

某电解铝厂周边居民尿氟水平及儿童氟斑牙患病状况

江蓓¹, 黄大敏², 柳智豪¹, 杨晓波²

摘要: [目的] 观察某电解铝厂周边居民的尿氟水平与每日摄氟量之间的关系, 并探讨儿童氟斑牙与累计摄氟量之间的剂量效应关系。[方法] 于2013年7月选择广西某电解铝厂周边0.3 km, 1.3 km处分别选择3个和2个自然屯作为监测点1和2, 于铝厂3.5 km处的1个自然屯作为对照点(监测点3)。于各监测点分别随机抽取50名以上当地出生、生活且无职业氟暴露史的居民(共计388人)作为调查对象。问卷调查膳食摄入量; 收集其晨尿检测尿氟; 对所有6~12岁儿童由专科医生进行氟斑牙检查; 对各监测点空气、居民饮用水、农作物、蔬菜和肉类中的氟含量进行检测, 评估儿童累计摄氟量与儿童氟斑牙患病率之间的关系。[结果] 监测点1和2及对照点居民每日摄氟量分别为 (0.73 ± 0.13) 、 (0.70 ± 0.11) 、 (0.39 ± 0.03) mg/d, 差异有统计学意义($P < 0.05$); 上述3组人群尿氟浓度分别为 (1.80 ± 0.84) 、 (1.44 ± 0.86) 、 (0.71 ± 0.39) mg/L, 差异有统计学意义($P < 0.05$); 偏相关分析在控制年龄因素后, 人群尿氟浓度与每日摄氟量相关系数 $r = 0.441$ ($P < 0.05$); 在儿童累计摄氟量与儿童氟斑牙患病率的剂量效应关系研究中, 计算出儿童累计摄氟量的基准剂量(BMD)和基准剂量95%可信区间下限(BMDL)分别为1371.11 mg和572.98 mg。[结论] 该电解铝厂周边居民尿氟浓度及儿童氟斑牙发病率均增高, 可能与该厂排放污染物有关。

关键词: 氟; 尿氟; 氟斑牙; 剂量效应关系

Urinary Fluoride Levels and Childhood Dental Fluorosis Prevalence among Residents near an Aluminium Factory JIANG Bei¹, HUANG Da-min², LIU Zhi-hao¹, YANG Xiao-bo² (1.Department of Environmental, Occupational and Radiation Protection, Baise Center for Disease Control and Prevention, Guangxi 533000, China; 2.Department of Occupational and Environmental Medicine, School of Public Health, Guangxi Medical University, Guangxi 530021, China). Address correspondence to Yang Xiao-bo, E-mail: yxbo21021@163.com • The authors declare they have no actual or potential competing financial interests.

Abstract: [Objective] To evaluate the relationship between the urinary fluoride concentrations of residents around an electrolytic aluminum factory and their daily intake of fluorine, and the dose-effect relationship between the dental fluorosis of children and their cumulative intake of fluorine. [Methods] Three villages at 0.3 km and two villages at 1.3 km away from an electrolytic aluminum factory in Jiangxi were selected as monitoring site 1 and 2, and another village at 3.5 km away as control site (monitoring site 3). A total of 388 local residents without fluoride exposure (at least 50 residents from each site) were randomly selected to fill a questionnaire on dietary intake and collect their morning urine samples. A dental fluorosis check was performed by specialists to children aged between 6 and 12 years. Fluorine contents in air, drinking water, crops, vegetables, and meat at each monitoring site were also detected to calculate the respondents' daily fluorine intake. The relationship between children's cumulative fluorine intake and the prevalence rate of dental fluorosis were evaluated. [Results] The daily fluorine intakes of residents at monitoring site 1, 2, and 3 were (0.73 ± 0.13) , (0.70 ± 0.11) , and (0.39 ± 0.03) mg/d, respectively, and there were significant differences ($P < 0.05$). The urinary fluoride concentrations were (1.80 ± 0.84) , (1.44 ± 0.86) , and (0.71 ± 0.39) mg/L, respectively, and there were also significant differences among the residents of the three monitoring sites ($P < 0.05$). After adjusting for age, the correlation coefficient between urinary fluoride concentration and daily fluorine intake was 0.441 ($P < 0.05$). The benchmark dose (BMD) and benchmark dose lower confidence limit (BMDL) of children's cumulative fluorine intake were calculated as 1371.11 mg and 572.98 mg respectively. [Conclusion] The fluoride released into surrounding area by the electrolytic aluminum factory might be associated with increased urinary fluoride concentration of local population and elevated dental fluorosis among children.

