

我国城市饮用水中 N-亚硝基二甲胺分布水平与健康风险评估

蔡宏铨, 裴赛峰, 张昀, 沈朝烨

上海市疾病预防控制中心化学品毒性检定所, 上海 200336

摘要:

[背景] 亚硝胺类化合物, 特别是 N-亚硝基二甲胺 (NDMA), 致癌性强, 在我国饮用水中检出率高, 存在饮水途径摄入的风险。

[目的] 研究我国城市饮用水中 NDMA 的分布水平和健康风险, 为饮水标准研制提供参考。

[方法] 以“亚硝胺”和“饮用水”为关键词检索中国知网, 以“N-nitrosodimethylamine”或“nitrosodimethylamine”或“NDMA”、“drinking water”和“China”为关键词检索 PubMed 数据库, 纳入 2000 年 1 月 1 日至 2021 年 3 月 1 日发表的相关文献, 提取有效数据, 统计我国城市原水和出厂水中 NDMA 的时空暴露水平, 并依据美国环境保护署的致癌物质健康风险模型对出厂水中 NDMA 经饮水途径对不同地区和不同年龄段人群健康危害进行风险评估。

[结果] 共检索到 102 篇文献, 最终符合纳入条件的有 21 篇。共提取 347 个原水和 276 个出厂水 NDMA 质量浓度数据, 检出率分别为 82.4% 和 67.0%, 质量浓度分别为未检出 (ND)~141、ND~67.1 ng·L⁻¹, 第 95 百分位数分别为 51.4、32.1 ng·L⁻¹。华东和华北地区城市原水中 NDMA 浓度高于出厂水 ($P < 0.05$)。华东地区原水和出厂水中 NDMA 平均质量浓度最高 (分别为 21.4、9.0 ng·L⁻¹)。2018—2019 年华东地区原水和出厂水中 NDMA 平均质量浓度 (分别为 5.9、6.1 ng·L⁻¹) 低于 2015—2017 年 (分别为 28.7、16.5 ng·L⁻¹) ($P < 0.05$)。作为饮用水源的江河湖塘溪中 NDMA 平均质量浓度 (20.8 ng·L⁻¹) 高于地下水 and 水库水 (分别为 8.0、6.5 ng·L⁻¹) ($P < 0.05$)。采用预氯化的出厂水中 NDMA 平均质量浓度 (9.4 ng·L⁻¹) 高于非预氯化 (6.0 ng·L⁻¹) ($P < 0.05$)。我国 1 岁以上儿童经饮水暴露于 NDMA 的致癌风险随年龄的增加而减小, 其中 1~<2 岁幼儿的终生致癌风险 (2.52×10^{-4}) 是成人 (1.09×10^{-5}) 的 23 倍。

[结论] 我国城市饮用水中 NDMA 主要来自原水污染, 现有的水厂处理工艺对 NDMA 有一定去除能力。近两年华东地区出厂水中 NDMA 水平呈下降趋势。儿童经饮水暴露于 NDMA 的致癌风险高于成人, 亟需加强健康风险管理。建议把 35 ng·L⁻¹ 作为我国 NDMA 水质安全标准的限值。

关键词: N-亚硝基二甲胺; 饮用水; 中国; 分布; 致癌风险

Distribution and health risk assessment of N-nitrosodimethylamine in urban drinking water in China CAI Hongquan, PEI Saifeng, ZHANG Yun, SHEN Chaoye (Division of Chemical Toxicity and Safety Assessment, Shanghai Municipal Center for Disease Control and Prevention, Shanghai 200336, China)

Abstract:

[Background] Nitrosamines, especially N-nitrosodimethylamine (NDMA), are highly carcinogenic and frequently detected in drinking water systems in China, indicating potential human health risk through drinking water.

[Objective] This study aims to analyze the distribution of NDMA in urban drinking water around China and to evaluate relevant human health risk, thus providing recommendations for drinking water safety standards.

[Methods] The database of China National Knowledge Infrastructure was searched using nitrosamines and drinking water as key words in Chinese, and PubMed was searched using

DOI 10.13213/j.cnki.jeom.2021.21145

作者简介

蔡宏铨 (1988—), 女, 硕士, 主管医师;
E-mail: caihongquan@scdc.sh.cn

通信作者

沈朝烨, E-mail: shenchaoeye@scdc.sh.cn

伦理审批 不需要

利益冲突 无申报

收稿日期 2021-04-11

录用日期 2021-09-30

文章编号 2095-9982(2021)11-1231-07

中图分类号 R123

文献标志码 A

补充材料

www.jeom.org/article/cn/10.13213/j.cnki.jeom.2021.21145

引用

蔡宏铨, 裴赛峰, 张昀, 等. 我国城市饮用水中 N-亚硝基二甲胺分布水平与健康风险评估 [J]. 环境与职业医学, 2021, 38(11): 1231-1236, 1243.

