我国人群高氯酸盐暴露途径及贡献率分析

陈文秀^{1,2}, 何纳轮^{1,2}, 史亚利^{1,2}, 安伟^{1*}, 杨敏^{1,2}

1. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085;

2. 中国科学院大学资源与环境学院, 北京 100049

* 联系人, E-mail: anwei@rcees.ac.cn

2019-12-18 收稿, 2020-02-08 修回, 2020-02-10 接受, 2020-02-12 网络版发表

水体污染控制与治理科技重大专项(2018ZX07502001)和国家自然科学基金(21976205, 11931001)资助

摘要 由于高氯酸盐干扰甲状腺对碘的吸收, 抑制人体甲状腺激素的分泌而导致碘缺乏症, 近年来引起了环境学家和卫生部门的广泛关注. 为研究高氯酸盐在我国人群中多途径暴露情况, 通过对“十一五”和“十二五”期间全国重点城市饮用水水质监测数据统计, 结合中国居民膳食摄入量, 计算出全国14个城市居民在摄入、呼吸、皮肤接触3种暴露途径下高氯酸盐的贡献率, 并分析不同流域地区高氯酸盐贡献率的差异. 结果显示: (1) 我国自来水中高氯酸盐浓度在0.149~152 $\mu\text{g/L}$ 之间. 各省份污染水平存在显著差异, 武汉、上海、成都污染最为严重. (2) 呼吸和皮肤接触途径下高氯酸盐的贡献率很小, 分别为0.88%和0.27%, 主要为经口摄入途径, 其中饮用水、谷物、蔬菜约占总摄入量的92%, 具体为蔬菜(32.05%)>饮用水(32.02%)>谷物(28.12%)>肉类(2.51%)>水果(2.30%)>薯类(1.85%)>乳类(1.31%)>蛋类(0.87%)>水产品(0.86%)>豆类(0.16%)>食糖(0.02%). (3) 长江流域地区人群高氯酸盐暴露途径主要为饮用水, 其他流域地区的主要暴露途径为植物类食物.

关键词 高氯酸盐, 暴露途径, 饮用水, 贡献率, 长江流域

高氯酸盐因其扩散性而广泛分布于饮用水和食品中, 也因其稳定性和持久性可在生物体内持续存在^[1]. 高氯酸盐危害人体健康的主要途径是通过饮水和食物经消化道进入人体. 空气中固态的高氯酸盐以粉尘的形式从呼吸系统、皮肤接触进入人和动物体内, 但呼吸和皮肤接触的量相对较少, 可以忽略不计^[2,3]. 高氯酸盐能抑制人体对碘的吸收而引发甲状腺疾病, 同时对免疫系统和生殖系统也有一定影响^[4-9], 其临床症状主要表现为甲状腺机能减退及大脑的发育障碍, 所以高氯酸盐在饮食中的来源和安全阈值受到人们的广泛关注.

环境中的高氯酸盐有人工和天然两种来源. 国际上饮用水中高氯酸盐多有检出, 且呈现出地下水浓度

高于地表水的特点^[10]. 我国饮用水高氯酸盐的平均浓度高于其他欧亚国家^[9], 其主要原因是烟花、军火行业固体推进剂中的氧化剂(高氯酸铵)在水中溶解、迁移并渗透至地下水层. 我国是全球最大的烟花生产国和消费国, 产量约占全球的90%^[1,4]. 湖南省是国内最大的烟花制造省份, 上规模的烟花制造厂约867个, 其中隶属于长沙浏阳市烟花产量就占全球60%以上. 2009年1月, 美国环保署推荐饮用水中高氯酸盐的参考剂量为15 $\mu\text{g L}^{-1}$ ^[11]. 2019年6月, EPA(U.S. Environmental Protection Agency)在《联邦公报》(*Federal Register*, <https://www.epa.gov/dwstandardsregulations/perchlorate-drinking-water>)中建议饮用水中高氯酸盐最大污染水平为56 $\mu\text{g L}^{-1}$, 但目前国际上还没有强制性的高氯酸盐

引用格式: 陈文秀, 何纳轮, 史亚利, 等. 我国人群高氯酸盐暴露途径及贡献率分析. 科学通报, 2020, 65: 1387–1394

Chen W X, He N L, Shi Y L, et al. Analysis of exposure routes and contribution rate of perchlorate in China (in Chinese). Chin Sci Bull, 2020, 65: 1387–1394, doi: [10.1360/TB-2019-0845](https://doi.org/10.1360/TB-2019-0845)

标准. 我国高氯酸盐的污染虽然很严重, 但是仍缺乏全国性研究, 也未将其列入水质标准中并给出限值^[10-16].