Key Words: fluoride; urinary fluoride; dental fluorosis; dose-effect relationship

DOI: 10.13213/j.cnki.jeom.2015.14303

[作者简介] 江蓓(1974—), 女, 学士, 副主任医师; 研究方向: 环境与职业卫生监测与评价; E-mail: bsdcdejiang@163.com

[通信作者] 杨晓波, E-mail: yxbo21021@163.com

[作者单位] 1. 百色市疾病预防控制中心环境、职业与放射卫生科, 广西 533000; 2. 广西医科大学公共卫生学院职业卫生和环境卫生教研室, 广西 530021

氟是人体必需的微量元素之一,主要通过饮水、食物和空气等途径进入人体,适量的氟有利于骨骼的钙磷沉积,而长期大量摄入氟则可导致氟斑牙或氟骨病^[1]。

由于地壳表面化学元素分布的不均匀性以及各地人群生活饮食习惯的差异,地方性氟中毒的病区类型主要为饮水型病区及燃煤污染型病区^[2]。而随着现代工业的发展,涉氟企业排放到环境空气中的氟化物可极大增加周边地区居民的氟暴露机会。为研究氟化物污染对人群的健康影响,本项目拟对广西某电解铝厂周边居民进行流行病学调查,通过评估人群外环境中氟暴露量、检测居民尿氟浓度以及诊断周边儿童氟斑牙患病率,从三个层面探讨环境氟暴露对人群健康的影响,并通过比较各监测点居民摄氟量与尿氟的差异,分析环境氟暴露量与居民尿氟浓度之间的关系,同时观察儿童氟斑牙患病率与累计摄氟量之间的剂量效应关系。

1 材料与方法

1.1 调查地点

位于广西百色市右江区的某电解铝厂正式投产于2002年12月份,其生产过程中产生的主要污染物有烟尘、SO₂和氟化物等。于2013年7月,选择电解铝厂周边0.3~1.3 km范围常年主导风向下风侧的5个自然屯作为监测点,其中距离铝厂0.3 km处的3个自然屯作为监测点1,距离铝厂1.3 km处的2个自然屯作为监测点2;并于铝厂3.5 km处,常年主导风向上风侧的1个自然屯作为对照点(监测点3),各监测点居民生活水平、交通、教育、医疗条件、自然环境等基本一致。

1.2 调查对象

各调查屯分别随机抽取50名当地出生、成长、无职业氟暴露史,且年龄≥6岁者作为调查对象,6个屯共388人[监测点1:197人;监测点2:134人;监测点3(对照点):57人]纳入本次调查,调查对象均无饮砖茶习惯,家庭饮用水为井水或自来水。3个监测点6~12岁的儿童由专科医生按照WS/T 208—2011《氟斑牙诊断》标准进行氟斑牙诊断^[3],按照累计摄氟量(累计摄氟量=每日摄氟量×365 d×暴露年数)的不同将3个监测点的儿童分为不同的接触组,分别统计各组儿童的氟斑牙患病率^[4]。

1.3 空气中的氟化物浓度检测

每个监测点分别设置1个空气监测点,监测各点

氟化物24 h平均浓度,并于每天2:00; 8:00; 14:00; 20:00时各测定一次1 h平均浓度,连续监测7 d,比较各监测点空气中氟化物1 h平均浓度和24 h平均浓度,空气氟测定按照中华人民共和国环境保护行业标准HJ/T 67—2001《大气中固定污染源 氟化物的测定 离子选择电极法》进行检测^[5],该法的检出限为0.1 μg/m³,平均加标回收率为98.5%,相对标准偏差(RSD)为3.5%。

1.4 膳食调查

由经过统一培训的调查员入户调查,根据WS/T 87—1996《人群总摄氟量卫生标准》中附录A总摄氟量的调查方法^[6],对100名调查对象(监测点1、2、3分别为48人、33人、19人),进行24 h回顾法膳食调查,收集其食物和营养素摄入数据,并计算居民平均每人每天各类食物摄入量,同时询问调查对象每天饮水量。根据上述结果计算每日总摄氟量。