本文链接

www.jeom.org/article/cn/10.13213/j.cnki.jeom.2021.21145

Correspondence to

SHEN Chaoye, E-mail: shenchaoeye@scdc.sh.cn

Ethics approval Not required

Competing interests None declared

Received 2021-04-11

Accepted 2021-09-30

Supplemental material

www.jeom.org/article/en/10.13213/j.cnki.jeom.2021.21145

To cite

CAI Hongquan, PEI Saifeng, ZHANG Yun, et al. Distribution and health risk assessment of N-nitrosodimethylamine in urban drinking water in China[J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2021, 38(11): 1231-1236, 1243.

Link to this article

www.jeom.org/article/en/10.13213/j.cnki.jeom.2021.21145

N-nitrosodimethylamine or nitrosodimethylamine or NDMA, drinking water, and China as key words in English for relevant literature published from January 1, 2000 to March 1, 2021. Eligible data were extracted to statistically analyze the spatiotemporal exposure levels of NDMA in raw and finished water serving Chinese cities. According to the health risk assessment model for carcinogens recommended by the United States Environmental Protection Agency (US EPA), the cancer risk via drinking water of NDMA in finished water was evaluated for different age groups and different regions.

[Results] A total of 102 studies were retrieved, 21 of which met the inclusion criteria and were finally included. The NDMA concentrations in 347 raw water samples and 276 finished water samples were extracted and studied, with positive rates of 82.4% and 67.0%, levels of not detected (ND)-141 and ND-67.1 ng·L⁻¹, and the 95th quantiles of 51.4 and 32.1 ng·L⁻¹, respectively. The level of NDMA in raw water was higher than that in finished water in cities of East and North China ($P < 0.05$). East China had the highest average concentrations of NDMA in raw and finished water (21.4 and 9.0 ng·L⁻¹ respectively). In East China, the average concentrations of NDMA in raw and finished water from 2018 to 2019 (5.9 and 6.1 ng·L⁻¹ respectively) were significantly lower than those from 2015 to 2017 (28.7 and 16.5 ng·L⁻¹ respectively) ($P < 0.05$). The average concentration of NDMA in rivers, lakes, ponds, and streams as drinking water sources (20.8 ng·L⁻¹) was significantly higher than that in groundwater sources (8.0 ng·L⁻¹) and in reservoir sources (6.5 ng·L⁻¹) ($P < 0.05$). The average concentration of NDMA in finished water with pre-chlorination (9.4 ng·L⁻¹) was higher than that without (6.0 ng·L⁻¹) ($P < 0.05$). The cancer risk of NDMA through drinking water for children over 1 year old in China decreased with older age, and the risk of infants aged 1~<2 years (2.52×10^{-4}) was 23 times higher than that of adults (1.09×10^{-5}) ($P < 0.05$).

[Conclusion] Raw water pollution is the main source of NDMA in urban drinking water in China, and current water treatment technology can partially remove NDMA. The NDMA level in finished water of East China shows a downward trend in recent two years. The carcinogenic risk of NDMA via drinking water for children is higher than that for adults, and their health risk management needs to be strengthened. The study findings recommend 35 ng·L⁻¹ as the limit of NDMA water quality safety standard in China.

Keywords: N-nitrosodimethylamine; drinking water; China; distribution; cancer risk

N-亚硝基二甲胺(N-nitrosodimethylamine, NDMA)是饮用水中的含氮消毒副产物,主要由水体污染和氯化消毒产生,其生成受原水中前体物、消毒剂和反应条件影响^[1]。由于具有很强的遗传毒性、细胞毒性和致癌性^[1],并且在饮用水中具有高检出率^[2],其对人群健康的影响备受学术界和管理层的关注。国际癌症研究机构将NDMA致癌性定为2A^[3],美国环境保护署(United States Environmental Protection Agency, US EPA)规定当致癌风险为 10^{-6} 时,对应饮用水中NDMA最大容许质量浓度仅为0.7 ng·L⁻¹^[4]。流行病学研究显示,亚硝胺类物质(nitrosamines, NAs)污染严重的饮用水与消化系统癌症密切相关^[5]。

