄入的总汞含量的均值为 $3.75 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$, 约为 $0.417 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$ ($3.75 \mu\text{g} \cdot \text{d}^{-1} \times 7 \text{ d} / 63.0 \text{ kg}$)。结合中国南方居民日常的谷类消费基本以稻米为主的事实, 本文的结果从侧面表明, 稻米及其制品是谷类中总汞的主要来源。另外, 正处于生长发育阶段的 14~18 岁人群, 他们每周由稻米消费而产生的总汞暴露量的均值为 $0.442 \mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$, 显著地高于香港中学生每周从谷类及其制品中摄入的总汞含量 0.101

$\mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$ 。但这一差异主要是由两地膳食结构的客观差异所造成的, 并不能武断地归咎于南方这 6 省稻米的质量。

3 讨论

中国是稻米生产和消费大国, 以秦岭-淮河为界, 有南北两大稻区。基于水稻生产能力和矿藏储备的综合考虑, 本研究对南方稻区中的 6 个省(江西、湖北、

表 4 目标人群的稻米总汞周暴露量的估计

Table 4 Estimated weekly exposure to total mercury in milled rice for the populations of interest

年龄/岁	性别	周摄入量估计值的均数、百分位数及其 90% 的置信限/ $\mu\text{g} \cdot (\text{kg bw})^{-1}$							
		平均数	P50	P75	P90	P95	P97.5	P99	P99.9
2~4	男 male	0.764	0.134 (0.127~0.145)	0.321 (0.291~0.349)	0.844 (0.779~0.911)	1.077 (1.041~1.117)	1.177 (1.140~1.267)	1.554 (1.334~1.785)	3.054 (2.384~3.688)
	女 female	0.787	0.138 (0.131~0.149)	0.331 (0.299~0.359)	0.869 (0.802~0.938)	1.109 (1.072~1.150)	1.212 (1.174~1.305)	1.600 (1.373~1.838)	3.145 (2.455~3.797)
4~7	男 male	0.783	0.137 (0.130~0.148)	0.329 (0.298~0.357)	0.865 (0.798~0.933)	1.104 (1.066~1.144)	1.206 (1.168~1.298)	1.593 (1.366~1.829)	3.129 (2.443~3.778)
	女 female	0.719	0.126 (0.119~0.136)	0.302 (0.273~0.328)	0.793 (0.732~0.856)	1.013 (0.978~1.049)	1.106 (1.072~1.191)	1.461 (1.253~1.678)	2.871 (2.241~3.466)
7~11	男 male	0.705	0.124 (0.117~0.134)	0.296 (0.268~0.322)	0.778 (0.718~0.840)	0.993 (0.960~1.029)	1.085 (1.051~1.169)	1.433 (1.230~1.646)	2.816 (2.198~3.400)
	女 female	0.670	0.117 (0.111~0.127)	0.281 (0.255~0.306)	0.739 (0.683~0.798)	0.944 (0.912~0.978)	1.031 (0.999~1.110)	1.362 (1.168~1.564)	2.676 (2.089~3.230)
11~14	男 male	0.583	0.102 (0.097~0.111)	0.245 (0.222~0.266)	0.644 (0.594~0.695)	0.822 (0.794~0.852)	0.898 (0.870~0.967)	1.186 (1.017~1.362)	2.330 (1.819~2.813)
	女 female	0.520	0.091 (0.086~0.099)	0.218 (0.198~0.237)	0.574 (0.530~0.619)	0.732 (0.708~0.759)	0.800 (0.775~0.862)	1.057 (0.907~1.214)	2.076 (1.621~2.507)
14~18	男 male	0.484	0.085 (0.080~0.092)	0.203 (0.184~0.221)	0.534 (0.493~0.577)	0.682 (0.659~0.707)	0.746 (0.722~0.803)	0.984 (0.845~1.131)	1.934 (1.510~2.335)
	女 female	0.399	0.070 (0.066~0.076)	0.168 (0.152~0.182)	0.441 (0.407~0.476)	0.563 (0.544~0.583)	0.615 (0.596~0.662)	0.812 (0.697~0.933)	1.596 (1.246~1.927)
18~30	男 male	0.393	0.069 (0.065~0.074)	0.165 (0.149~0.179)	0.434 (0.400~0.468)	0.554 (0.535~0.574)	0.605 (0.586~0.651)	0.799 (0.685~0.917)	1.570 (1.225~1.895)
	女 female	0.392	0.069 (0.065~0.074)	0.164 (0.149~0.179)	0.432 (0.399~0.467)	0.552 (0.533~0.572)	0.603 (0.584~0.649)	0.796 (0.683~0.914)	1.564 (1.221~1.889)
30~45	男 male	0.389	0.068 (0.065~0.074)	0.164 (0.148~0.178)	0.430 (0.397~0.464)	0.549 (0.530~0.569)	0.600 (0.581~0.646)	0.792 (0.679~0.909)	1.556 (1.214~1.878)
	女 female	0.397	0.070 (0.066~0.075)	0.167 (0.151~0.181)	0.438 (0.404~0.473)	0.559 (0.540~0.579)	0.611 (0.592~0.658)	0.806 (0.692~0.926)	1.585 (1.237~1.913)
45~60	男 male	0.398	0.070 (0.066~0.076)	0.167 (0.152~0.182)	0.440 (0.406~0.475)	0.561 (0.542~0.582)	0.614 (0.594~0.661)	0.810 (0.695~0.930)	1.592 (1.243~1.922)
	女 female	0.382	0.067 (0.063~0.073)	0.161 (0.145~0.175)	0.422 (0.390~0.456)	0.539 (0.521~0.559)	0.589 (0.570~0.634)	0.778 (0.667~0.893)	1.528 (1.193~1.845)
60~70	男 male	0.359	0.063 (0.060~0.068)	0.151 (0.137~0.164)	0.397 (0.366~0.428)	0.506 (0.489~0.525)	0.553 (0.536~0.596)	0.731 (0.627~0.839)	1.436 (1.121~1.734)
	女 female	0.360	0.063 (0.060~0.068)	0.151 (0.137~0.164)	0.398 (0.367~0.429)	0.507 (0.490~0.526)	0.555 (0.537~0.597)	0.732 (0.628~0.841)	1.439 (1.123~1.737)
70~80	男 male	0.357	0.063 (0.059~0.068)	0.150 (0.136~0.163)	0.395 (0.364~0.426)	0.504 (0.487~0.522)	0.550 (0.533~0.593)	0.727 (0.624~0.835)	1.428 (1.115~1.724)
	女 female	0.356	0.062 (0.059~0.068)	0.150 (0.135~0.163)	0.393 (0.363~0.424)	0.502 (0.485~0.520)	0.548 (0.531~0.590)	0.724 (0.621~0.832)	1.423 (1.111~1.718)