高氯酸盐在“十二五”期间已经被列为全国水质普查的高风险污染物优先控制清单. 水质标准是对污染监管和控制的有效手段, 而不同途径的贡献率是水质标准制定过程中必不可少的部分. 由于我国的产业差异, 高氯酸盐暴露具有很强的区域特色, 无法直接参考国外的高氯酸盐的不同暴露途径的贡献率. 与此同时, 我国仍然缺乏在全国范围内对高氯酸盐的人群摄入途径贡献的参数. 本研究基于对饮用水中高氯酸盐的调查, 结合其他行业研究, 估算了全国范围内人群在不同途径中高氯酸盐暴露情况的贡献率和各地区呈现的差异, 为我国高氯酸盐的标准制定和科学管理提供支持.

1 材料与方法

1.1 数据来源

本研究的实测数据主要来自于2009年11月~2012年5月对北京、上海、成都、乌鲁木齐等全国35个重点城市127个水厂出厂水质进行的两次大规模水质调查, 对部分城市雨季和旱季出厂水高氯酸盐浓度进行对比, 结果如图1所示. 整体上, 旱季高氯酸盐浓度高于雨季, 但局部北京、贵阳等地出现旱季浓度比雨季浓度低的现象. 所以, 取浓度的中位数作为一个城市的高

氯酸盐出厂水的最终计算浓度.

1.2 贡献率计算

人群高氯酸盐饮用水的贡献率对环境管理有重要意义. 人群高氯酸盐暴露途径主要有3种: 饮食摄入、呼吸和皮肤接触.

$$\text{贡献率} = \frac{\text{各途径慢性每日摄入量}}{\text{总慢性每日摄入量}} \quad (1)$$

(i) 摄入. 中国膳食宝塔里将食品分为13类, 除去调味品一共12类. 具体为: 水和饮料酒类、谷物类及其制品、蔬菜类及其制品、水果类及其制品、薯类及其制品、豆类及其制品、肉类及其制品、水产及其制品、蛋及其制品、乳及其制品、糖及其制品、油类^[13].

根据2009~2012年城乡居民食物消费调查结果^[17,18], 中国居民每天饮用水、谷物、蔬菜、水果、奶、蛋、肉、水产、豆、薯、糖的摄入量分别为1850 mL、337.3、269、40.7、24.7、24.3、89.7、23.7、10.9、35.8、6.4 g, 考虑到油类中高氯酸盐基本无检出, 所以油类忽略不计入. 基于报道的全国12个省份的14个城市居民膳食中高氯酸盐浓度的检测值^[13], 计算各膳食途径长期慢性每日摄入量(chronic daily intake, CDI), 如式(2)^[19]:

$$CDI_{\text{cat}} = \frac{C \times IR \times EF \times ED}{BW \times AT} \quad (2)$$

具体参数含义和取值见表1.

图1 各城市不同季节饮用水高氯酸盐浓度

Figure 1 Perchlorate concentration of drinking water in different cities by season

根据全国不同地区12个省份14个城市89个水厂采样点的饮用水中高氯酸盐浓度数据和居民人均饮用水摄入量^[20],计算饮用水途径长期慢性每日摄入量,如式(3)^[19]:

$$CDI_{\text{dri}} = \frac{C_w \times IR \times EF \times ED}{BW \times AT} \quad (3)$$

具体参数的含义和取值见表1.

(ii) 呼吸. 灰尘中也有少量高氯酸盐通过呼吸进入人体, 根据以前研究中对全球12个国家室内高氯酸盐量进行的监测^[24], 检测得到中国室内空气高氯酸盐浓度范围是0.88~60.7 $\mu\text{g g}^{-1}$, 浓度中位数为4.2 $\mu\text{g g}^{-1}$ (5.418 mg L^{-1}). 成年人日摄入量值为121.2 ng, 假设高氯酸盐从粉尘到全身血液循环吸收率为100%^[24].