中国城市出厂水和管网水中NDMA的检出率是US EPA在2012年公布的大规模普查结果的3.6倍^[2],平均质量浓度高达32 ng·L⁻¹。我国现行的GB 5749—2006《生活饮用水卫生标准》未将NDMA纳入监管控制之中,为保障饮用水安全,2018年修订时,参考世界卫生组织(World Health Organization, WHO)标准,增加了NDMA的限值设置。目前,我国对NDMA的暴露情况分析和健康风险评估数据不够充分,且多为区域性调查及针对特定人群的选择性研究^[6-7]。

本研究通过文献调研系统首次对十年来中国不同地区城市饮用水中NDMA的分布特征和浓度变化进行分析和总结,并评估NDMA通过饮水途径对不同年龄人群造成的致癌风险,为优化我国饮水标

准提供基础数据。

1 材料与方法

1.1 文献检索

在中国知网的检索策略:以“TKA=亚硝胺 AND TKA=饮用水”为检索式,来源类别为学术期刊,选择北大核心和CSSCI。在PubMed的检索策略:以“(N-nitrosodimethylamine[Title/Abstract] OR nitrosodimethylamine[Title/Abstract] OR NDMA[Title/Abstract]) AND drinking water[Title/Abstract] AND China[Affiliation]”为检索式,检索时间为2000年1月1日至2021年3月1日。同时追溯相关文献的参考文献,纳入近年来公开发表的我国城市饮用水中NDMA污染状况的研究。当两篇及以上的文献具有相同的数据来源,选择最近发表的文章。排除毒理学研究、分析化学类研究、综述(避免数据重复统计)及评论文章。

1.2 数据提取

对符合标准的文献提取以下信息或数据:采样时间、采样地点、水样类型、消毒方式、NDMA检测浓度和方法检出限。对未提供检测原始数据的文献,使用Plot digitizer 2.6.8.0软件从文献图片中提取。采样地区的划分依据中国人群暴露参数手册,分为华北、华东、华南、西北、东北和西南地区^[8]。为方便统计,对于采样周期为两年的文献,将第二年定为采样年份,对于采样周期大于两年的文献,取中位数为采样年份^[9]。

除文章特别说明外,将6月到9月定为丰水期,12月到次年2月为枯水期,其他月份为平水期。原水类型分为地表水1(包括作为饮用水源地的江河湖塘溪)、地表水2(水库水)和地下水。消毒剂分为液氯、氯胺、次氯酸钠、二氧化氯和臭氧-氯化组合消毒。预氧化方式分为预氯化和非预氯化。

1.3 风险评估

采用US EPA推荐的致癌物质健康风险模型进行评估^[10],计算公式如下:

$$R_{LCR} = m_{ADD} \times f_{SF} \times f_{ADAF}$$

$$m_{ADD} = \frac{C \times m_{IR} \times f_{EF} \times t_{ED}}{m_{BW} \times t_{AT}}$$

公式中: R_{LCR} 为终生致癌风险,无单位; m_{ADD} 为日均摄入量, $\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$; f_{SF} 为NDMA致癌斜率因子, $\text{kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$; f_{ADAF} 为年龄调整因子,无单位; C 为不同地区出厂水中NDMA的平均质量浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; m_{IR} 为日均饮水量, $\text{L} \cdot \text{d}^{-1}$; f_{EF} 为暴露频率,为 $365 \text{ d} \cdot \text{年}^{-1}$; t_{ED} 为暴露年数,年; m_{BW} 为平均体重, kg ; t_{AT} 为平均暴露时间, d 。

模型中 f_{SF} 来源于US EPA的综合风险信息系统^[4],为 $51 \text{ kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$; f_{ADAF} 参考US EPA的风险评估补充指南^[11];不同地区不同年龄人群日均饮水量和平均体重参考《中国人群暴露参数手册》^[8,12-13]。计算结果依据US EPA推荐的最大可接受风险 10^{-4} 进行评估: R_{LCR} 高于 10^{-4} ,表明存在较大的致癌风险; LCR 为 $10^{-6} \sim 10^{-4}$,表明致癌风险尚可接受; LCR 低于 10^{-6} ,认为风险不明

