

郇苏日嘎拉, 李永春, 周文辉, 等. 宁夏固原市原州区高氟地区氟对人体健康的影响[J]. 岩矿测试, 2021, 40(6): 919 – 929.

TAI Surigala, LI Yong – chun, ZHOU Wen – hui, et al. Effect of Fluorine on Human Health in High – fluorine Areas in Yuanzhou District, Guyuan City, Ningxia Autonomous Region[J]. Rock and Mineral Analysis, 2021, 40(6): 919 – 929.

【DOI: 10.15898/j.cnki.11 – 2131/td.202109080119】

宁夏固原市原州区高氟地区氟对人体健康的影响

郇苏日嘎拉, 李永春*, 周文辉, 王永亮, 陈国栋, 苏日力格, 张祥
(中国地质调查局呼和浩特自然资源综合调查中心, 内蒙古 呼和浩特 010010)

摘要: 近年来随着人们生活质量的提升,对健康的关注度也不断提高,氟中毒性地方病越来越受到人们的重视。在关注氟污染源分析及暴露途径研究的同时,开展氟暴露途径评价健康风险研究也十分必要。据调查,固原市原州区彭堡镇地区表层土壤氟含量高于当地区域背景值,本文针对当地存在氟超标导致地方病的实际情况,重点采集了固原市原州区彭堡镇地区表层土壤、地层岩石、农作物、地下水等样品,主要采用电感耦合等离子体发射光谱法(ICP – OES)、原子荧光光谱法(AFS)等分析方法对相关元素进行分析测试,研究固原市原州区彭堡镇高氟区氟超标对人体健康的影响,并运用健康风险评价模型对人体健康风险进行评价。评价结果表明:谷物和蔬菜氟暴露途径健康风险指数 $HQ < 1$,没有非致癌风险。当地人体氟暴露风险主要途径为饮用地下水摄入,相关的健康风险指数 $HQ > 1$,这表明通过饮用氟超标的地下水,可能具有潜在的非致癌风险。年度总健康风险为 1.69×10^{-8} ,低于国际辐射防护委员会(ICRP)建议的最大可接受年健康风险水平 5.0×10^{-5} ,属于人类可接受的风险水平。根据氟健康风险评价结果,本文提出该地区饮用水安全性方面还需多给予关注。

关键词: 氟; 地下水; 电感耦合等离子体发射光谱法; 原子荧光光谱法; 健康风险评价模型; 健康风险指数; 原州区彭堡镇

要点:

- (1) 对固原市原州区彭堡镇高氟地区的谷物、蔬菜 and 饮用水途径计算氟暴露剂量,对人体健康风险进行评价。
- (2) 饮用水中平均氟的质量浓度为 1.07mg/L,其相关健康风险指数为 1.023,表明地下水中的氟通过饮用对当地人群产生潜在的非致癌风险。
- (3) 固原市原州区氟暴露年度总健康风险为 1.69×10^{-8} ,低于国际辐射防护委员会(ICRP)推荐的有毒有害物质个人年健康风险最大可接受水平 5.0×10^{-5} 。

中图分类号: O657.31; X820.4 **文献标识码:** A

氟是自然界广泛存在的化学元素之一^[1],自然界中电负性最强的元素,也是最强的单质氧化剂,几乎不能单独存在,都是以络合物形式存在。氟的地壳丰度为 6.5×10^{-6} ,在所有元素中排在第 13 位。氟在自然界中主要以氟镁石(MgF_2)、萤石(CaF_2)、氟磷灰石 [$Ca_5(PO_4)_3F$] 及冰晶石(Na_2AlF_6)存

在^[2],其化学性质十分活泼,在环境中氟以阴离子(F^-)存在^[3]。固原市地处北方干旱至半干旱带,雨水蒸发量远大于降水量,强烈的蒸发作用会导致地下水沿包气带土体毛细管孔隙上升蒸发,会增加土壤中氟的含量,随着降雨的淋溶作用渗到地下水形成地下水氟超标,也可以被农作物吸收利用进入食

收稿日期: 2021 – 09 – 08; 修回日期: 2021 – 10 – 30; 接受日期: 2021 – 11 – 15

基金项目: 中国地质调查局地质调查项目(DD20191015)

第一作者: 郇苏日嘎拉,助理工程师,主要从事生态地球化学调查和评价工作。E – mail: 1464408310@qq.com。

通信作者: 李永春,工程师,主要从事勘查地球化学及生态地球化学调查和评价工作。E – mail: 369517099@qq.com。

物链^[4-5]。目前,氟化物引起的氟中毒成为了全球性问题,中国成为了氟中毒流行最严重的国家之一。中国地方性氟中毒的发病原因多种多样,大多数是由含氟水引起的,占总数的 80%^[6-7]。研究氟暴露途径及健康风险评价对于保障食品安全及人体健康具有重要意义。

根据卫生防疫部门的流行病学调查研究,人体摄入氟主要来源是水、食物、空气,其中饮用水分布广泛^[8-10]。近年来越来越多的学者研究了氟对人体健康的影响,研究内容趋于多样化,研究深度不断增加。前人研究成果揭示,氟对人体或其他哺乳动物来说是必需的微量元素,少量的氟可能有益于骨骼强度^[11]。与此同时,氟元素对生物体也具有高度毒性,过量氟主要影响人体的硬组织,包括牙齿、骨骼,且对其他一些软组织也有损伤^[12-13]。人体每日摄入氟量 4mg 以上会造成中毒,损害健康^[14]。地方性氟中毒是因为人们长期生活的高氟环境中,过量摄入氟能引起机体慢性中毒^[15]。以往研究侧重于氟环境污染来源分析及暴露途径的研究,而通过氟暴露途径评价健康风险的研究较少,在宁夏固原地区氟暴露途径对人体健康风险评价方面研究尚属空白。

2019 年中国地质调查局呼和浩特自然资源综合调查中心承担的《河套平原五原—固原耕地地区土地质量地球化学调查》项目调查结果显示,固原市原州区彭堡镇地区表层土壤中氟含量在 458 ~ 1991mg/kg 之间,平均值为 675mg/kg,宁夏 A 层土壤氟背景值为 531mg/kg^[16],彭堡镇地区表层土壤中氟含量高于区域背景值。本文针对当地存在氟超标导致地方病的实际情况,采集了表层土壤、农作物、地下水等样品,主要采用电感耦合等离子体发射光谱法(ICP-OES)、原子荧光光谱法(AFS)等分析方法对相关元素进行分析测试,以期探讨研究区氟暴露对人体健康的可能影响。采用美国环保署推荐的健康风险评价模型进行了人体健康风险评价,根据当地居民平均饮水量对模型中居民每日平均饮水量进行了改化,使得到的结果更加符合实际情况。