(iii) 皮肤接触. 皮肤接触主要指淋浴. 洗澡频率(F)和洗澡时长(t)的估计值来自于中国从北方到南方选择了3个典型城市(石家庄、宁波和厦门)的洗澡调查数据. 为了最小化由潜在离群值而导致的估计偏差, 以调查数据的10th, 50th和90th分位数生成三角形分布来表征 F 和 t ^[21]:

$$CDI_{\text{der}} = \frac{C_w \times As \times PC \times t \times F \times EF \times ED}{BW \times AT} \quad (4)$$

具体参数的含义和取值见表1.

2 结果与讨论

2.1 全国各地区饮用水高氯酸盐污染情况

自2008年启动全国的水专项调查, 我国自来水中

高氯酸的检出率为100%, 检出范围为0.149~152 $\mu\text{g L}^{-1}$, 均值为(6.05±17.23) $\mu\text{g L}^{-1}$. 从总体来看, 高氯酸盐在南方的平均浓度高于北方平均浓度, 长江流域地区饮用水高氯酸盐污染较为严重, 28%水样高氯酸盐浓度超过美国EPA的暂定限值(15 $\mu\text{g L}^{-1}$)^[11], 成都水样超标83%, 长沙某一水厂最高浓度达到105 $\mu\text{g L}^{-1}$, 而其他地区水样中高氯酸盐浓度均未超标. 融合其他研究在2008~2009年和2014年9~11月收集的自来水水样中高氯酸盐浓度^[25,26], 如表2所示. 通过对比发现, 除北京和沈阳之外, 其他9个城市自来水中高氯酸盐污染在不同程度地加重, 表明环境中高氯酸盐的连续释放和持久性使其在水环境中随时间而增多^[26], 其中成都变化波动最大, 可能与上游存在高氯酸盐污染源有关.

2.2 饮用水高氯酸盐贡献率分布及各地区差异

将各城市饮用水高氯酸盐浓度的中位数进行对数正态分布检验, Shapiro-Wilk检验($P=0.615>0.05$)显示符合对数正态分布, 制得QQ图(quantile-quantile plot)如图2所示.

不同流域地区人群高氯酸盐暴露途径贡献率如图3所示, 饮用水高氯酸盐的贡献率存在明显的流域差异. 整体来看, 长江流域人群高氯酸盐暴露来源主要为饮用水, 而其他流域地区主要为植物类食物. 高氯酸盐饮用水贡献率从低到高为: 东南沿海诸河流域、松花江流域、黄河流域、珠江流域、淮河流域、海河流域、辽河流域、长江流域. 我国未制定高氯酸盐的工业废水排放标准, 长江流域地区聚集着众多烟花爆竹生产

表1 慢性摄入量中使用的参数及参数值^{a)}

Table 1 Parameters and parameter values used in chronic intake

参数	单位	参考值	来源
饮用水中高氯酸盐浓度(C_w)	$\mu\text{g/L}$	0.149~152	本研究
膳食中高氯酸盐浓度(C)	mg/kg	—	[13]
饮水量(IR)	L/d; g/d	1.85	[17,18,20]
人体体重(BW)	kg	60	最新水质标准修订
平均暴露时间(AT)	天(d)	70×365	[19]
暴露频率(EF)	d/a	365	[19]
暴露时长(ED)	年(a)	70	[19]
淋雨频率(F)	次/天(showers/d)	0.43	[21]
洗浴时长(t)	分钟/次(min/shower)	15	[21]
皮肤表面积(As)	m^2	$(4BW+7)/(BW+90)$	[21]
皮肤渗透系数(PC)	m/min	1.48×10^{-6}	[22,23]

a) “—”表示膳食中高氯酸盐浓度, 由于不同地区、不同种类膳食中高氯酸盐浓度不一样, 无法一一展出, 具体值见参考文献[13]

表2 不同年份自来水中高氯酸盐浓度文献数据汇总

Table 2 Summary of literature data on perchlorate concentration in tap water in different years

