

新疆和田地区地下水“三氮”污染特征及健康风险评估

葛婷婷^{1,2,3}, 周金龙^{1,2,3}, 曾妍妍^{1,2,3}

(1. 新疆农业大学 水利与土木工程学院, 新疆 乌鲁木齐 830052; 2. 新疆水文水资源工程技术研究中心, 新疆 乌鲁木齐 830052; 3. 新疆水利工程安全与水灾害防治重点实验室, 新疆 乌鲁木齐 830052)

摘要: 为探明新疆和田地区地下水“三氮”污染的现状及其对当地居民健康的影响,对采集的76组地下水水样中的 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的浓度进行检测,通过统计分析地下水“三氮”的污染特征,采用健康风险评估模型在饮水暴露途径下,进行地下水“三氮”对不同人群的非致癌风险评估。研究表明:和田地区地下水中 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的污染程度最大,超标率为2.63%,对不同人群人体产生的非致癌风险指数范围为 $0 \sim 8.438 \times 10^{-1}$ (成人)和 $0 \sim 2.360$ (儿童);其次为 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$,超标率为1.32%,对人体产生的非致癌风险指数范围为 $0 \sim 3.689 \times 10^{-2}$ (成人)和 $0 \sim 1.032 \times 10^{-1}$ (儿童); $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 无超标点,非致癌风险指数范围为 $0 \sim 8.573 \times 10^{-3}$ (成人)和 $0 \sim 2.398 \times 10^{-2}$ (儿童)。研究区地下水中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 对人体产生的非致癌风险均在可接受范围内, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 对人体产生的非致癌风险应引起重视,且对儿童的影响大于成人。本次研究可为当地地下水污染风险防控提供理论依据。

关键词: 地下水;“三氮”污染;健康风险;和田地区

中图分类号:TV211.1⁺2; X523

文献标识码:A

文章编号:1672-643X(2021)05-0126-09

Characteristics and health risk assessment of “three nitrogen” pollution of groundwater in Hotan Prefecture, Xinjiang

GE Tingting^{1,2,3}, ZHOU Jinlong^{1,2,3}, ZENG Yanyan^{1,2,3}

(1. College of Hydraulic and Civil Engineering, Xinjiang Agricultural University, Urumqi 830052, China; 2. Xinjiang Hydrology and Water Resources Engineering Research Center, Urumqi 830052, China; 3. Xinjiang Key Laboratory of Hydraulic Engineering Security and Water Disaster Prevention, Urumqi 830052, China)

Abstract: In order to clarify the current status of groundwater “three nitrogen” pollution in Hotan Prefecture, Xinjiang and its impact on the health of local residents, 76 sets of groundwater samples were collected to test the contents of “three nitrogen”, namely $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, $\text{NO}_2^- - \text{N}$, and $\text{NO}_3^- - \text{N}$, and their respective pollution characteristics were analyzed. Then the health risk assessment model was used to assess the non-carcinogenic risk of different groups of people under the exposure route of drinking water. The results show that the $\text{NO}_3^- - \text{N}$ pollution of groundwater in Hotan was the most severe, with an over-standard rate of 2.63%, its ranges of non-carcinogenic risk index for humans were $0 \sim 8.438 \times 10^{-1}$ (adults) and $0 \sim 2.360$ (children). Followed by $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, its over-standard rate was 1.32%, and the ranges of non-carcinogenic risk index for humans were $0 \sim 3.689 \times 10^{-2}$ (adults) and $0 \sim 1.032 \times 10^{-1}$ (children); whereas $\text{NO}_2^- - \text{N}$ did not have any point exceeding the standard, its ranges of non-carcinogenic risk index were $0 \sim 8.573 \times 10^{-3}$ (adults) and $0 \sim 2.398 \times 10^{-2}$ (children). The non-carcinogenic risks of $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ and $\text{NO}_2^- - \text{N}$ in the groundwater in the study area were within acceptable limits. The non-carcinogenic risks of $\text{NO}_3^- - \text{N}$ for humans should be addressed immediately, and it has greater impact on children than on adults. This research can provide a theoretical support for the risk prevention

收稿日期:2021-01-20; 修回日期:2021-06-26

基金项目:国家自然科学基金项目(42067035)

作者简介:葛婷婷(1994-),女,重庆丰都人,硕士研究生,主要从事水资源与环境方面的研究。

通讯作者:周金龙(1964-),男,浙江龙游人,博士,教授,博士生导师,主要从事干旱区地下水资源与水土环境、地球化学等研究工作。

and control of local groundwater pollution.