显。不同年龄段暴露年数、平均暴露时间和年龄调整因子见补充材料表S1,不同地区不同年龄人群饮水量和体重见补充材料表S2。

1.4 统计学分析

文献的整理使用EndNote X7,绘图软件使用GraphPad Prism 9.0,纳入文献提取的信息和数据采用Excel 2016建立数据库。使用Stata 12.0软件进行统计分析,当NDMA为未检出时,用1/2方法检出限进行计算。当数据大于中位数+3倍四分位间距时,视为异常值,予以剔除。采用Wilcoxon-Mann-Whitney和Student's t 检验比较各地区原水和出厂水中NDMA浓度是否存在差异,采用Kruskal-Wallis H 检验比较不同地区、年份、季节、原水类型和消毒方式水样中NDMA浓度是否存在差异,采用秩变换后的单因素方差分析比较不同地区和不同年龄组的致癌风险是否存在差异。检验水准为 $\alpha=0.05$ 。

2 结果

2.1 我国城市饮用水中NDMA的分布

通过上述文献检索策略共检索到文献102篇,依据文献筛选标准最终纳入21篇文献,其中英文18篇,中文3篇,研究时间从2010到2020年,主要集中在华东和华南两个地区(表1)。筛掉4个异常值,从纳入文献中共提取347个原水和276个出厂水

表1 2010—2020年我国不同地区原水和出厂水中NDMA的质量浓度

Table 1 NDMA concentrations in raw and finished water from 2010 to 2020 in China

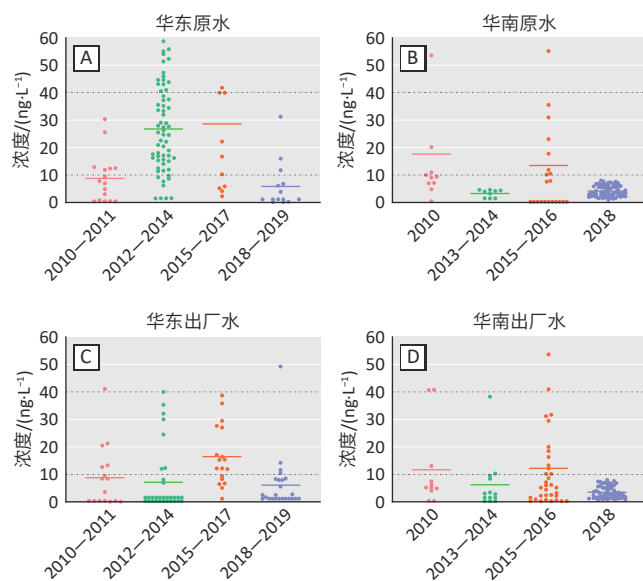
地区	平均值/($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$)	中位数/($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$)	第95百分位数/($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$)	范围/($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$)	检出率/(检出数/总数)	参考文献
原水						
华北	18.1	11.5	55.1	ND~141	85.6(89/104)	[14-16]
华东	21.4	16.8	54.1	ND~84.8	86.5(90/104)	[5-6,14,16-24]
华南	7.4	4.2	31.0	ND~83.6	86.0(92/107)	[16,19,25-30]
西北	2.3	ND	6.4	ND~6.4	40.0(2/5)	[16]
东北	12.1	4.0	39.9	ND~39.9	77.8(7/9)	[16,30]
西南	5.2	ND	19.3	ND~19.3	33.3(2/6)	[16]
全国	14.7	7.6	51.4	ND~141	82.4(286/347)	[5-6,14-31]
出厂水						
华北	5.4	1.8	21.6	ND~45.7	54.2(13/24)	[2,14,16]
华东	9.0	2.7	35.8	ND~49.3	53.9(48/89)	[2,5,6,14,16-18,20-22,24,30]
华南	7.1	3.4	38.3	ND~67.1	88.8(103/116)	[2,16,25-28,30]
西北	3.6	4.0	8.2	ND~8.2	66.7(4/6)	[2,16]
东北	4.2	ND	30.4	ND~30.4	43.8(7/16)	[2,16,30]
西南	2.1	ND	15.1	ND~15.1	25.0(3/12)	[2,16]
全国	7.0	3.0	32.1	ND~67.1	67.0(185/276)	[2,5-6,14,16-18,20-22,24-28,30-31]

[注]ND: 未检出。

NDMA 数据, 检出率分别为 82.4%和 67.0%, 质量浓度范围分别为未检出(not detected, ND)~141、ND~67.1 ng·L⁻¹, 第 95 百分位数分别为 51.4、32.1 ng·L⁻¹。