湖南、广东、广西和四川)的稻米进行了抽检,以期高效真实地反映这一地区稻米重金属汞污染的现状,及膳食暴露的潜在风险,更好地保障人群健康。

膳食暴露评估作为对风险定性定量的系统工程,不可避免会有其不确定性。本研究的不确定性主要来源于模型和参数^[29]。本文运用 SAS 软件实现了 Monte Carlo 对数据变异性的量化,但 Monte Carlo 作为一种抽样方法,其本身也可能是不确定性的一个来源^[30],为此本文设置了 100 000 次 Monte Carlo 模拟以降低随机抽样的不确定性。根据 Efron 等的研究:500~2 000 次的 Bootstrap 足以给出一个可信的 95% 置信区间^[24]。为保证评估的精度,本文将 U 步的迭代次数设为较高的 2 000 次,而有关非参数概率方法中 U 步和 V 步的可靠迭代次数问题有待进一步研究。食用加工过程中污染物的降解通常会降低食用风险,但由于缺乏相关资料,本研究未能考虑加工因子对稻米中总汞含量的影响,这是本研究参数不确定性的主要来源。

将针对初级农产品的膳食暴露评估结果与总膳食研究的结果进行比较是本研究的一种尝试。两者在比较过程中,需获得目标人群的体重信息,以便将总膳食研究的摄入量单位($\mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$)与膳食暴露评估的单位 $[\mu\text{g}\cdot(\text{kg bw})^{-1}]$ 统一起来。为保证比较研究的可靠性,本文涉及的体重信息严格来自相应的总膳食研究资料^[12]。由于总膳食研究是基于人群消费的所有食品开展的,惯常将庞杂的食品归类后再展示结果,因而难以追踪到某一具体的初级农产品,在比较时仅能借由相关食品大类的贡献率,换算出人群摄入这类食品而产生的污染物暴露量。这虽为数据的直接比较带来了一定的难度,却有助于摸清某一类食品的主要污染源。本文即是通过与 2000 年中国总膳食研究结果的比较,明确了稻米及其制品是谷类中总汞的主要来源。与香港中学生总膳食研究结果的比较则表明,同一食品的污染物之所以会在地区间产生不同的暴露风险,除去食品本身污染程度的差异外,膳食结构的差异很可能是其主要原因。这进一步说明了研究要瞄准相关食品的高消费区域、相关污染物的重点防控区域及敏感性群体开展。