城市	2008~2009年		2009~2012年		2014年	
	样本量	Mean±SD ($\mu\text{g L}^{-1}$)	样本量	Mean±SD ($\mu\text{g L}^{-1}$)	样本量	Mean±SD ($\mu\text{g L}^{-1}$)
北京	9	2.04±2.35	6	1.54±0.73		
上海	8	2.43±2.92	6	8.49±5.98		
天津	12	0.44±0.20	6	1.65±0.86		
哈尔滨	5	0.21±0.16	4	0.41±0.35		
沈阳	6	3.80±3.44	6	1.79±1.64		
济南	7	1.02±1.06	8	3.55±2.69		
郑州	9	1.00±0.07	6	1.08±0.92		
南昌	4	8.44±6.18	3	8.58±7.07		
成都	6	0.18±0.009	6	47.67±21.53	51	0.86
昆明	5	0.20±0.14	4	1.88±0.83		
深圳	6	0.15±0.02	12	1.12±0.51

图2 (网络版彩色)14个主要城市饮用水高氯酸盐浓度QQ图
Figure 2 (Color online) QQ chart of perchlorate concentration of drinking water in 14 major cities

厂,生产过程用的氧化剂高氯酸铵排放扩散,造成水体污染。四川、江西、上海、湖北四省份饮用水贡献率尤为突出,中值高达68%,最大值为87.7%,表明饮用水是成都、上海为代表的长江流域地区居民高氯酸盐暴露的主要风险源。其中,成都饮用水中高氯酸盐浓度约是上海的4.5倍,但由于成都其他膳食如谷物、蔬菜中高氯酸盐污染也很严重,所以成都和上海饮用水贡献率近似相同。膳食中高氯酸盐浓度最高的是绿叶蔬菜,可能是由于叶状植物可以从受污染的土壤或灌溉用水中积累高氯酸盐,例如,通过含高氯酸盐的水灌溉之后,叶面水分蒸发,但高氯酸盐留在其表面。除此之外,叶状蔬菜与空气的接触面积较大,灰尘中的高氯酸盐易

沉降在其表面。其他有关成都食物高氯酸盐浓度的调查发现,菠菜中高氯酸盐浓度高达 417 ng g^{-1} [26]。如表3所示,福建和宁夏谷物贡献率分别高达70%和57%,明显高于其他省份(3%~33%),但两省饮用水途径贡献率较低,约为6%。以大连和沈阳为代表的辽宁省蔬菜贡献率高达64%。另外,宁夏地区肉类和乳类高贡献率较高。整体上各膳食贡献率在区域、流域上呈现趋同性。

2.3 各膳食途径高氯酸盐贡献率分布

不同城市高氯酸盐暴露途径下的贡献率如表3所示。对全国高氯酸盐各途径贡献进行分布模拟。从全国水期望值来看,皮肤接触和呼吸途径的高氯酸盐贡献率与摄入途径相比要低2~3个数量级,分别为0.88%和0.27%,基本可以忽略不计。不同摄入途径的贡献率如图4所示。以蔬菜和谷物为主的植物类食品为居民高氯酸盐摄入的主要来源,约占65%,其次是饮用水,占32%,贡献率较低的是肉蛋奶类和其他(食糖、水产品),占4.69%和0.88%。单品贡献率低的是糖类、豆类、蛋类、海产品,这4类贡献率均不足1%,主要是由于这4类高氯酸盐含量较低,日常摄入量也少。

2.4 不确定性分析

(i) 参数的不确定性。影响贡献率计算的参数很多,在贡献率计算过程中,为估计参数做了较多必要的假设,例如成人洗澡时间、洗澡频率相同等,这是对实际情况的简化。由于饮用水摄入量没有准确的调查数

图 3 不同流域地区人群高氯酸盐暴露途径贡献率和饮用水高氯酸盐浓度
Figure 3 Contribution rate of perchlorate exposure pathway and drinking water perchlorate concentration in different watershed areas

表 3 全国14城市居民高氯酸盐暴露风险途径贡献率(%)
Table 3 Contribution rate of perchlorate exposure pathway in 14 cities of China (%)