276 个出厂水中 NDMA 浓度均未超出 WHO《饮用水水质准则》的限值 100 ng·L⁻¹, 其中有 9 份水样高于加拿大卫生部限值 40 ng·L⁻¹, 52 份水样高于美国加州的区域性限值 10 ng·L⁻¹。如表 1 所示, 六个地区城市原水中 NDMA 浓度以华东和华北最高, 西北最低 ($P<0.05$); 各地区城市出厂水中 NDMA 浓度差异无统计学意义。华东和华北地区城市原水中 NDMA 浓度高于出厂水 ($P<0.05$)。

华东城市原水中 NDMA 平均质量浓度在 2010—2011、2012—2014、2015—2017 和 2018—2019 年分别为 8.8、26.8、28.7 和 5.9 ng·L⁻¹(图 1A), 出厂水分别为 8.8、7.1、16.5 和 6.1 ng·L⁻¹(图 1C); 无论原水还是出厂水, 2018—2019 年华东城市水样中 NDMA 浓度均小于 2015—2017 年 ($P<0.05$)。华东城市原水和出厂水 NDMA 浓度分布在枯水期、平水期和丰水期之间的差异无统计学意义。华南城市原水中 NDMA 平均质量浓度在 2010、2013—2014、2015—2016 和 2018 年分别为 17.6、3.3、13.5 和 4.2 ng·L⁻¹(图 1B), 出厂水分别为 11.7、6.2、12.2 和 3.5 ng·L⁻¹(图 1D)。2018 年华南城市原水和出厂水中 NDMA 浓度均小于 2015—2016 年 ($P<0.05$)。

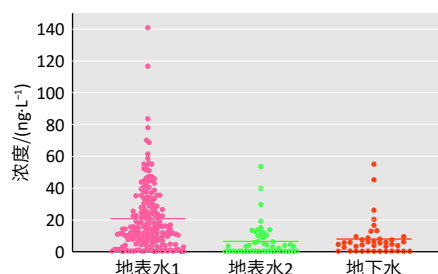


[注] 10 ng·L⁻¹: 美国加利福尼亚亚饮用水限值; 40 ng·L⁻¹: 加拿大饮用水限值。

图 1 华东和华南城市原水和出厂水中 NDMA 浓度随年份变化情况

Figure 1 Variations of NDMA concentrations in raw and finished water in cities of East and South China over years

我国不同类型原水中 NDMA 浓度为江河湖塘溪 (185 个水样, 平均 20.8 ng·L⁻¹) 高于地下水 (40 个水样, 平均 8.0 ng·L⁻¹) 和水库水 (52 个水样, 平均 6.5 ng·L⁻¹) ($P<0.05$)。见图 2。



[注] 地表水 1: 作为饮用水源地的江河湖塘溪; 地表水 2: 水库水。

图 2 不同类型原水中 NDMA 的浓度分布情况

Figure 2 NDMA concentrations in different types of raw water

按不同消毒方式分类, 液氯 (165 个水样)、次氯酸钠 (69 个水样)、二氧化氯 (12 个水样)、臭氧-氯化 (11 个水样)、氯胺 (6 个水样) 处理的出厂水中 NDMA 平均质量浓度分别为 6.3、3.8、25.1、15.7、9.2 ng·L⁻¹, 其中液氯消毒的出厂水 NDMA 质量浓度大于次氯酸钠消毒 ($P<0.05$); 预氯化的出厂水 NDMA 质量浓度 (79 个水样, 平均质量浓度 9.4 ng·L⁻¹) 大于非预氯化 (191 个水样, 平均质量浓度 6.0 ng·L⁻¹) ($P<0.05$)。

2.2 经饮水暴露于 NDMA 的致癌风险

使用表 1 中各地区城市出厂水中 NDMA 平均浓度计算的不同年龄人群 NDMA 日均摄入量差异无统计学意义。不同地区 NDMA 的日均摄入量以华东地区最高, 范围为 $3.00\times 10^{-7}\sim 7.85\times 10^{-7}$ mg·(kg·d)⁻¹, 东北和西南地区最低, 范围分别为 $8.42\times 10^{-8}\sim 1.75\times 10^{-7}$ mg·(kg·d)⁻¹ 和 $5.57\times 10^{-8}\sim 1.51\times 10^{-7}$ mg·(kg·d)⁻¹, 差异有统计学意义 ($P<0.05$)。