1 研究区地质概况

研究区(图 1)位于固原市原州区,地处宁夏南部地区,六盘山东北麓,黄土高原中西部,属于清水河平原地带^[9],平均海拔 1750m,年均降雨 300 ~ 550mm,属暖温带半干旱气候,雨水蒸发量远大于降水量。彭堡镇地区位于清水河平原地带,微地貌特征呈现为中部低,周边高的洼地形状,区内分布黑垆

土、黄绵土和潮土三种土壤。黑垆土在研究区内大量分布,主要集中在彭堡镇南部地区;黄绵土主要分布在东部、东北部地区;潮土分布较少,主要在彭堡镇北部少量分布。土地利用类型主要为耕地,其次是林草地和建筑用地,其他土地有少量分布。耕地占研究区总面积的 67.43%,林草地占研究区总面积的 14.49%,建筑用地占研究区总面积的 8.76%,其他土地占 9.32%。当地居民饮水方式有两种:一种为自家产的井水,另一种是饮用自来水。当地居民食用的粮食作物主要为自家种植的小麦和玉米,蔬菜均由自家种植或者当地售卖,饮食结构为自产自销。

研究区内出露的地层为第四系(Q)。第四系(Q)广泛分布于研究区内,彭堡镇西部地区主要为全新世洪积层(Qh^{pl});中部地区为全新世冲积层(Qh^{al}),南北向条带状分布;东部地区为更新世风积层(Qm)。

2 样品采集与分析

2.1 样品采集

本次样品严格按照《土地质量地球化学评价规范》(DZ/T 0295—2016)中的样品采集规范执行,采集表层土壤样品 1100 件,地层岩石样品 113 件,小麦样品 39 件,玉米样品 41 件,辣椒 10 件;饮用水样品 7 件(图 1)。

表层土壤样品在通风良好的场地进行自然风干、压碎,将样品全部通过 2mm 的尼龙筛,充分混匀后将一部分样品装入塑料瓶中送实验室分析。

岩石样品在原州区北部三营镇地层出露较好的地段进行采集,未在研究区内部。样品采集新鲜面,敲打成小块后装入塑料瓶中送实验室分析。

玉米、小麦和辣椒样品以 0.1 ~ 0.2hm² 为采样单位,选取 10 ~ 20 棵植株混合成 1 件样品;农作物样品采集均为多点组合,确保样品的代表性。玉米和小麦鲜样脱粒后进行自然风干脱水处理,送实验室分析测试。辣椒样品鲜样用无色聚乙烯塑料袋密封后,送实验室进行低温冷冻干燥制样后进行检测。

土壤垂向剖面采集 3 处,剖面规格为长 2 米、宽 1 米、剖面深 2 米的人工剖面,剖面直立面向南,样品采集时在直立面向南每隔 20cm 采集一个土壤样品。

饮用水样品采自居民家井水。饮用水样品用聚乙烯塑料瓶采集,在采集前用采样点处的水洗涤样瓶和瓶塞 3 次。采集的饮用水样品不添加任何保护剂,当天送实验室供测定。

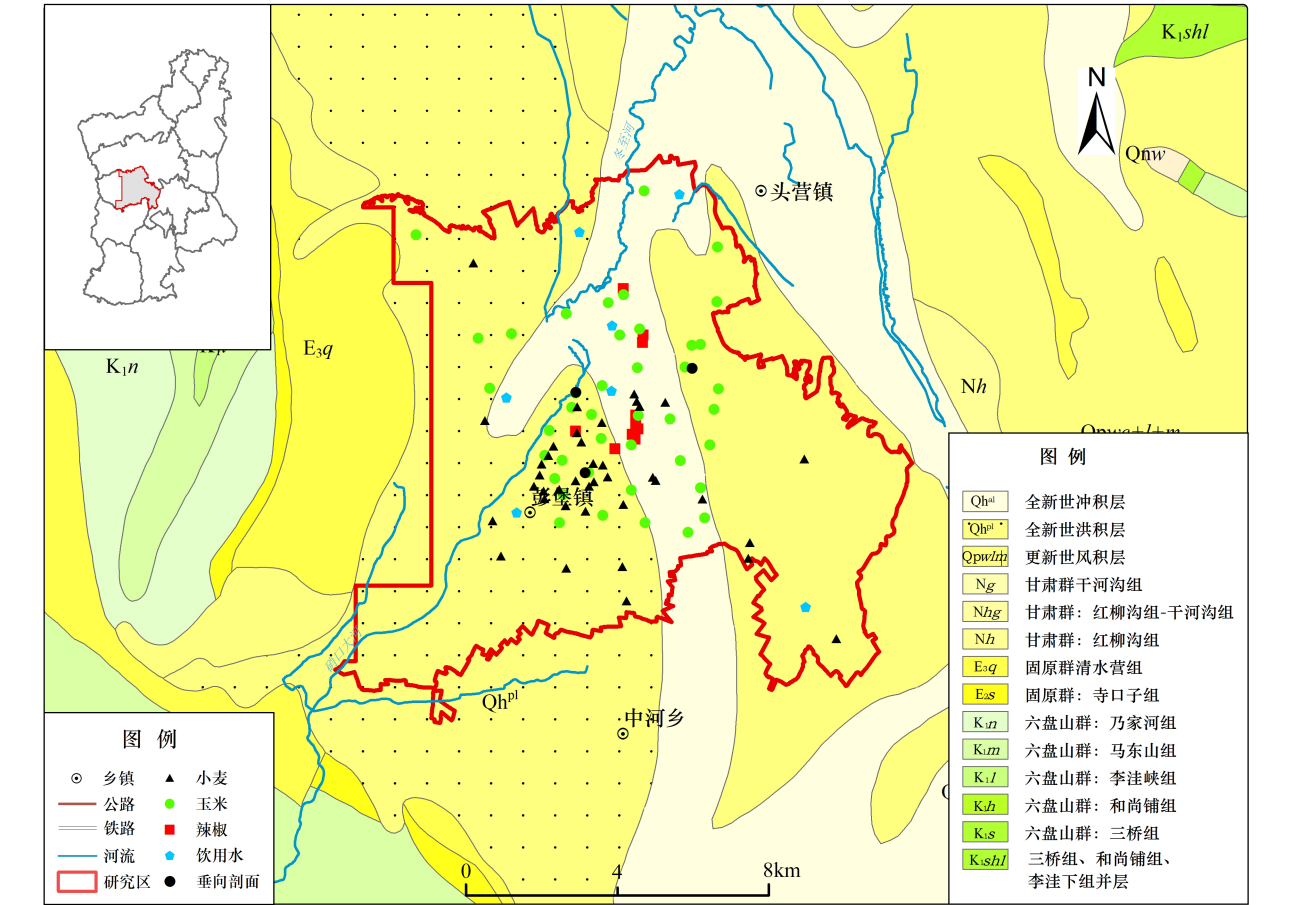


图1 研究区样品分布图

Fig.1 Distribution map of samples in the study area

2.2 样品分析

表层土壤样品测试工作由内蒙古地矿科技有限责任公司承担,岩石和农作物样品测试工作由承德华勘五一四地矿测试研究有限公司承担,水样品测试工作由甘肃省中心实验室承担。按照《多目标区域地球化学调查规范(1:250000)》(DZ/T 0258—