Key words: groundwater; “three nitrogen” pollution; health risk; Hotan Prefecture

1 研究背景

随着社会经济不断发展,地下水“三氮”问题日益突出,长期饮用“三氮”浓度超标的地下水会引发一系列病变^[1]。如人体摄入过量的硝酸盐氮会引发高铁蛋白症,破坏血红蛋白的输氧功能^[2],还会影响人体对维生素 A 的吸收^[3],且与仲胺作用下会生成致癌因子^[4]。越来越多的专家学者专注于将水环境污染和人体健康相结合进行综合评价。

1980 年以来,健康风险评价模型在饮用水源地的各项化学指标评价^[5-7]、土壤中重金属污染评价等方面得以广泛应用^[8]。部分研究直接利用健康风险评价模型熵值法进行定量评价^[9-12],另有研究将水质评价与健康风险评价相结合^[13-14]。这些研究均从确定性角度进行评价,对于模型中的不确定性考虑较少。目前,主要的不确定性分析法包括随机模拟法^[15]、模糊数学法^[16-17]、神经网络^[18]等。随机模拟又称为 Monte Carlo 模拟,该模拟将不确定性转化为概率,更为准确地提供问题的解^[19]。模糊数学法用算术平均值、置信水平等量化不确定性,主要方法有三角模糊法、梯形模糊法等^[20]。

目前,对于新疆维吾尔自治区(以下简称“新疆”)地下水中“三氮”的研究主要集中在水化学特征、影响因素和来源等方面^[21-24],对于地下水污染与人体健康相结合的评价研究相对较少。因此,本文运用健康风险评价模型对研究区进行健康风险评估,采用 Monte Carlo 模拟对模型中的不确定性进行分析,为研究区内的健康风险防控提供更科学的理论依据。

2 材料与研究方法

2.1 研究区概况

和田地区位于新疆塔里木盆地南缘,总面积为 248 100 km²,包括和田市、和田县、墨玉县、皮山县、洛浦县、策勒县、于田县和民丰县^[25]。该地区北部与塔克拉玛干沙漠相连,南部为高山区,中部为平原区。研究区属于温带大陆性荒漠气候,全年降水稀少,风沙活动频繁。区域内的河流大部分为内流河,主要的河流包括和田河、克里雅河和尼雅河等,河流的径流量年内分配极不均匀,夏季径流约占年内径流量的 80%。

和田地区地下水的赋存和水化学特征存在明显的分带性,南部高山区主要是基岩裂隙水,低山丘陵

区地下水分布在灰岩裂隙、砂岩裂隙和新近系砾岩孔隙中,山前平原是孔隙水的主要存储场所^[26]。该研究区地下水的主要补给来源为河流、渠系水和田间灌溉水的入渗,排泄方式为人工开采、侧向径流、潜水蒸发^[27]。

2.2 样品采集与分析

2.2.1 样品采集 以新疆和田地区为研究区,考虑研究区的地下水水质情况、水系特点等因素,于 2014 年 7 月和 2017 年 10 月分别采集了 63 组和 13 组地下水水样,采样点为当地居民饮用井和灌溉井,其分布见图 1。水样采集过程严格执行《水质样品的保存和管理技术规定》(HJ 493—2009),水样检测由中国地质科学院水文地质环境地质研究所矿泉水检测中心完成,检测指标包括 pH、常量离子、NH₄⁺、NO₂⁻、NO₃⁻。采用分光光度法测定地下水水样中 NH₄⁺、NO₂⁻、NO₃⁻ 的含量,其中 NH₄⁺ 的检测下限为 0.02 mg/L,NO₂⁻ 的检测下限为 0.004 mg/L,NO₃⁻ 的检测下限为 0.2 mg/L。