1.5 食品中氟化物含量检测

根据膳食调查结果,由膳食调查员采集每个屯膳食调查户中各类食物1~6份,每份约250~500 g,分别置于清洁塑料袋中冷藏储存后送检,按照GB/T 5009.18—2003《食物中氟的测定》进行检测^[7]。该方法的检出限为0.1 mg/kg,平均加标回收率为101%,RSD为5.6%。

1.6 饮用水中氟化物含量检测

按照GB/T 5750.2—2006《生活饮用水标准检验方法水样的采集与保存》在每个行政村的四周及中部用清洁干燥的聚乙烯塑料瓶采集被调查对象家中管网末梢水或井水水样50 mL,其中监测点1和2共采集19份水样,对照点采集6份水样,按照GB 5750—2006《生活饮用水标准检验方法》对水中氟化物进行检测^[8-9];该方法的检出限为0.2 mg/L,平均加标回收率为103%,RSD为2.7%。

1.7 尿样采集及尿氟浓度测定

由膳食调查员用清洁干燥的聚乙烯塑料瓶采集被调查对象的晨尿50~100 mL,加盖放置于4℃冰箱中待测,并按WS/T 89—1996《尿中氟化物的测定 离子选择电极法》进行尿氟浓度测定^[10],该法的检出限为0.05 mg/L,平均加标回收率为103%,RSD为2.65%。

1.8 统计学分析

用Excel 2007对数据进行录入,采用SPSS 19.0软件进行统计学分析。组间计量资料比较采用方差分析;组间率的比较采用 χ^2 检验,偏相关分析居民尿氟与每

日摄氟量的关系。每日总摄氟量[$\text{mg}/(\text{人}\cdot\text{日})$]=食物摄氟量+饮水摄氟量+空气摄氟量, 检验水准 $\alpha=0.05$ 。应用BMD2.3.1剂量计算软件(EPA, USA)拟合儿童总摄氟量与氟斑牙患病率之间的剂量反应关系。计算基准剂量反应(BMR)为10%时儿童总摄氟量的基准剂量(BMD)以及基准剂量95%可信区间下限(BMDL)^[11]。

2 结果

2.1 空气中氟化物浓度

各监测点空气氟化物浓度于2:00时差异有统计学意义($P=0.028$), 而3个监测点空气中氟化物24h平均浓度差异无统计学意义, $P>0.05$ 。见表1。

表1 与电解铝厂不同间距的各监测点空气中氟化物浓度					
时间段	n	监测点			P
		点1($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	点2($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	点3($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	
2:00	7	7.81±5.87	2.97±3.22	2.10±0.67	0.028
8:00	7	7.00±6.84	3.37±4.05	2.34±1.18	0.172
14:00	7	3.98±3.71	4.24±6.10	1.84±0.675	0.506
20:00	7	5.10±3.65	3.90±4.44	1.74±0.82	0.195
24h平均浓度	7	2.94±2.21	1.94±0.95	1.04±0.50	0.068

2.2 饮用水中氟化物含量

3个监测点的25份饮用水水样中, 水中氟化物浓度均低于方法最低检出限($<0.2\text{mg/L}$), 符合GB 5749—2006《生活饮用水卫生标准》的规定。

2.3 食物中氟化物含量

在3个监测点共采集各类食物样品172份, 其中监测点1、2采集141份, 对照点采集31份。监测点除了干豆类及淡水鱼类外, 其余食物的含氟量均高于对照点。见表2。

表2 监测点和对照点居民食物中氟化物的含量				
食物	对照点		监测点	
	样本量(n=31)	中位数(mg/kg)	样本量(n=141)	中位数(mg/kg)
大米	3	0.3767	17	1.0032
玉米	3	0.2317	14	0.7282
薯类	2	0.1250	2	0.2025
干豆类	3	0.5033	6	0.4208
蔬菜类	7	0.4429	49	0.7716
水果类	3	0.1250	17	0.3291
畜肉类	1	0.1250	2	0.3400
禽肉类	2	0.1250	9	0.5322
蛋类	2	0.3900	8	0.3869
淡水鱼类	1	0.2900	3	0.6200
花生	4	0.4013	14	0.6118