2014)要求,分析准确度和精密度控制采用国家一级标准物质进行控制,所有监控样测试分析准确度和精密度均在监控允许范围内,各分析指标的分析检出限要求等于或小于相关规范要求,所取得分析数据均通过中国地质调查局质量验收,数据真实可靠。各项样品指标分析质量参数见表1。

表1 样品指标分析质量参数

Table 1 Quality parameters of index analysis for the samples

指标	分析方法	检出限	报出率 (%)	准确度合格率 (%)	精密度合格率 (%)	重复检验合格率 (%)
F	离子选择电极法(ISE)	50.0×10^{-6}	100	100	100	100
Mo	电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)	0.1×10^{-6}	100	100	100	100
Mn	粉末压片-X射线荧光光谱法(XRF)	10.0×10^{-6}	100	100	100	100
Ge	原子荧光光谱法(AFS)	0.01×10^{-6}	100	100	100	100
SOM	重铬酸钾容量法(VOL)	0.01×10^{-6}	100	100	100	100
CaO	粉末压片-X射线荧光光谱法(XRF)	0.03×10^{-2}	100	100	100	100
MgO	电感耦合等离子体发射光谱法(ICP-OES)	0.02×10^{-2}	100	100	100	100
Ni	粉末压片-X射线荧光光谱法(XRF)	2.0×10^{-6}	100	100	100	100
Se	原子荧光光谱法(AFS)	0.01×10^{-6}	100	100	100	100

3 健康风险评价方法

3.1 暴露量计算

暴露量是人体通过各种途径日均摄入的污染物的量,依据污染物的致癌性质分为致癌和非致癌污染物两个类型^[17]。健康风险评价时根据污染物的类型选择不同的参数。对于本次研究,人体摄入氟的主要途径有食物摄入和饮用水,在选择参数时考虑到氟是非致癌污染物,所以在健康风险评价时只计算非致癌效应。研究认为生物体对非致癌物的摄入量造成的风险有一定的剂量阈值,当低于规定的阈值时就认为不会对人体造成健康风险^[18]。本文利用健康风险评价模型综合评价固原市原州区彭堡镇高氟地区农作物和饮用水氟暴露对人体健康风险的评价。

3.2 氟健康风险模型参数的选择

根据美国环保署推荐的化学非致癌物氟经过食入途径的参考剂量为 $0.06\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$ ^[17];饮水途径的参考剂量为 $0.03\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$ ^[19];国际辐射防护委员会(ICRP)推荐的有毒有害物质个人年风险最大可接受水平是 5.0×10^{-5} ^[17]。

3.3 健康风险评价模型

食入途径的单位体重日均暴露剂量(D_{if}):

$$D_{if} = \frac{C_{if} \times Y_f}{70} \tag{1}$$

饮水途径暴露的日均暴露剂量(D_{iw}):

$$D_{iw} = \frac{2C_{iw}}{70} \tag{2}$$

污染因子的非致癌风险(HQ):

$$HQ = \frac{D_i}{RfD} \tag{3}$$

非致癌物的年健康风险(R_i):

$$R_i = \frac{D_i \times 10^{-6}}{70 \times RfD_i} \tag{4}$$

年度总健康风险($R_{i总}$):

$$R_{i总} = R_{i谷} + R_{i蔬} + R_{i水} \tag{5}$$

公式(1)中: C_{if} 为植物中污染物*i*的平均质量分数(mg/kg); Y_f 为食入暴露途径的日平均摄入量(kg/d);70为人均体质量(kg)。

公式(2)中: C_{iw} 为某污染物的浓度,单位 mg/L ;2为宁夏地区成人日均饮水量(L/d);70为人体平均质量(kg)。

公式(3)中: HQ 代表风险指数; D_i 代表日暴露剂量。当 $HQ > 1$ 时表示氟可能产生潜在的非致癌风险;当 $HQ < 1$ 时表示氟不会产生潜在的非致癌风险^[20]。

公式(4)中: RfD 为非致癌物暴露途径的参考剂量 $[\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})]$;70为人平均寿命,单位为年^[17]。

公式(5)中:年度总健康风险是人群通过谷物、蔬菜和饮用水途径暴露量年健康风险的总和。

4 结果与讨论

4.1 表层土壤中氟地球化学特征

研究区处于低洼地区,区内主要水系有硝口大河和冬至河,流经方向大体上从南往北流。氟元素在区内分布特征主要表现为中部高、周边低的特征,与研究区微地貌特征较吻合。氟含量高值区主要分布在彭堡镇中部低洼地区,低值区主要分布在靠近黄土丘陵的东部地区,在研究区的西北角也有零星分布(图2)。

在原岩风化成土的过程中,由于各类元素的地球化学性质的区别,元素的迁移富集能力也随之不同^[8]。根据原州区土地质量地球化学调查数据,通过SPSS软件进行氟元素与其他元素相关性分析(Pearson 双侧相关性分析)发现彭堡镇地区氟与Mo、Mn、Ge、CaO、MgO、Ni、SOM、Se等8项指标相关性显著(表2)。

表2 氟元素与其他元素的相关性

Table 2 Correlationship of fluorine and other elements

元素	F	元素	F
Mo	0.612 **	CaO	0.496 **
Mn	-0.347 **	MgO	0.812 **
Ge	-0.480 **	Ni	-0.270 **
SOM	0.365 **	Se	0.517 **