另外,考虑到本研究的地域指向性及重金属汞形态的特殊性,仍有若干问题需要在应用时加以注意或进一步完善。

首先,这 6 省稻米虽然粳籼并存,却仍是以种植粳稻为主,本研究 99.2% 的样本都是粳稻品种。但这

却并不意味着本研究的结论可以反映粳稻富集重金属汞的属性。要弄清粳稻与籼稻在重金属汞的富集上是否存在差异,还需要开展针对性的研究。可以明确的是:稻米中重金属汞的含量在地区间的确存在差异,这既可能是由区域间矿藏及工业生产的差异造成的,也可能与本研究的采样量有关。为了更好地摸清南方稻区乃至全国稻米中重金属汞的污染现状,调查工作的抽样规模和密度都有必要进一步加大,且布点应该更加均匀,更有针对性。

其次,调查工作需从对总汞的单一关注延伸,充分重视对甲基汞的监测。这是因为有机汞化合物对人体健康的损害较无机汞更为严重,且毒性极强的甲基汞是有机汞最常见的形态。JECFA 已在 2003 年把甲基汞的 PTWI 降低至 $1.6 \mu\text{g}\cdot(\text{kg bw})^{-1}$ ^[2]。中国也有必要对甲基汞污染引起重视,积极开展对稻米和其他食品中甲基汞含量的监测工作,量化甲基汞在总汞中所占的比例,以更有效地保障人群健康。

4 结论

本研究表明,属于中国南方稻区的江西、湖北、湖南、广东、广西和四川 6 省,其稻米的总汞污染情况总体较轻,仅 2.3% 的样本超出最大限量,消费这一区域稻米所产生的总汞暴露风险处在可接受范围内。但不同性别、年龄人群的健康风险有所不同,这与人群的膳食结构及敏感性有关。本研究中 14 岁以下人群(2~14 岁)为敏感性群体,其中 2~4 岁的儿童及 4~7 岁的男童面临的潜在风险较大,但暴露量都尚未超过 JECFA 推荐的总汞的 PTWI,说明目标人群食用这一地区的稻米,受总汞毒性影响不大。

参考文献:

- [1] 常元勋. 金属毒理学[M]. 北京:北京大学医学出版社, 2008:144-146.
CHANG Yuan-xun. Metal toxicology[M]. Beijing: Peking University Medical Press, 2008:144-146.
- [2] Safety evaluation of certain food additives and contaminants WHO Food Additive Series No. 52. Methylmercury (Addendum). WHO, 2004. <http://www.inchem.org/documents/jecfa/jecmono/v52je23.htm>.
- [3] Elemental mercury and inorganic mercury compounds human health aspects. Concise International Chemical Assessment Document 50. Geneva:WHO, 2003. <http://www.inchem.org/documents/cicads/cicads/cicad50.htm>.
- [4] Hamada R, Osame M. Minamata disease and other mercury syndromes [M]//Chang LW, Suzuki T. Toxicology of metals. 3rd Edition, New York: Lewis Publishers, 1996:337-351.