如图 3 所示, 1 岁后, 经饮水暴露于 NDMA 的致癌风险随年龄的增加先迅速减小 ($1\sim 4$ 岁), 再缓慢降低 (≥ 4 岁)。华东、华南和华北城市 $1\sim 2$ 岁和 $2\sim 3$ 岁幼儿经饮水暴露于 NDMA 的致癌风险高于 10^{-4} ($1.49\times 10^{-4}\sim 4.00\times 10^{-4}$), 表明存在较大的致癌风险; 其余地区和年龄段 NDMA 的致癌风险均在 $10^{-6}\sim 10^{-4}$ 之间, 表明存在潜在致癌风险, 但在可接受的范围内。全国范围内, NDMA 对 $1\sim 2$ 岁幼儿的终生致癌风险最高 (2.52×10^{-4}), 是 $9\sim 12$ 岁儿童致癌风险 (3.71×10^{-5}) 的 6 倍、 $15\sim 18$ 岁青少年 (2.40×10^{-5}) 的 10 倍, $18\sim$ 岁成人 (1.09×10^{-5}) 的 23 倍, 差异有统计学意义 ($P<0.05$)。

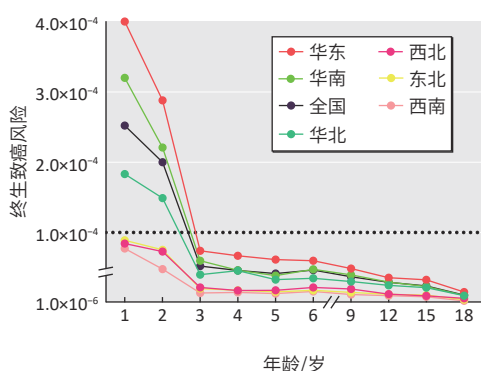


图3 不同地区不同年龄人群经饮水暴露 NDMA 终生致癌风险

Figure 3 Lifetime carcinogenic risks of NDMA via drinking water by region and age

3 讨论

研究饮用水中 NDMA 的污染状况,对于评估健康风险,制定卫生标准,不断提高供水水质具有重要意义。本研究结果显示,我国城市出厂水中 NDMA 平均质量浓度为 $7.0 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,检出率为 67.0%,均低于原水 ($14.7 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 82.4%),说明我国城市饮用水中 NDMA 主要来自原水污染,现有的水厂处理工艺对 NDMA 有一定去除能力,但无法完全去除。

相关研究表明,城市、工业污水处理厂氯化/臭氧消毒过程中,会产生高浓度的 NDMA^[32],虽然污水经二次处理,其中的 NDMA 浓度有所降低,但最终排放的二次废水中仍存在一定量的 NDMA 或其前体物,对水源水质造成一定影响^[33]。本研究中,华东城市原水 NDMA 浓度最高,可能与其水源位于长江下游,易受上游工业污水的污染有关。本研究发现作为饮用水源地的江河湖塘溪 NDMA 浓度大于水库水。相比于河道分散取水,水库供水更少受到突发性水污染事件的影响,还可以沉淀杂质,降解对 NDMA 的形成贡献较大氨氮和二甲胺和三甲胺等有机物^[17],因此需加强对江河湖泊类水源地的污染控制和风险管理。

不同水处理工艺对 NDMA 浓度的影响一直备受关注。本研究结果显示采用预氯化的出厂水 NDMA 浓度高于非预氯化,其可能的原因是预氯化更易生成 NDMA,而后续的水处理工艺对 NDMA 去除有限^[25]。除西北地区外,各地区城市出厂水中 NDMA 平均浓度均低于原水,这与 Qiu 等^[20] 研究结果相符,即原水中的 NDMA 在水厂处理过程中,可通过光解、挥发和生物降解作用被部分去除。

本研究中,华东和华南近年来城市原水和出厂水中 NDMA 浓度降低,可能与 2015 年起我国出台并实

施《水污染防治行动计划》和当地水厂积极推广深度处理技术有关。一项基于 2012—2017 年中国 269 个城市数据的研究发现,该政策的实施显著降低了我国中西部地区工业水污染强度^[34],进而减轻对下游华东和华南地区饮用水源地的污染。截至 2019 年,华东和华南地区有 136 座水厂实现深度处理^[35],日处理规模达 2930 万 m^3 ,而臭氧-生物活性炭和紫外线等深度处理工艺可以有效去除水源水中 NAmS 前体和控制 NAmS 类消毒副产物的生成^[16]。