注:样品数1100,“**”表示0.01水平(双侧)显著相关;
“*”表示在0.05水平(双侧)显著相关。

经过相关性分析,发现氟与Mo、SOM、CaO、MgO、Se在0.01水平上正相关,与Mn、Ge、Ni在0.01水平上负相关^[13]。为了能更直观地显示氟与以上8个元素的关系和趋势,制作了8种关系散点图(图3),分别是:F-Mo(图3a)、F-Mn(图3b)、F-Ge(图3c)、F-CaO(图3d)、F-MgO(图3e)、F-Ni(图3f)、F-SOM(图3g)、F-Se(图3h)等。从图中可知,氟与MgO相关性明显,与Mo、CaO、SOM、Se元素相关性次之,与MgO显著正相关的原因可能形成难溶的氟镁石(MgF_2),随着氧化镁含量的增加氟含量增高^[21]。吸附是土壤积累氟时一种重要作用,氟的吸附伴随 OH^- 的释放^[22],在研究区

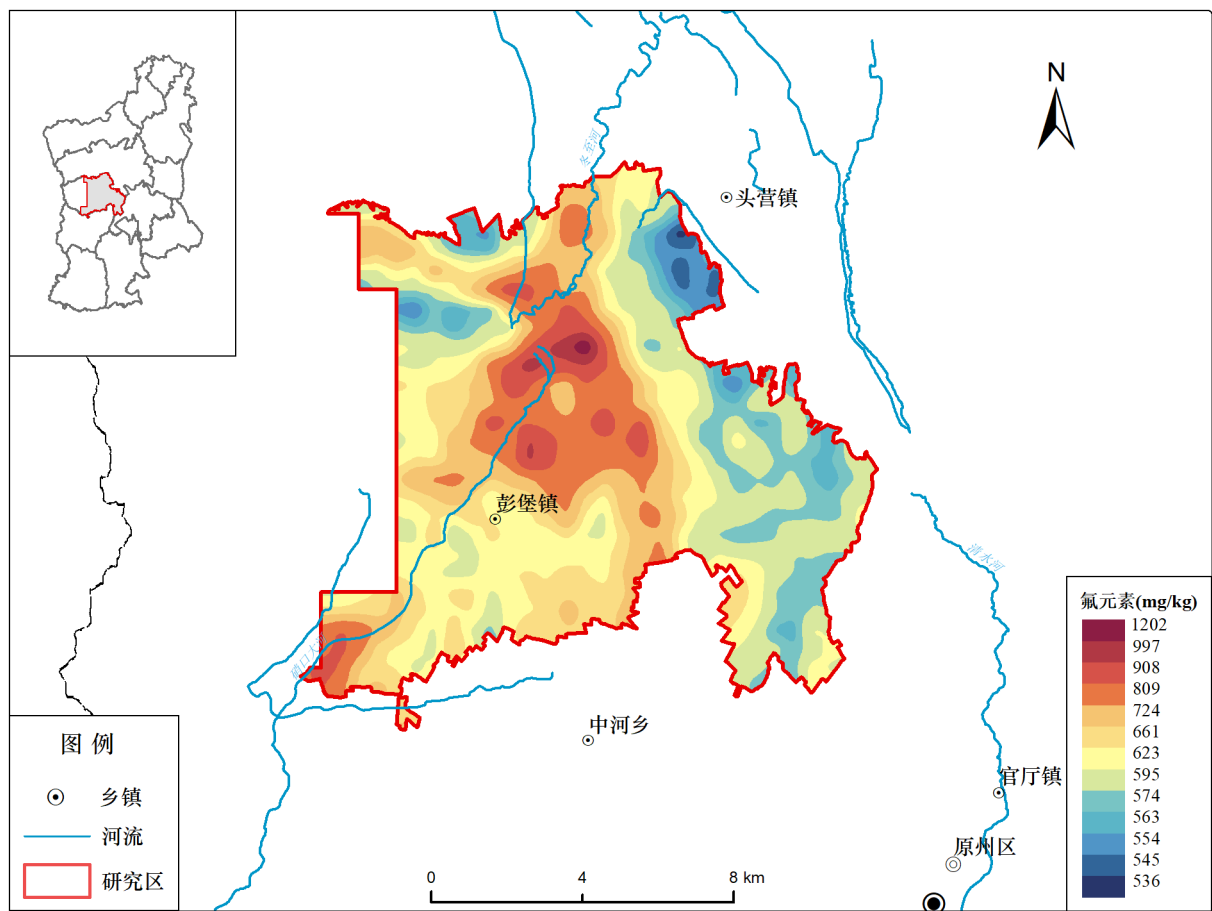


图2 研究区氟元素地球化学图
Fig. 2 Geochemical map of fluorine in the study area

碱性土壤中氟随着有机质含量增高而增高原因可能与土壤中有机质对氟离子的吸附作用导致土壤中的氟富集^[23-24]。氟与 Mn、Ge、Ni 元素呈负相关关系。

4.2 土壤中氟垂向分布特征

为了研究氟的空间分布特征,在研究区采集垂向剖面共 3 处,根据氟元素在表层土壤中的分布特征,在研究区高值区采集两个土壤垂向剖面(CPM01 和 CPM02)、低值区采集一个土壤垂向剖面(CPM03)对比研究氟元素空间分布特征,结果如图 4 所示。

从图 4 中可以明显看到 CPM01 和 CMP02 垂向剖面在不同深度下的氟含量变化明显,CPM01 和 CMP02 在 80 ~ 160cm 处土壤发颜色加深,在 120cm 处均为质地紧实的灰黑色黑垆土;CMP03 整体上以黄绵土为主,垂向上土壤变化不明显。CPM01 和 CMP02 土壤垂向剖面整体上氟元素含量随深度增加也增高,在 100 ~ 120cm 处达到最高值,120cm 以下随深度加深有逐渐减少趋势,氟的含量受人为活动影响较大,上层土壤很可能受到外界氟源的影响。结合前人研究,综合分析原因有以下几个方面。

(1) 人类活动影响导致局部氟富集。在施肥、灌溉、喷洒农药等农业生产活动会导致表层土壤中氟含量增加^[25]。

(2) 表层土壤中的氟易于流失,随着雨水和耕地里常年灌溉的淋溶作用下,氟慢慢从表层往下渗透到达难于透水的潜育层中富集造成由上到下逐渐增高的现象^[24]。

(3) 吸附作用导致土壤中氟的累积,故土壤垂向上随深度不同土壤类型、质地也会随之变化,对氟离子的吸附能力也发生改变,在 CPM01 和 CMP02 剖面黑垆土比 CMP03 剖面黄绵土的质地紧实,对氟离子吸附能力强,更加容易富集^[26-27]。

(4) 地质方面,通过采集不同地层中的岩石样品分析结果可知(图 5),在六盘山群:马东山组(k_1m)中的氟含量远高于其他地层,该地层中含有大量的可溶性盐类,研究区地处洼地,硝口大河源头就流经马东山组(k_1m),推断研究区氟通过当地硝口大河迁移到达彭堡镇高氟地区,形成局部氟高异常^[28-29]。与何志润^[28]2020 年研究结果指出的氟在