城市	摄入贡献率											呼吸 贡献率	皮肤接触 贡献率
	饮用水	谷物	薯类	豆类	蔬菜	水果	肉类	水产品	蛋类	乳类	食糖		
福州	5.58	70.38	0.99	0.11	17.94	1.47	2.11	0.32	0.19	0.51	0.00	0.36	0.05
厦门	6.34	69.81	0.99	0.11	17.79	1.46	2.09	0.32	0.18	0.50	0.00	0.35	0.05
南宁	16.65	15.40	0.99	0.15	59.60	1.47	2.47	0.63	0.37	1.14	0.07	0.94	0.14
石家庄	31.60	17.93	2.03	0.70	38.94	2.09	1.97	0.58	1.75	1.35	0.00	0.80	0.27
郑州	21.02	32.19	3.10	0.00	28.02	7.43	2.65	0.85	0.41	2.17	0.12	1.85	0.18
哈尔滨	9.16	28.13	10.01	0.56	32.01	5.94	6.10	1.90	1.06	2.75	0.00	2.31	0.08
武汉	37.80	12.49	0.97	0.36	43.14	1.84	0.89	0.29	0.35	0.86	0.00	0.69	0.32
南昌	54.04	28.84	0.57	0.12	13.11	1.21	0.70	0.42	0.02	0.21	0.00	0.31	0.46
大连	38.30	7.68	2.66	0.10	46.96	0.61	1.30	0.22	0.39	1.00	0.00	0.45	0.33
沈阳	15.09	10.60	3.67	0.14	64.87	0.85	1.79	0.31	0.54	1.38	0.00	0.63	0.13
银川	8.70	56.75	0.42	0.00	13.35	3.57	10.09	0.60	0.98	3.39	0.15	1.93	0.07
西安	17.07	14.59	0.22	0.00	43.43	4.73	3.43	7.08	5.71	2.15	0.00	1.46	0.15
上海	83.19	4.62	0.39	0.11	7.05	1.15	0.95	0.22	0.10	0.97	0.00	0.53	0.71
成都	87.69	3.13	0.13	0.01	7.63	0.17	0.18	0.08	0.04	0.09	0.00	0.11	0.75

据，本研究人群饮用水摄入量采用平均饮用水摄入量 1850 mL，范围在1050~3525 mL之间。参数敏感性分析结果表明，饮用水高氯酸盐贡献率随该参数的取值呈正相关关系。

(ii) 饮食文化差异的不确定性。我国地区经济发展不平衡且差异性大，不同地区居民的自然环境以及生活习惯不同。我国南方和北方分别以米、面为主食，而全麦粉中高氯酸盐的浓度约为大米的4倍；东南沿海地区居民吃鱼虾等海产品较多，而虾和海藻等水生植

物体中高氯酸盐浓度高达70 $\mu\text{g kg}^{-1}$ ^[27]。由2017 年对上海市售食品中高氯酸盐暴露评估可知，高氯酸盐在茶叶中暴露水平为59.0±51.9 $\mu\text{g kg}^{-1}$ ^[28,29]。德国茶叶协会对多种茶叶样本进行调研发现，只有产自中国的所有茶叶含有高氯酸盐。这种由饮食文化带来的差异因人而异，无法作为膳食统一进行计算。

3 结论与展望

从高氯酸盐在我国饮用水中的暴露水平来看，检

出率高且检出范围广。人群高氯酸盐的摄入量和暴露途径存在明显的流域性差异,长江流域地区人群高氯酸盐暴露源主要为饮用水,其他流域地区的主要暴露源为植物类食物。从全国范围内饮食贡献率来看,蔬菜贡献率最高约占(32.05±32.95)%,其次是饮用水(32.02±40.1)%和谷物(28.12±37.93)%,其中,饮用水贡献率范围广,各流域差异明显。

通过本研究得到我国人群高氯酸盐暴露途径贡献率和不同流域地区暴露来源的差异,间接分析高氯酸盐产生源,不仅对改善居民尤其是居住及生活在长江流域地区人群膳食健康具有指导意义,也对国家制定相关高氯酸盐标准具有重要的参考价值。展望未来,有必要围绕高氯酸盐的污染进行溯源,查明我国高氯酸盐污染的不同行业排污贡献,为高氯酸盐的控制策略优化提供依据。