2.4 人群基本特征, 尿氟浓度及每日总摄氟量

本次调查的388名调查对象均为壮族, 其中女性193人, 男性195人。各监测点居民性别及BMI指数差异无统计学意义($P>0.05$), 而各年龄层人群3个监测点分布差异有统计学意义($P<0.05$)。其中与电解铝厂距离小于1km的监测点居民尿氟浓度及每日总摄氟量均最高, 分别为(1.80 ± 0.84), (0.73 ± 0.13) mg/L 。见表3。

表3 与电解铝厂不同间距居民基本特征, 尿氟浓度及每日总摄氟量的比较					
项目	调查人数 (n=388)	监测点			P
		点1(n=197)	点2(n=134)	点3(n=57)	
性别					0.317
男性	195	92(46.7%)	68(50.7%)	33(57.9%)	
女性	193	105(53.3%)	66(49.3%)	24(42.1%)	
年龄(岁)					0.027
6~	86	49(24.9%)	25(18.7%)	12(21.1%)	
15~	82	37(18.8%)	27(20.1%)	18(31.6%)	
35~	101	60(30.5%)	28(20.9%)	13(22.8%)	
45~65	119	51(25.9%)	54(40.3%)	14(24.6%)	
BMI	22.8±2.7	22.3±2.8	22.6±2.7	23.1±2.9	0.274
尿氟(mg/L)	1.51±1.46	1.80±0.84	1.44±0.86	0.71±0.39	0.000
每日总摄氟量(mg/d)	0.69±0.17	0.73±0.13	0.70±0.11	0.39±0.03	0.000

2.5 尿氟水平与每时摄氟量的相关分析

表4显示, 不同年龄段人群尿氟浓度差异有统计学意义($P<0.05$), 其中6~15岁人群尿氟浓度最低, 为(1.14 ± 0.93) mg/L , 45岁以上人群尿氟浓度最高, 为(1.74 ± 1.13) mg/L , 组间差异有统计学意义($P<0.05$)。男、女性尿氟浓度无显著性差异($P>0.05$)。在尿氟浓度与氟暴露相关性分析中控制年龄因素后, 居民尿氟浓度与每日摄氟量呈正相关($r=0.442$, $P<0.05$)。

表4 不同年龄段人群尿氟浓度的比较					
项目	年龄段(岁)				P
	6~(n=86)	15~(n=82)	35~(n=101)	45~65(n=119)	
尿氟(mg/L)	1.14±0.93	1.43±0.99	1.63±1.08	1.74±1.13	0.023

2.6 儿童累计摄氟量与儿童氟斑牙之间的剂量效应关系

根据累计摄氟量将所有监测点儿童分为4组, 即A组 $<1450\text{mg}$; $1450\text{mg}\leq$ B组 $<1665\text{mg}$; $1665\text{mg}\leq$ C组 $<1895\text{mg}$; D组 $\geq 1895\text{mg}$, 分别统计各组儿童的氟斑牙患病率, 见表5。

表5 电解铝厂周边儿童累计摄氟量和氟斑牙患病情况

组别	人数	累计摄氟量(mg)	氟斑牙人数	氟斑牙患病率(%)
A组	12	1242.28 ± 67.99	1	8.3
B组	12	1468.76 ± 36.74	1	8.3
C组	16	1652.36 ± 45.38	4	25.0
D组	26	1948.93 ± 104.85	5	19.2

儿童累计摄氟量与儿童氟斑牙患病率的基准剂量(BMD)和基准剂量95%可信区间下限(BMDL)分别为1371.11 mg和572.98 mg, 儿童累计摄氟量与儿童氟斑牙患病率之间的剂量反应关系曲线见图1。由图1可知随着儿童累计摄氟量的增多, 儿童氟斑牙患病率出现递增趋势, 两者之间存在剂量反应关系。