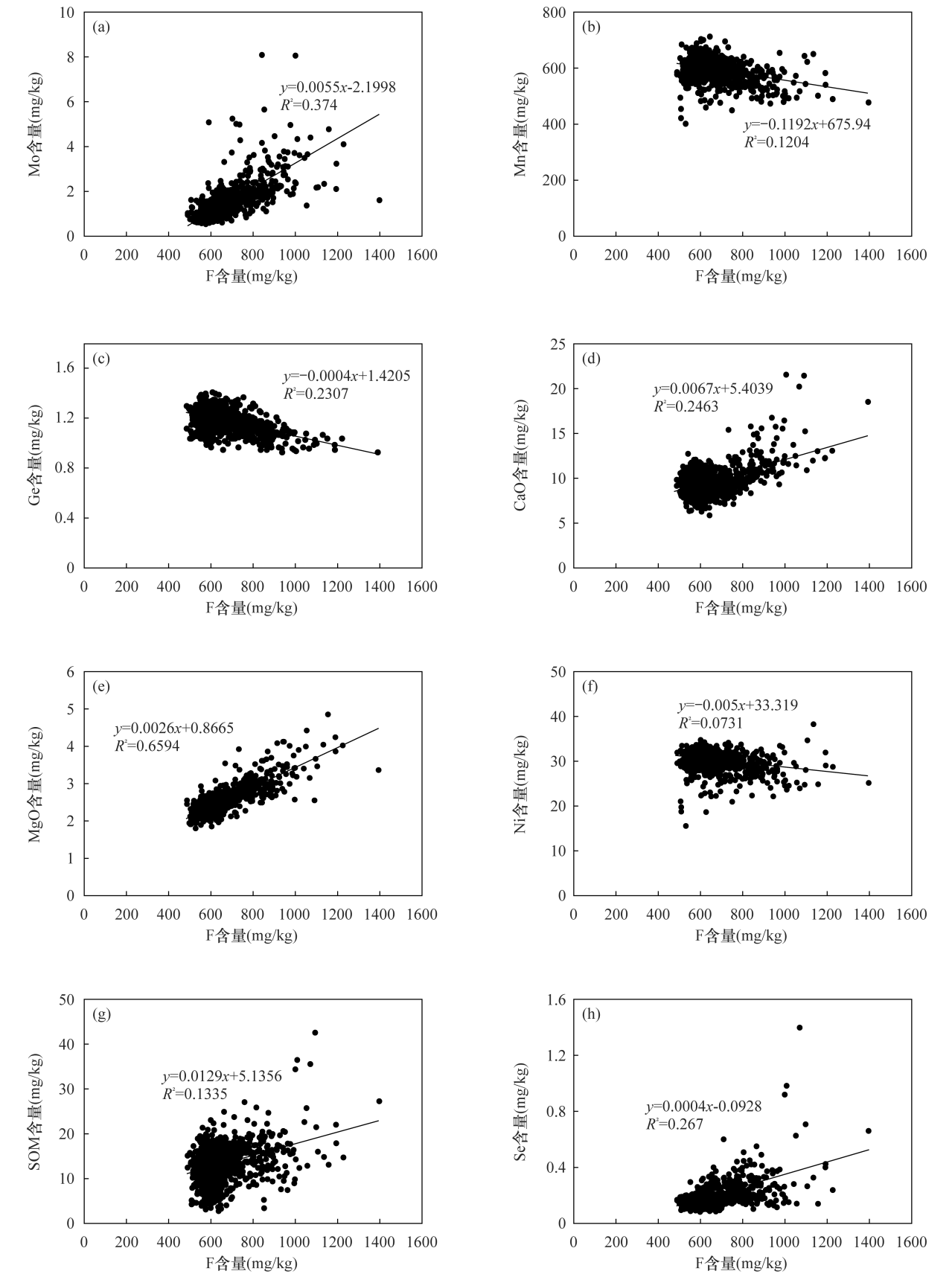


图3 氟与其他元素的关系

Fig.3 Relationship between fluorine and other elements

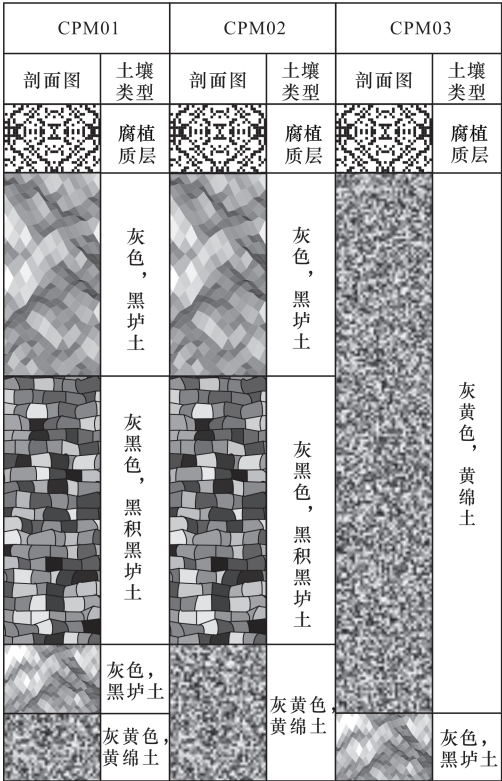


图 4 土壤垂向剖面氟元素含量变化

Fig. 4 Changes of fluorine content in vertical profile of soil

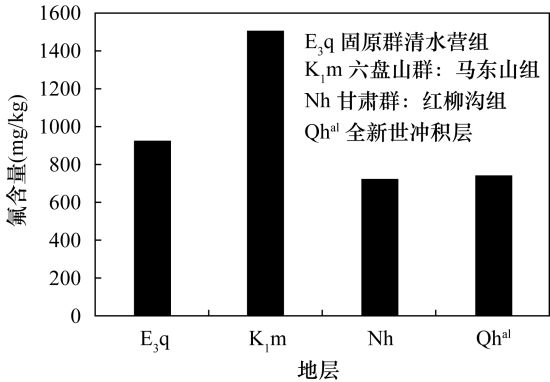
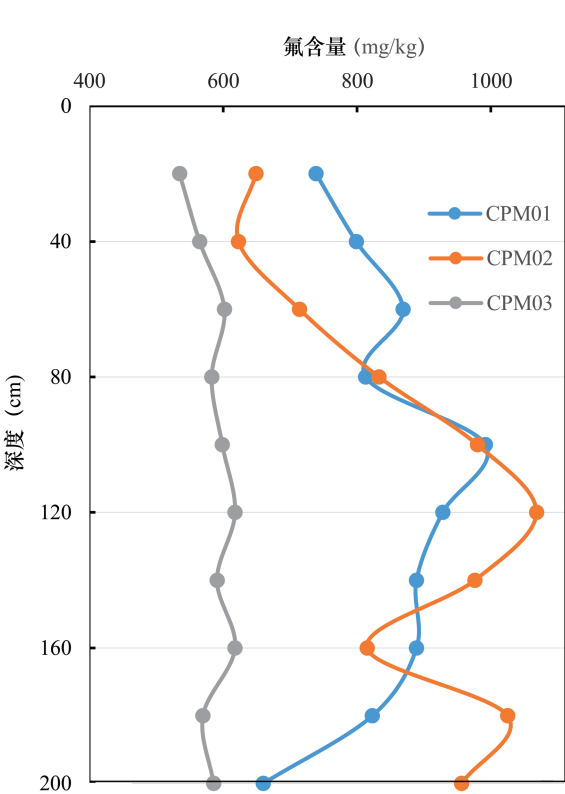