图4 (网络版彩色)饮用水和膳食中高氯酸盐的贡献率
Figure 4 (Color online) Contribution rate of perchlorate in drinking water and diet

参考文献

- Yang Y Q, Gao N Y. Research progress in perchlorate pollution and removal technology in China (in Chinese). *Environ Pollut Control*, 2011, 33: 75–78 [杨一琼, 高乃云. 中国高氯酸盐污染现状及去除技术研究进展. *环境污染与防治*, 2011, 33: 75–78]
- Mou S F, Zhu Y, Liu K N. Method and Application of Ion Chromatography (in Chinese). 3rd ed. Beijing: Chemical Industry Press, 2018. 1038 [牟世芬, 朱岩, 刘克纳. 离子色谱方法及应用(第三版). 北京: 化学工业出版社, 2018. 1038]
- Jiang S, Li Y S, Ma H M, et al. Source, pollution status and analysis method of perchlorate in environment (in Chinese). *Adv Chin J Geol*, 2010, 25: 617–624 [姜苏, 李院生, 马红梅, 等. 环境中高氯酸盐的来源、污染现状及其分析方法. *地球科学进展*, 2010, 25: 617–624]
- Liu Y J, Mou S F, Lin A W, et al. Study on bromate, haloacetic acid and perchlorate in drinking water in Beijing (in Chinese). *Environ Sci China*, 2004, 2: 51–55 [刘勇建, 牟世芬, 林爱武, 等. 北京市饮用水中溴酸盐、卤代乙酸及高氯酸盐研究. *环境科学*, 2004, 2: 51–55]
- Kunisue T, Fisher J W, Kannan K. Modulation of thyroid hormone concentrations in serum of rats coadministered with perchlorate and iodide-deficient diet. *Arch Environ Contam Toxicol*, 2011, 61: 151–158
- Bernhardt R R, von Hippel F A, Cresko W A. Perchlorate induces hermaphroditism in threespine sticklebacks. *Environ Toxicol Chem*, 2006, 25: 2087–2096
- Qin J, Shu Y, Li Y, et al. Effects of perchlorate bioaccumulation on *Spodoptera litura* growth and sex ratio. *Environ Sci Pollut Res*, 2016, 23: 8881–8889
- Li Q, Meng W, Zhang J L, et al. Research status of health hazards of perchlorate (in Chinese). *Chin J Toxicol*, 2009, 23: 250–252 [李琴, 孟伟, 张金良, 等. 高氯酸盐的健康危害研究现状. *毒理学杂志*, 2009, 23: 250–252]
- Wang R. Research progress on pollution levels of perchlorate in environmental media (in Chinese). *Sichuan Chem Ind*, 2016, 19: 39–42 [王荣. 高氯酸盐在环境介质中的污染水平研究进展. *四川化工*, 2016, 19: 39–42]
- Cai Y Q, Shi Y L, Zhang P, et al. Environmental pollution issues with perchlorate (in Chinese). *Prog Chem*, 2006, 18: 1554–1564 [蔡亚岐, 史亚利, 张萍, 等. 高氯酸盐的环境污染问题. *化学进展*, 2006, 18: 1554–1564]
- Kucharzyk K H, Crawford R L, Cosens B, et al. Development of drinking water standards for perchlorate in the United States. *J Environ Manage*, 2009, 91: 303–310
- Sun W S, Zhou M, Liu X C, et al. Simultaneous determination of chlorate and perchlorate in food by isotope dilution ion chromatography-tandem mass spectrometry (in Chinese). *J Food Saf Qual*, 2018, (14): 28 [孙文闪, 周敏, 刘志成, 等. 同位素稀释离子色谱-串联质谱法同时测定食品中的氯酸盐和高氯酸盐. *食品安全质量检测学报*, 2018, (14): 28]
- Yang J J. Study in dietary perchlorate and bromate exposure levels of Chinese residents (in Chinese). Master Dissertation. Wuhan: Wuhan Institute of Technology, 2012 [杨佳佳. 中国居民膳食高氯酸盐和溴酸盐暴露水平研究. 硕士学位论文. 武汉: 武汉工业学院, 2012]
- Maffini M V, Trasande L, Neltner T G. Perchlorate and diet: Human exposures, risks, and mitigation strategies. *Curr Environ Health Rep*, 2016, 3: 107–117
- Steinmaus C M. Perchlorate in water supplies: Sources, exposures, and health effects. *Curr Environ Health Rep*, 2016, 3: 136–143