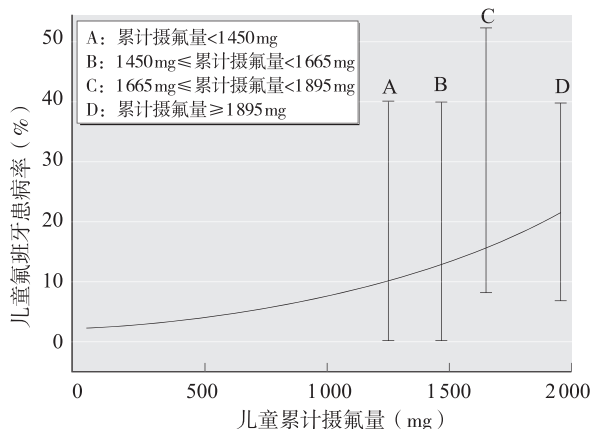


图1 儿童累计摄氟量与氟斑牙患病率的剂量效应关系曲线

3 讨论

本调查通过对电解铝厂周边3个监测点环境空气中的氟化物1h平均浓度及24h平均浓度的检测发现, 该两种浓度均低于GB 3095—2012《环境空气质量标准》中的环境空气氟化物参考浓度限值^[12]; 3个监测点水中的氟化物浓度均低于GB 5749—2006《生活饮用水卫生标准》中水氟浓度的限值(1.0mg/L)。但监测点1、2的食品中氟化物浓度以及居民尿氟浓度高于对照点高, 其原因可能是监测点1、2与电解铝厂间的距离较近, 因监测数据显示, 越靠近工厂的环境空气中氟化物浓度越高, 故沉降在监测点1、2处土壤表层的氟化物也越多, 农作物通过根系吸收沉积在土壤表层的氟化物亦越多, 蓄积在农作物中的氟化物通过饮食进入机体后, 蓄积在骨骼等组织中, 而氟主要通过肾脏排泄到体外, 因此居住地越靠近电解铝厂的居民尿氟浓度越高。

在尿氟浓度与居民每日摄氟量的相关研究中, 45岁以上年龄段人群尿氟浓度最高, 表明年长者体内氟负荷较重。在控制年龄因素后, 尿氟浓度与居民每日

摄氟量呈正相关($r=0.442$, $P<0.05$), 这说明尿氟是敏感氟接触生物标示物, 能较好的反映人体氟接触状况和机体内氟负荷的大小^[13]。

在该地区发现儿童出现轻微的氟斑牙, 提示工厂排放到环境空气中的氟化物通过环境迁移作用可能对人体产生了一定的损害效应。在氟暴露导致儿童氟斑牙的关系研究中, 根据累计氟摄入量分组, 从A组到C组, 儿童氟斑牙患病率逐渐增高, 然而从C组到D组, 儿童氟斑牙患病率呈下降趋势, 这可能是由于本次调查到的儿童人数较少, 应进一步扩大调查周边地区儿童人数; 此外由于该电解铝厂投产时间不久, 对人群健康的危害还尚未出现效应终点, 应进一步延长观察时间, 以获得更多的儿童或成人氟斑牙患病人数。

本研究计算出儿童累计摄氟量与儿童氟斑牙患病率的基准剂量(BMD)和基准剂量95%可信区间下限(BMDL)分别为1371.11 mg和572.98 mg。BMD是代表引起机体不良效应发生率变化的水平, Crump K等^[14]认为, 以BMDL来替代最低有害作用水平(LOAEL)和最高无有害作用水平(NOAE), 更具有科学性, 而且基准剂量法在确定非致癌物的可接受安全水平时的计算过程更为简洁, 结果表达更为直观。因此, 本研究成果得出的氟暴露量与儿童氟斑牙发生的BMD和BMDL可作为今后危险度评定时的参考, 但要将其推广还需要大量的氟暴露人群资料来证明。

·作者声明本文无实际或潜在的利益冲突。

参考文献

- [1] 姬海莲. 铝电解厂周围地区人群氟斑牙和尿氟水平调查[J]. 环境与健康杂志, 2006, 23(6): 520-521.
- [2] 王烁, 李伯灵, 谈伟君. 饮水型地方性氟中毒健康危险度评价[J]. 职业与健康, 2011, 27(9): 1041-1043.
- [3] 中华人民共和国卫生部. WS/T 208—2011 氟斑牙诊断[S]. 北京: 中国标准出版社, 2012.
- [4] 向全永, 陈连生, 王彩生, 等. 儿童尿氟的基准剂量及其与氟斑牙相关关系的研究[J]. 中国地方病防治杂志, 2005, 20(2): 68-71.
- [5] 国家环境保护总局. HJ/T 67—2001 大气固定污染源氟化物的测定离子选择电极法[S]. 北京: 中国标准出版社, 2001.
- [6] 中华人民共和国卫生部. WS/T 87—1996 人群总摄氟量卫生标准[S]. 北京: 中国标准出版社, 1997.
- [7] 中华人民共和国卫生部. GB/T 5009.18—2003 食品中氟的(下转第568页)