图 5 不同地层中氟元素含量对比图

Fig. 5 Comparison of fluorine content in different formations

表生地球化学环境的富集与宁夏清水河流域地层中的大量可溶性盐类正相关的观点一致。

相对低值区的 CPM03 土壤垂向剖面氟含量几乎不随深度的改变而变化,在不同层位中变化含量较稳定。推断有两方面原因:一方面是 CPM03 的土壤类型均为黄绵土,对氟离子吸附固定能力弱^[5],起不到吸附固定作用。另一方面 CPM03 地处洼地边缘,氟元素主要往研究区中部低洼地区汇集,导致该剖面的氟含量较低。



4.3 农作物中氟的分布特征

原州区彭堡镇地区小麦中氟含量为 0.12 ~ 1.21mg/kg,平均值为 0.37mg/kg(表 3)。氟含量在 33 件小麦中仅有 1 件高于国家规定的《食物中污染物的限量标准》(GB 2762—2005);根系土中氟含量为 502.31 ~ 890.75mg/kg,小麦根系土中氟含量平均值为 672.22mg/kg,与固原市原州区彭堡镇氟超标地区土壤中氟的平均含量相差不大。

玉米中氟含量为 0.14 ~ 1.08mg/kg,平均值为 0.52mg/kg。氟含量在 41 件玉米中仅有 2 件大于国家规定的《食物中污染物的限量标准》(GB 2762—2005);根系土中氟含量为 438.65 ~ 1420.41mg/kg,玉米根系土中氟含量平均值为 707.93mg/kg,与固原市原州区彭堡镇氟超标区土壤中氟的平均含量大致相当。

辣椒中氟含量为 0.43 ~ 0.99mg/kg,平均值为 0.70mg/kg(表 3)。所有样品氟含量均小于国家规定的《食物中污染物的限量标准》(GB 2762—2005),根系土中氟含量为 670.31 ~ 925.31mg/kg,辣椒根系土中氟含量平均值为 770.74mg/kg,与固原市原州区彭堡镇氟超标区土壤中氟的平均含量大致相当。

4.4 饮水水中氟的分布特征

研究区饮用水样品取自井水,彭堡地区饮用水中氟含量为 0.96 ~ 1.24mg/L,平均值为 1.07mg/L (表3)。氟含量在 7 件饮用水样品中 4 件高于《生活饮用水卫生标准》(GB/T 5749—2006)规定的限值,存在氟超标情况。

表3 不同介质中氟元素含量

Table 3 Fluorine contents in different media

介质类别	样品数	氟含量	氟含量	氟含量	国家标准 限量
		最小值 (mg/kg)	最大值 (mg/kg)	平均值 (mg/kg)	
小麦	39	0.12	1.21	0.37	1
玉米	41	0.14	1.08	0.52	1
辣椒	10	0.43	0.99	0.70	1
饮用水	7	0.96	1.24	1.07	1

注:饮用水中氟含量的单位为 mg/L。

4.5 氟健康风险评价

依据宁夏农村居民膳食结构及营养状况调查分析结果显示的宁夏居民人均谷物类消费量为 0.609kg/d、蔬菜类消费量为 0.426kg/d、饮水量为 2L/d^[30],计算固原市原州区彭堡镇高氟地区居民谷物及蔬菜摄入、饮水摄入的日暴露剂量、风险指数及年健康风险列于表 4。从评价结果可知,固原市原州区彭堡镇高氟地区人体氟元素暴露风险主要途径为饮用水摄入,其健康风险指数(HQ)为1.023,大于1。根据评价模型当地人群可能通过摄入氟超标饮用水造成潜在的非致癌风险;谷物和蔬菜暴露途径相关的健康风险指数(HQ) < 1,没有非致癌风险。年度总健康风险 1.69 × 10⁻⁸,远低于国际辐射防护委员会(ICRP)建议的最大可接受年健康风险水平 5.0 × 10⁻⁵,属于人类可接受的风险水平^[31]。

表4 氟元素对人体健康暴露风险

Table 4 Exposure risk of fluorine to human health

介质类型	日消费量 (kg/d)& (L/d)	氟平均含量 (mg/kg)& (mg/L)	日暴露 剂量	健康风险 指数	年健康 风险
谷物	0.609	0.61	5.31 × 10 ⁻³	0.089	1.26 × 10 ⁻⁹
蔬菜	0.426	0.70	4.26 × 10 ⁻³	0.071	1.02 × 10 ⁻⁹
饮用水	2	1.07	3.06 × 10 ⁻²	1.023	1.46 × 10 ⁻⁸
总风险 (年)			1.69 × 10 ⁻⁸		

以上通过健康风险评价,可为研究区内氟健康风险管控提供科学依据,建议对当地饮水安全性方面多给予关注^[32]。

5 结论

固原市原州区彭堡镇人体氟暴露风险主要途径为饮用地下水摄入,相关的健康风险指数(HQ) > 1,居民可能通过饮用氟超标的地下水造成潜在的非致癌风险。当地居民通过食物、饮用水暴露途径健康风险中,饮用水途径致癌年健康风险为 1.46 × 10⁻⁸,谷物和蔬菜途径非致癌年健康风险总和为 2.28 × 10⁻⁹,年度总健康风险为 1.69 × 10⁻⁸,低于国际辐射防护委员会(ICRP)推荐的有毒有害物质个人年风险最大可接受水平 5.0 × 10⁻⁵,在人类可接受的风险水平。

由于本次研究利用美国环保署(EPA)推荐的健康风险评价模型对人体健康风险暴露风险进行评价时,饮食途径仅选择小麦、玉米和辣椒,对其他蔬菜 and 谷物以及氟通过空气暴露和皮肤暴露量未予以考虑,实际上低估了氟暴露对人体健康的风险,有待下一步进行补充研究。

6 参考文献

[1] 桂建业,韩占涛,张向阳,等. 土壤中氟的形态分析[J]. 岩矿测试,2008,27(4):284-286
Gui J Y, Han Z T, Zhang X Y, et al. Speciation analysis of fluorine in soil samples [J]. Rock and Mineral Analysis, 2008, 27(4): 284-286.