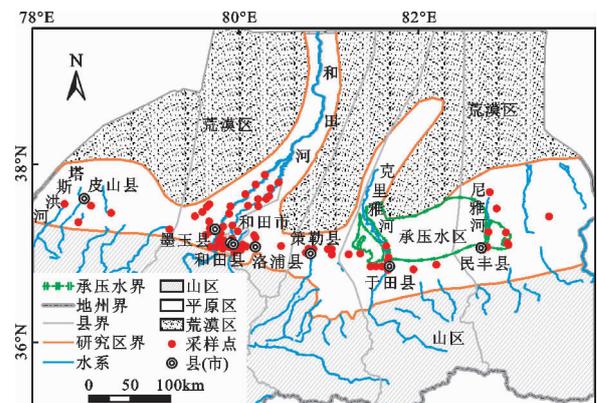


图 1 研究区水系及地下水采样点分布

2.2.2 健康风险评价 美国环境保护署(United States Environmental Protection Agency, USEPA)推荐的健康风险评价模型,是目前应用最为广泛的健康风险评价模型,模型分为致癌风险模型和非致癌风险模型,由于氮污染物产生致癌风险的依据不足,所以采用非致癌风险模型进行评价分析。地下水中的污染物进入人体的主要途径包括饮水摄入、皮肤渗入、呼吸吸入等^[28],氮污染物没有挥发性,通过皮肤渗入和呼吸吸入途径进入人体的量非常少,主要是通过饮水摄入途径进入到人体。所以本文仅考虑饮水摄入的暴露途径,对研究区不同人群(成人、儿童)进行健康风险评价。其模型的计算公式^[29-30]

为:

$$HQ = \frac{CDI}{RfD} \quad (1)$$

$$CDI = \frac{C \cdot IR \cdot EF \cdot ED}{BW \cdot AT} \quad (2)$$

式中: HQ 为非致癌风险指数; CDI 为日平均暴露剂量, $\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$; RfD 为污染物在某暴露途径下的参考剂量, $\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$, NH_4^+ 、 NO_2^- 、 NO_3^- 的参考剂量^[31-32]分别为 0.97、0.10、1.60 $\text{mg}/(\text{kg} \cdot \text{d})$; C 为地下水污染物的实测浓度, mg/L ; IR 为饮水率, L/d ; EF 为暴露频率, d/a ; ED 为暴露持续时间, a ; BW 为人体体重, kg ; AT 为平均暴露时间, $AT = ED \times 365, \text{d}$ 。

其中成人和儿童的饮水率^[33]分别为 2.0 和 1.8 L/d , 暴露频率^[34]为 365 d/a , 成人和儿童的污染物暴露持续时间^[32]分别为 30 和 12 a , 成人和儿童的体重^[35-36]分别为 62.40 和 20.08 kg , 非致癌的平均暴露时间 $AT = ED \times 365 \text{ d}/\text{a}$ 。

2.2.3 Monte Carlo 模拟 Monte Carlo 模拟是一种统计试验法, 通过建立概率模型, 进行随机试验, 得到预测变量的近似解^[37]。本次采用 Crystal Ball 软件进行模拟分析, Crystal Ball 软件结合 Excel 对不确定性进行定量分析^[38]。整个模拟分析的过程包括确定最佳拟合分布、假设单元和预测单元的设置、

计算参数的设置、模拟次数的设置和模拟运算^[39]。Crystal Ball 软件拟合分布包括正态、三角、均匀、对数正态、Beta、学生 t 、指数等, 拟合优度检验方法有 Chi-squared 检验、Anderson-Darling 检验、Kolmogorov-Smirnov 检验。对于 Kolmogorov-Smirnov 检验, P 值 >0.5 表示拟合良好; 对于 Chi-squared 检验, 计算值 <0.03 表示拟合良好; 对于 Anderson-Darling 检验, 计算值 <1.5 表示拟合良好。

3 结果与分析

3.1 地下水“三氮”污染特征

3.1.1 地下水“三氮”浓度统计特征 和田地区地下水“三氮”浓度统计分析结果见表 1。由表 1 可看出, 和田地区地下水中“三氮”均有检出, 其中 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 检出率最高, 为 97.37%; 其次为 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, 检出率为 40.79%; $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 最低, 检出率为 30.26%。以《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017) 中 III 类水限值为标准进行超标分析, 研究区内地下水中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 存在超标点, 点位超标率分别为 1.32% 和 2.63%。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度最大值为 42.122 mg/L , 为标准值的 2.11 倍; $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度最大值为 1.116 mg/L , 为标准值的 2.23 倍; $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度未超标。