- 16 Wang Z, Fu X Q. Perchlorate in drinking water (in Chinese). *Water Purif Technol*, 2001, 20: 3–4 [王净, 付学起. 饮用水中的高氯酸盐. *净水技术*, 2001, 20: 3–4]
- 17 Li Z M. Research on food consumption and nutrition development of Chinese urban and rural residents (in Chinese). Doctor Dissertation. Beijing: Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2007 [李哲敏. 中国城乡居民食物消费及营养发展研究. 博士学位论文. 北京: 中国农业科学院, 2007]
- 18 Zhao L Y, Fang Y H, He Y N, et al. Changes in food consumption of Chinese urban and rural residents from 1992 to 2012 (in Chinese). *J Hygiene Res*, 2016, 45: 522–526 [赵丽云, 房玥晖, 何宇纳, 等. 1992~2012 年中国城乡居民食物消费变化趋势. *卫生研究*, 2016, 45: 522–526]
- 19 Lee S C, Guo H, Lam S M J, et al. Multipathway risk assessment on disinfection by-products of drinking water in Hong Kong. *Environ Res*, 2004, 94: 47–56
- 20 Zheng C J, Zhao X G, Huang N, et al. Study on adult drinking water consumption in China (in Chinese). *J Environ Health*, 2014, 31: 967–970 [郑婵娟, 赵秀阁, 黄楠, 等. 我国成人饮水摄入量研究. *环境与健康杂志*, 2014, 31: 967–970]
- 21 Wan Y, Wu Q, Abualnaja K O, et al. Occurrence of perchlorate in indoor dust from the United States and eleven other countries: Implications for human exposure. *Environ Int*, 2015, 75: 166–171
- 22 Chowdhury S, Rodriguez M J, Sadiq R. Disinfection byproducts in Canadian provinces: Associated cancer risks and medical expenses. *J Hazard Mater*, 2011, 187: 574–584
- 23 Pan S L. Health risk assessment of drinking water using disability-adjusted life years (in Chinese). Master Dissertation. Beijing: Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, 2014 [潘申龄. 基于伤残调整寿命年(DALYs)的饮用水健康风险评价. 硕士学位论文. 北京: 中国科学院生态环境研究中心, 2014]
- 24 Gan W, Guo W, Mo J, et al. The occurrence of disinfection by-products in municipal drinking water in China's Pearl River Delta and a multipathway cancer risk assessment. *Sci Total Environ*, 2013, 447: 108–115
- 25 Wu Q, Zhang T, Sun H, et al. Perchlorate in tap water, groundwater, surface waters, and bottled water from China and its association with other inorganic anions and with disinfection byproducts. *Arch Environ Contam Toxicol*, 2010, 58: 543–550
- 26 Gan Z, Pi L, Li Y, et al. Occurrence and exposure evaluation of perchlorate in indoor dust and diverse food from Chengdu, China. *Sci Total Environ*, 2015, 536: 288–294
- 27 Fang Q L, Chen B L. Environmental transport behaviors of perchlorate as an emerging pollutant and their effects on food safety and health risk (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2013, 58: 2626–2642 [方齐乐, 陈宝梁. 新型环境污染物高氯酸盐的环境化学行为, 食品安全及健康风险. *科学通报*, 2013, 58: 2626–2642]
- 28 Tian Y M, Gong Z Y. Research progress on perchlorate contamination in food and its toxicological effects (in Chinese). *Food Sci*, <https://kns-cnki-net.webvpn.las.ac.cn/kcms/detail/11.2206.TS.20190507.1820.008.html>, 2020-03-18 [田一娟, 宫智勇. 食品中高氯酸盐的污染现状及毒理作用研究进展. *食品科学*, <https://kns-cnki-net.webvpn.las.ac.cn/kcms/detail/11.2206.TS.20190507.1820.008.html>, 2020-03-18]
- 29 Yu S H, Li Y Q, Zhang X S, et al. Exposure assessment of perchlorate contamination in Shanghai foods (in Chinese). *Shanghai Prev Med*, 2017, 29: 426–430 [宇盛好, 李亦奇, 张旭晟, 等. 上海市市售食品中高氯酸盐污染的暴露评估. *上海预防医学*, 2017, 29: 426–430]