[2] 涂成龙,何令令,崔丽峰,等. 氟的环境地球化学行为及其对生态环境的影响[J]. 应用生态学报,2019,39(1):21-29.
Tu C L, He L L, Cui L F, et al. Environmental and geochemical behaviors of fluorine and its impacts on ecological environment [J]. Chinese Journal of Ecology, 2019, 30(1): 21-29.

[3] 何令令. 不同地质背景区氟的分布特征与人体氟暴露水平研究[D]. 贵阳:贵州大学,2020.
He L L. Study on the distribution characteristics of fluorine in different geological background areas and the levels of human fluoride exposure [D]. Guiyang: Guizhou University, 2020.

[4] 何锦,张福存,韩双宝,等. 中国北方高氟地下水分布特征和成因分析[J]. 中国地质,2010,37(3):621-626.
He J, Zhang F C, Han S B, et al. The distribution and genetic types of high-fluoride groundwater in northern

- China[J]. *Geology in China*,2010,37(3):621–626.
- [5] 莫春雷,宁立波,卢天梅. 土壤中氟的垂向分布特征及其与岩性的关系[J]. *环境科学与技术*,2013,36(10):49–52.
- Mo C L, Ning L B, Lu T M. Vertical distribution characteristics of fluorine in the soil and its relationship with lithology[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013,36(10):49–52.
- [6] 何令令,何守阳,陈琢玉,等. 环境中氟污染与人体氟效应[J]. *地球与环境*,2020,48(1):87–95.
- He L L, He S J, Chen J Y, et al. Fluorine pollution in the environment and human fluoride effect [J]. *Earth and Environment*,2020,48(1):87–95.
- [7] 吴功建,李家熙,硒氟的地球化学特征与人体健康[J]. *岩矿测试*,1996,15(4):241–250.
- Wu G J, Li J X. Geochemical characters of selenium, fluorine and human health [J]. *Rock and Mineral Analysis*,1996,15(4):241–250.
- [8] 李静. 重金属和氟的土壤环境质量评价及健康基准的研究[D]. 杭州:浙江大学,2020.
- Li J. Study on evaluation and health guideline for heavy metals and fluorine of soil environmental quality [D]. Hangzhou: Zhejiang University,2006.
- [9] 张树海,魏固宁. 宁夏固原市原州区耕地地力评价与测土配方施肥[M]. 银川:阳光出版社,2011:3.
- Zhang S H, Wei G N. Evaluation of cultivated land fertility and soil testing and fertilization in Yuanzhou District, Guyuan City, Ningxia [M]. Yinchuan: Sunshine Publishing,2011:3.
- [10] 李静,谢正苗,徐建明. 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*,2006,37(1):194–199.
- Li J, Xie Z M, Xu J M. Research progress in the relationship between soil environmental quality index of fluorine and human health in China[J]. *Chinese Journal of Soil Science*,2006,37(1):194–199.
- [11] 杨忠芳,汤奇峰,成杭新,等. 爱恨交织的化学元素[M]. 北京:地质出版社,2019:37.
- Yang Z F, Tang Q F, Cheng H X, et al. The chemical elements of love and hate [M]. Beijing: Geological Publishing House,2019:37.
- [12] 雷德林,付学功,耿红凤,等. 沧州市高氟水分布规律及环境影响分析[J]. *水资源保护*,2007,23(2):43–46.
- Lei D L, Fu X G, Geng H F, et al. Distribution rules of high fluoride water and its environmental impacts in Cangzhou City[J]. *Water Resources Protection*,2007,23(2):43–46.
- [13] 杨海君,张海涛,许云海,等. 长株潭地区集中式饮用水源地周边土壤环境质量的监测与评价[J]. *水土保持研究*,2018,25(3):150–156.
- Yang H J, Zhang H T, Xu Y H, et al. Monitoring and evaluation of soil environmental quality around the concentrated drinking water source in Changsha Zhuzhou—Xiangtan area[J]. *Research of Soil and Water Conservation*,2018,25(3):150–156.
- [14] 陈少贤. 饮水型氟病区改水后儿童健康风险度评价[D]. 广州:南方医科大学,2013.
- Chen S X. Children's health risk assessment in the drinking water type endemic fluorosis areas after supplying low fluoride public water [D]. Guangzhou: Southern Medical University,2013.
- [15] 张晓平. 西藏土壤中氟的含量及其分布[J]. *环境科学*,1998(1):66–68.
- Zhang X P. Contents of fluorine in soil and their distribution in Tibet [J]. *Environmental Science*, 1998(1):66–68.
- [16] 吴淑岱. 中国土壤元素背景值[M]. 北京:中国环境科学出版社,1990.
- Wu S D. Chinese soil element background value [M]. Beijing: China Environmental Press,1990.
- [17] US EPA. Available information on assessment exposure from pesticides in food[R]. US Environmental Protection Agency Office of Pesticide Programs, 2000.
- [18] 黄磊,李鹏程,刘白薇. 长江三角洲地区地下水污染健康风险评价[J]. *安全与环境工程*,2008,15(2):26–29.
- Huang L, Li P C, Liu B W. Health risk assessment of pollution in groundwater—A case study in Changjiang Delta[J]. *Safety and Environmental Engineering*,2008,15(2):26–29.
- [19] 向全永. 环境中氟对居民健康影响的危险评价[D]. 上海:复旦大学,2004.
- Xiang Q Y. Fluoride health risk assessment in environment [D]. Shanghai: Fudan University,2004.
- [20] 黄珊. 重金属污染土壤风险评价及化学淋洗研究[D]. 重庆:重庆大学,2013.
- Huang S. Research of heavy metals pollution soil risk evaluation and chemical leaching [D]. Chongqing: Chongqing University,2013.
- [21] 沈丽峰,王文义. 临汾市尧都区氟离子分布状况及形成原因[J]. *水资源保护*,2005,21(5):76–78.
- Shen L F, Wang W Y. Distribution of fluorine ion in Yaodu District of Linfen City and causes of formation [J]. *Water Resources Protection*,2005,21(5):76–78.
- [22] 焦有,宝德俊,尹川芬. 氟的土壤地球化学[J]. *土壤*