本研究结果显示,相同暴露条件下,1~3 岁幼儿经饮水暴露于 NDMA 的终生致癌风险高于成人,这与其单位体重饮水量大于成人以及生命早期对有害物质更敏感有关^[11],因此,加强未成年人暴露于水中污染物的健康风险管理至关重要^[27]。其中,华东和华南地区出厂水中 NDMA 质量浓度较高($\text{ND}\sim 67.1 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$),当地人群经饮水暴露于 NDMA 的致癌风险也较高。鉴于此,上海和深圳于 2018 年和 2020 年相继出台地方生活饮用水标准,即 DB31/T 1091—2018《生活饮用水水质标准》和 DB4403/T 60—2020《生活饮用水水质标准》,新增 NDMA 指标,限值参考 WHO《饮用水水质准则》,暂定为 $100 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

WHO 推荐的 NDMA 饮用水安全值为 $100 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,是使用 5% 癌变率的动物实验推导出的致癌斜率因子 ($2.77 \text{ kg}\cdot\text{d}\cdot\text{mg}^{-1}$) 在致癌风险为 10^{-5} 水平下计算得到的^[1],较 US EPA 标准宽松 (10^{-5} 致癌风险对应 $7 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$)^[4],也高于我国饮用水中 NDMA 的实际浓度。因此张秋秋等^[7] 基于 2009—2012 年全国大规模水质调查和 Bei 等^[2] 2012—2014 年的普查结果,建议把 $40 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 作为我国 NDMA 水质安全标准的限值。本研究根据 2010—2020 年间 276 个出厂水的 NDMA 浓度数据,发现近年来我国原水水质不断提高,饮用水制水工艺进一步改善,使得 95% 以上出厂水 NDMA 质量浓度小于 $35 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。因此,本研究建议把 $35 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 作为我国 NDMA 水质安全标准的限值,进一步降低经饮水暴露 NDMA 的健康风险。

本研究存在一定的局限性:首先,纳入文献的 NDMA 检测方法灵敏度不同,对生活饮用水中 ng 级别的 NDMA 浓度监测可能存在偏倚;其次,在 NDMA 未检出时,用 1/2 方法检出限计算暴露水平和癌症风险,可能导致结果存在一定偏差;再次,不同人群饮水习惯差异大,如成人可能饮用茶水,婴儿或以乳制品为主,增加致癌风险测算的不确定性;最后,未考虑通过呼吸、皮肤或食物等其他途径摄入 NDMA 及其他

NAMs 类物质导致的健康风险。因此, NDMA 及其他 NAMs 类物质混合多途径长期暴露的综合风险仍需要进一步研究。

综上, 本次研究表明: 我国城市饮用水中 NDMA 主要来自原水污染, 现有的水厂处理工艺对 NDMA 有一定去除能力; 华东和华南近年来城市原水和出厂水中 NDMA 浓度呈下降趋势; 儿童经饮水暴露于 NDMA 的致癌风险高于成人, 亟需加强健康风险管理; 建议把 $35 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 作为我国 NDMA 水质安全标准的限值。