- [5] Joint Expert Committee on Food Additives(JECFA). Evaluation of Certain Food Additives and Contaminants. WHO Technical Report Series No. 776[R]. Geneva :WHO, 1989 :33-34.
- [6] Eisler R. Handbook of chemical risk assessment :Health hazards to humans, plants and animals. Vol. 1-Metals[M]. New York :Lewis Publishers, 2000 :313-409.
- [7] Storelli M M, Giacominielli-Stuffler R, Marcotrigiano G O. Total mercury in muscle of benthic and pelagic fish from the South Adriatic Sea(Italy) [J]. *Food Additives and Contaminants*, 1998, 15(8) :876-883.
- [8] Storelli M M, Giacominielli-Stuffler R, Storelli A, et al. Cadmium and mercury in cephalopod molluscs :Estimated weekly intake[J]. *Food Additives and Contaminants*, 2006, 23(1) :25-30.
- [9] Rodellar S, Fontcuberta M, Arques J F, et al. Mercury and methylmercury intake estimation due to seafood products for the Catalanian population(Spain)[J]. *Food Additives and Contaminants*, 2010, 27(1) :29-35.
- [10] 翟凤英, 杨晓光. 中国居民营养与健康状况调查报告之二 :2002 膳食与营养素摄入状况[M]. 北京 :人民卫生出版社, 2006 :21-23.
ZHAI Feng-ying, YANG Xiao-guang. A survey on the Chinese national health and nutrition :The national diet and nutrition in 2002[M]. Beijing :People's Medical Publishing House, 2006 :21-23.
- [11] 高大翔, 郝建朝, 李子芳, 等. 汞胁迫对水稻生长及幼苗生理生化影响[J]. 农业环境科学学报, 2008, 27(1) :58-61.
GAO Da-xiang, HAO Jian-chao, LI Zi-fang, et al. Effects of Hg stress on growth and physiological and biochemical characteristics of rice seedlings[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2008, 27(1) :58-61.
- [12] 李筱薇, 高俊全, 陈君石. 2000 年中国总膳食研究 :膳食汞摄入量[J]. 卫生研究, 2006, 35(3) :323-325.
LI Xiao-wei, GAO Jun-quan, CHEN Jun-shi. Chinese total diet study in 2000 :The dietary mercuric intakes[J]. *Journal of Hygiene Research*, 2006, 35(3) :323-325.
- [13] Stephen W C C, Ka P K, Joan C W Y, et al. Dietary exposure to antimony, lead and mercury of secondary school students in HongKong[J]. *Food Additives and Contaminants*, 2008, 25(7) :831-840.
- [14] 国家统计局数据库. 2010, 7. <http://219.235.129.58/welcome.do>.
Database of national bureau of statistics of China. 2010, 7. <http://219.235.129.58/welcome.do>.
- [15] Assigning values to non-detected/non-quantified pesticide residues in human health food exposure assessments. Washington, DC :Office of Pesticide Programs, US Environmental Protection Agency, 2000. <http://www.epa.gov/pesticides/trac/science/trac3b012.pdf>.
- [16] Second Workshop on Reliable Evaluation of Low-Level Contamination of Food :Report on a Workshop in the Frame of GEMS/Food-EURO, Kumbach, Federal Republic of Germany. Geneva :World Health Organization Regional Office for Europe(GEMS/Food-EURO), 1995. http://www.who.int/foodsafety/publications/chem/en/lowlevel_may1995.pdf.
- [17] 杨晓光, 翟凤英. 中国居民营养与健康状况调查报告之三 :2002 居民体质与营养状况[M]. 北京 :人民卫生出版社, 2006 :51-52.
YANG Xiao-guang, ZHAI Feng-ying. A survey on the Chinese national health and nutrition :the national health and nutrition in 2002[M]. Beijing :People's Medical Publishing House, 2006 :51-52.
- [18] Kroes R, Müller D, Lambe J, et al. Assessment of intake from the diet [J]. *Food Chemical Toxicology*, 2002, 40(2-3) :327-385.
- [19] Boon P E, Voet van der H, Klaveren van J D. Validation of a probabilistic model of dietary exposure to selected pesticides in Dutch infants[J]. *Food Additives and Contaminants*, 2003, 20(Suppl) :36-49.
- [20] Gibney M J, Voet van der H. Introduction to the Monte Carlo project and the approach to the validation of probabilistic models of dietary exposure to selected food chemicals[J]. *Food Additives and Contaminants*, 2003, 20(Suppl 1) :1-7.
- [21] Ferrier H, Nieuwenhuijsen M, Boobis A, et al. Current knowledge and recent developments in consumer exposure assessment of pesticides :A UK perspective[J]. *Food Additives and Contaminants*, 2002, 19 :837-852.
- [22] Paulo M J, Voet van der H, Jansen M J, et al. Risk assessment of dietary exposure to pesticides using a Bayesian method[J]. *Pest Management Science*, 2005, 61 :759-766.
- [23] Vose D. 2000. Risk analysis :A quantitative guide[M]. 3rd Edition, New York :Wiley, 2007 :418.
- [24] Efron B, Tibshirani R J. An introduction to the bootstrap[M]. New York :Chapman & Hall, 1993 :14-15, 275.
- [25] El-Shaarawi A H, Esterby S R. Replacement of censored data observations by a constant :An evaluation[J]. *Water Research*, 1992, 26(6) :835-844.
- [26] Choosing a percentile of acute dietary exposure as a threshold of regulatory concern. Washington, DC :Office of Pesticide Programs, U. S. Environmental Protection Agency, 2000. <http://www.epa.gov/pesticides/trac/science/trac2b054.pdf>.
- [27] Mirei U, Etsuko K, Yasushi S, et al. Cadmium exposure aggravates mortality more in women than in men[J]. *International Journal of Environmental Health Research*, 2006, 16(4) :273-279.
- [28] 张存政, 张心明, 田子华, 等. 稻米中毒死蜱和氟虫脒的残留规律及其暴露风险[J]. 中国农业科学, 2010, 43(1) :151-163.
ZHANG Cun-zheng, ZHANG Xin-ming, TIAN Zi-hua, et al. Degradation of chlorpyrifos and fipronil in rice from farm to dining table and risk assessment[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2010, 43(1) :151-163.
- [29] US Environmental Protection Agency. Risk assessment guidance for superfund Volume I :Human health evaluation manual(Part A)[R]. Washington, DC :Office of Emergency and Remedial Response, 1989 :6-47.
- [30] Waldo J de B, Voet van der H. MCRA, Release 6 a web-based program for Monte Carlo risk assessment. The Netherlands :Biometris and RIK-ILT, Wageningen, 2007. <https://mcra.rivm.nl/Documentation/Manual6.pdf>.