- 通报,2000,31(6):251-254.
- Jiao Y, Bao D J, Yin C F. Geochemistry of fluorine[J]. Chinese Journal of Soil Science, 2000, 31 (6): 251-254.
- [23] 刘征原,郝瑞彬. 氟的环境地球化学特征及生物效应[J]. 唐山师范学院学报,2007,29(2):34-36.
- Liu Z Y, Hao R B. Environmental geochemistry characteristics of fluorine and its biological effects[J]. Journal of Tangshan Teachers College, 2007, 29 (2): 34-36.
- [24] 杨金燕,苟敏. 中国土壤氟污染研究现状[J]. 生态环境学报,2017,26(3):506-513.
- Yang J Y, Gou M. The research status of fluorine contamination in soils of China [J]. Ecology and Environmental Sciences,2017,26(3):506-513.
- [25] 杨忠芳,成杭新,奚小环,等. 区域生态地球化学评价思路及建议[J]. 地质通报,2005,24(8):687-693.
- Yang Z F, Cheng H X, Xi X H, et al. Regional ecological geochemical assessment: Ideas and praspsects [J]. Geological Bulletin of China,2005,24(8):687-693.
- [26] 邵宗臣,陈家坊. 土壤和氧化铁对氟化物的吸附和解吸[J]. 地质学报,1986,23(3):236-242.
- Shao Z C, Chen J F. Adsorption and desorption of fluoride by some soils and iron oxides [J]. Acta Pedologica Sinica,1986,23(3):236-242.
- [27] 万红友,黎成厚,师会勤,等. 几种土壤的氟吸附特性研究 [J]. 农业环境科学学报, 2003, 22 (3): 329-332.
- Wan H Y, Li C H, Shi H Q, et al. Study on adsorption characters of fluorine in several soils[J]. Journal of Agro - Environment Science,2003,22(3):329-332.
- [28] 何志润. 宁夏清水河流域氟化物(F^-)的分布特征及其影响因素研究[D]. 银川:宁夏大学,2020.
- He Z R. Study on the distribution characteristics and influencing factors of fluoride (F^-) in Oingshui River Basin of Ningxia [D]. Yinchuan: Ningxia University, 2020.
- [29] Mondal D, Gupta S. Fluoride hydrogeochemistry in alluvia - laquifer; An implication to chemical weathering and ion - exchange phenomena [J]. Environmental Earth Sciences,2015,73(7):3537-3554.
- [30] 张惠英,宋琦如,赵海萍,等. 宁夏农村居民膳食结构及营养状况调查分析[J]. 宁夏医学院学报,2005,27(2):104-106.
- Zhang H Y, Song Q R, Zhao H P, et al. Analysis of dietary structure and nutrition state in rural area of Ningxia[J]. Joural of Ningxia Medical College,2005,27(2):104-106.
- [31] 郭晋燕. 吉兰泰沙漠盆地地下水环境特征及高氟区饮用水安全风险控制[D]. 西安:长安大学,2014.
- Guo J Y. Groundwater environmental evolution in Jilantai Desert Basin and safety risk control of drinking water in high fluoride area [D]. Xi ' an: Chang ' an University, 2014.
- [32] 赵庆令,李清彩,谢江坤,等. 鲁中南地区双村岩溶水系统地下水中化学致癌物和非致癌物的健康风险评估[J]. 岩矿测试,2016,35(1):90-97.
- Zhao Q L, Li Q C, Xie J K, et al. Health risk assessment of carcinogenic and non - carcingenic substances in underground water from the Shuangcun karst system of central - southern Shandong Province [J]. Rock and Mineral Analysis,2016,35(1):90-97.

Effect of Fluorine on Human Health in High - fluorine Areas in Yuanzhou District, Guyuan City, Ningxia Autonomous Region

TAI Surigala, LI Yong - chun^{*}, ZHOU Wen - hui, WANG Yong - liang, CHEN Guo - dong, SU Rilige, ZHANG Xiang

(Hohhot Natural Resources Comprehensive Survey Center, China Geological Survey, Hohhot 010010, China)

HIGHLIGHTS

- (1) The exposure dose of fluorine was calculated for cereals, vegetables and drinking water in Pengbao Town, Yuanzhou District, Guyuan City, and the human health risk was evaluated.
- (2) The average concentration of fluorine in drinking water was 1.07mg/L, and its related health risk index was 1.023, indicating that fluorine in groundwater may pose a potential non – carcinogenic risk to local people through drinking.
- (3) The annual total health risk of fluorine exposure in Yuanzhou District of Guyuan City was 1.69×10^{-8} , which was lower than the maximum acceptable level of 5.0×10^{-5} recommended by the International Commission for Radiation Protection (ICRP).

ABSTRACT

BACKGROUND: In recent years, with the improvement of people’s quality of life, people pay more and more attention to health, and thus endemic fluorosis attracts more and more attention. While paying attention to the analysis of the fluorine pollution source and research on exposure pathways, it is also necessary to carry out health risk evaluations of fluorine exposure pathways. According to the survey, the fluorine content in the surface soil of Pengbao Town, Yuanzhou District, and Guyuan City is higher than the local background value.

OBJECTIVES: To investigate the effect of fluorine on human health.

METHODS: The health risk assessment model recommended by the US Environmental Protection Agency was used to assess the human health risk. According to the actual situation of endemic diseases caused by excessive fluorine, the samples of surface soil, stratum rocks, crops and groundwater in Pengbao Town, Yuanzhou District, and Guyuan City were collected. The related elements were analyzed by inductively coupled plasma – optical emission spectrometry, atomic fluorescence spectrometry and other analytical methods to study the influence of excessive fluorine on human health in Pengbao Town of Yuanzhou District, and Guyuan City.

RESULTS: The evaluation results showed that the health risk index (HQ) of fluorine exposure pathways in cereals and vegetables was less than 1, and there was no non – carcinogenic risk. The main way of exposure risk of local fluorine was drinking groundwater, and the related health risk index (HQ) was more than 1, which indicated that drinking groundwater with excessive fluorine may have potential non – carcinogenic risk. The annual total health risk was 1.69×10^{-8} , which was lower than the maximum acceptable annual health risk level of 5.0×10^{-5} recommended by the International Commission for Radiological Protection (ICRP).

CONCLUSIONS: Based on the results of the fluorine health risk assessment, it is proposed that the safety of drinking water in this area needs more attention.

KEY WORDS: fluorine; groundwater; inductively coupled plasma – optical emission spectrometry; atomic fluorescence spectrometry; health risk assessment model; health risk index; Pengbao Town of Yuanzhou District