Summary for “我国人群高氯酸盐暴露途径及贡献率分析”

Analysis of exposure routes and contribution rate of perchlorate in China

Wenxiu Chen^{1,2}, Nalun He^{1,2}, Yali Shi^{1,2}, Wei An^{1*} & Min Yang^{1,2}¹ Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China;² College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China* Corresponding author, E-mail: anwei@rcees.ac.cn

Perchlorate can interfere with the body's ability to absorb iodine, which can result in iodine deficiency. The primary clinical symptoms of iodine deficiency are hypothyroidism and brain development disorders. Due to its toxicity, wide spread attention has been paid in recent years to the sources and safety threshold of perchlorate exposure in humans. Although the Chinese government has carried out a general survey on sources of environmental pollution throughout the country, a major gap still exists with respect to information concerning perchlorate. It is urgent to conduct a risk assessment and carry out research concerning control strategies for perchlorate production and human exposure. Water quality standards are an effective means of pollution supervision and regulation. To this end, the different levels of contribution to perchlorate exposure from various water sources are essential to setting water quality standards. Due to the wide range of industrial production in China, perchlorate exposure has strong regional characteristics. Thus, it is impossible to directly compare the contributions of different exposure routes of perchlorate in China to exposures that occur abroad. In addition, China still lacks a nationwide assessment mechanism that can contribute specific information concerning how perchlorate exposure occurs (i.e., intake pathways) in the Chinese population.

Therefore, this study is based on statistical information derived from drinking water quality monitoring data obtained from key cities in China from 2009 to 2012. When combined with the dietary intake of Chinese, the potential exposure of Chinese residents to perchlorate from the three major exposure routes, ingestion, respiration, and dermal contact is assessed for 14 major cities in China. Specifically, simulations are used to estimate the expected distribution and rate of perchlorate exposure in these 14 cities. The different rates of perchlorate exposure from drinking water from different watershed areas are also analyzed. The following results are obtained. (1) The concentration of perchlorate in tap water ranges from 0.149 to 152 µg/L. There are significant differences in pollution levels in the different provinces that are assessed. The most serious pollution levels are observed in Wuhan, Shanghai, and Chengdu. (2) The contribution of perchlorate exposure from respiration and dermal contact is minimal and measured 0.88% and 0.27%, respectively. Our results reveal that ingestion is the primary exposure route. Specifically, drinking water, cereals, and vegetables account for approximately 92% of the total exposure to perchlorate. We observe in order of highest exposure to perchlorate to the lowest as follows, vegetables (32.05%) > drinking water (32.02%) > cereals (28.12%) > meat (2.51%) > fruits (2.30%) > yam (1.85%) > milk (1.31%) > eggs (0.87%) > aquatic product (0.86%) > beans (0.16%) > sugar (0.02%). (3) Drinking water is the main source of perchlorate exposure in the Yangtze River Basin, while the main source of perchlorate exposure in other basin areas is plant-based.

As a whole, people in the Yangtze River Basin are exposed to high levels of perchlorate. The possible reason for these high exposures is that China is the world's largest producer and consumer of fireworks and firecrackers. The main fireworks production sites are concentrated in the Yangtze River Basin. During the process of producing fireworks, the solid oxidant, ammonium perchlorate, is discharged into the water. Also, perchlorate discharged into the atmosphere after setting off fireworks settles in the water and soil, which results in significant groundwater contamination. Until now, China has not formulated industrial wastewater discharge standards for perchlorate. Thus, the results from this study provide important reference values that can be applied to the current development of the Yangtze River Economic Belt and the health of the regional population. These results also can provide a scientific basis for the country to formulate effective and relevant perchlorate regulations.

perchlorate, exposure route, drinking water, contribution rate, Yangtze River Basindoi: [10.1360/TB-2019-0845](https://doi.org/10.1360/TB-2019-0845)