参考文献

- [1] World Health Organization. *N*-nitrosodimethylamine in drinking-water: background document for development of WHO *Guidelines for Drinking-water Quality*[R]. Geneva: WHO, 2008.
- [2] BEI E, SHU Y, LI S, et al. Occurrence of nitrosamines and their precursors in drinking water systems around mainland China[J]. *Water Res*, 2016, 98: 168-175.
- [3] International Agency for Research on Cancer (IARC). Agents classified by the *IARC Monographs*, volumes 1-123[EB/OL]. [2021-07-07]. <http://monographs.iarc.fr/ENG/Classification/ClassificationsAlphaOrder.pdf>.
- [4] USEPA. Integrated risk information system. *N*-Nitrosodimethylamine; CASRN 62-75-9[EB/OL]. [2021-07-07]. https://iris.epa.gov/static/pdfs/0045_summary.pdf.
- [5] ZHAO C, LU Q, GU Y, et al. Distribution of *N*-nitrosamines in drinking water and human urinary excretions in high incidence area of esophageal cancer in Huai'an, China[J]. *Chemosphere*, 2019, 235: 288-296.
- [6] 罗曼, 李凌, 张付刚, 等. 2019年长江江苏段饮用水中二甲基亚硝胺的现状调查[J]. *环境与健康杂志*, 2019, 36(11): 1025-1028.
LUO M, LI L, ZHANG FG, et al. Dimethylnitrosamine contamination in drinking water in Jiangsu reach of Yangtze River[J]. *J Environ Health*, 2019, 36(11): 1025-1028.
- [7] 张秋秋, 潘申岭, 张昱, 等. 我国城市饮用水中 N -亚硝基二甲胺的健康风险评估及水质标准制定[J]. *环境科学*, 2017, 38(7): 2747-2753.
ZHANG QQ, PAN SL, ZHANG Y, et al. Estimation of health risk and enaction of safety standards of *N*-nitrosodimethylamine (NDMA) in drinking waters in China[J]. *Environ Sci*, 2017, 38(7): 2747-2753.
- [8] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(成人卷)[M]. 北京: 中国环境出版社, 2013.
Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population (adults)[M]. Beijing: China Environmental Publishing House, 2013.
- [9] SHARMA BM, SÁÑKA O, KALINA J, et al. An overview of worldwide and regional time trends in total mercury levels in human blood and breast milk from 1966 to 2015 and their associations with health effects[J]. *Environ Int*, 2019, 125: 300-319.
- [10] US EPA. Risk assessment guidance for superfund: vol. I human health evaluation manual (part A)[R]. Washington, DC: Office of Emergency and Remedial Response, 1989.
- [11] US EPA. Supplemental guidance for assessing susceptibility from early-life exposure to carcinogens[R]. Washington, DC: Risk Assessment Forum, 2005.
- [12] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(儿童卷: 0~5岁)[M]. 北京: 中国环境出版社, 2016.
Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population (0-5 years children)[M]. Beijing: China Environmental Publishing House, 2016.
- [13] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(儿童卷: 6~17岁)[M]. 北京: 中国环境出版社, 2016.
Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population (6-17 years children)[M]. Beijing: China Environmental Publishing House, 2016.
- [14] LUO Q, WANG D, WANG Z. Occurrences of nitrosamines in chlorinated and chloraminated drinking water in three representative cities, China[J]. *Sci Total Environ*, 2012, 437: 219-225.
- [15] MA F, WAN Y, YUAN G, et al. Occurrence and source of nitrosamines and secondary amines in groundwater and its adjacent Jialu River basin, China[J]. *Environ Sci Technol*, 2012, 46(6): 3236-3243.
- [16] WANG W, YU J, AN W, et al. Occurrence and profiling of multiple nitrosamines in source water and drinking water of China[J]. *Sci Total Environ*, 2016, 551-552: 489-495.
- [17] CHEN Z, YANG L, HUANG Y, et al. Carcinogenic risk of *N*-nitrosamines in Shanghai drinking water: indications for the use of ozone pretreatment[J]. *Environ Sci Technol*, 2019, 53(12): 7007-7018.
- [18] LI T, YU D, XIAN Q, et al. Variation of levels and distribution of *N*-nitrosamines in different seasons in drinking waters of East China[J]. *Environ Sci Pollut Res Int*, 2015, 22(15): 11792-11800.
- [19] LI Z, SONG G, BI Y, et al. Occurrence and distribution of disinfection byproducts in domestic wastewater effluent, tap water, and surface water during the SARS-CoV-2 pandemic in China[J]. *Environ Sci Technol*, 2021, 55(7): 4103-4114.
- [20] QIU Y, BEI E, XIE S, et al. Contributions of volatilization, photolysis, and biodegradation to *N*-nitrosodimethylamine removal in conventional drinking water treatment plants[J]. *Sci Total Environ*, 2019, 697: 133993.
- [21] SUN S, JIANG T, LIN Y, et al. Characteristics of organic pollutants in source water and purification evaluations in drinking water treatment plants[J]. *Sci Total Environ*, 2020, 733: 139277.
- [22] YIN Y, LI T, KUANG D, et al. Probabilistic health risk assessment of nitrosamines in drinking water of Shaoxing, Zhejiang, China[J]. *Environ Sci Pollut Res Int*, 2019, 26(6): 5485-5499.
- [23] ZHANG A, LI Y, CHEN L. Distribution and seasonal variation of estrogenic endocrine disrupting compounds, *N*-nitrosodimethylamine, and *N*-nitrosodimethylamine formation potential in the Huangpu River, China[J]. *J Environ Sci (China)*, 2014, 26(5): 1023-1033.

(下转第 1243 页)