表 1 和田地区地下水“三氮”浓度统计分析结果

指标	标准值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	极小值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	极大值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	平均值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	标准差	点位检 出率/%	点位超 标率/%	变异 系数
$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	1.116	0.052	0.136	40.79	1.32	2.63
$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	ND	0.027	0.001	0.003	30.26	0.00	3.70
$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	ND	42.122	3.007	6.117	97.37	2.63	2.03

注: ND 表示未检出, 下同; 标准值为《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017) 中 III 类水限值。

3.1.2 地下水“三氮”浓度空间分布特征 从表 1 中变异系数可知, 研究区地下水“三氮”浓度在水平方向上存在极大的差异性, 其中 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 和 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的变异系数分别为 3.70 和 2.63, 其分散性和平面差异性极大, 属于极强变异; $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的变异系数为 2.03, 分散性和平面分布差异较大, 属于强变异。

和田地区地下水“三氮”浓度分布见图 2 和表 2。由图 2 和表 2 可知, 和田地区皮山县采样点 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的检出率为 0, 民丰县和于田县 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的检出率分别为 20.00% 和 33.33%, 两县绝大部分采样点 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度低于 0.02 mg/L , 达到了 I 类水标准; $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度低于 II 类水标准 (0.10

mg/L) 的区域主要分布在和田河流域下游、克里雅河流域中游及洛浦县西北地区; 低于 III 类水标准 (0.50 mg/L) 的区域主要分布在和田河流域沿岸, 其中洛浦县、墨玉县、和田县的采样点 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的检出率高于其他地区, 分别为 55.56%、53.85%、53.33%; 存在 1 个超过 III 类水标准的采样点, 位于和田市伊里其乡。总体来看, 和田地区地下水中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度相对较高的点主要分布在和田河流域及附近的城镇地区, 超标点很少, 污染并不严重。 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度有 23 个点检出, 其中有 22 个点检出达到 I 类水标准 (0.01 mg/L); 有 1 个检出点达到 II 类水标准 (0.10 mg/L), 位于和田市; 其余点均未

检出。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度低于 2.0 mg/L 的点主要分布在和田县北部地区、洛浦县及策勒县西部,达到 I 类水标准; $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度低于 II 类水标准 (5.0 mg/L) 的点主要分布于和田县南部地区、于田县及民丰县;低于 III 类水标准值 (20.0 mg/L) 的点分布于和田河流域上游、皮山县和墨玉县; $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度超过 20.0 mg/L 的点位于墨玉县西北地区及和田市伊里其乡,浓度分别为 42.122 和 25.147 mg/L 。综上所述,整个和田地区 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的浓度大部分达到了 III 类水标准,应预防该地区地下水 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的继续升高;该地区地下水中 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的浓度分布差异较大,浓度相对较高的点主要分布在和田市、墨玉县和和田县,且 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的检出率极高,各县市均达到了 90% 以上;地下水中 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度较低, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 存在浓度高值区,主要集中在和田市,该市是整个和田地区经济发展中心,受到人类活动的影响较大,这也是和田市地下水中氮浓度较高的主要原因。

垂直方向上,根据井深将研究区地下水分为浅层潜水(井深 $< 20 \text{ m}$)、中深层潜水(井深 $\geq 20 \text{ m}$) 和承压水。各含水层中“三氮”浓度统计表见表 3。由表 3 可知,在浅层潜水中,“三氮”浓度范围分别为 $\text{ND} \sim 0.202 \text{ mg/L}$ ($\text{NH}_4^+ - \text{N}$)、 $\text{ND} \sim 0.008 \text{ mg/L}$ ($\text{NO}_2^- - \text{N}$)、 $\text{ND} \sim 25.147 \text{ mg/L}$ ($\text{NO}_3^- - \text{N}$),平均值分别为 0.044 mg/L ($\text{NH}_4^+ - \text{N}$)、 0.0003 mg/L ($\text{NO}_2^- - \text{N}$) 和 2.983 mg/L ($\text{NO}_3^- - \text{N}$);在中深层潜水中,“三氮”浓度范围分别为 $\text{ND} \sim 1.116 \text{ mg/L}$ ($\text{NH}_4^+ - \text{N}$)、 $\text{ND} \sim 0.027 \text{ mg/L}$ ($\text{NO}_2^- - \text{N}$) 和 $\text{ND} \sim 42.122 \text{ mg/L}$ ($\text{NO}_3^- - \text{N}$);平均值分别为 0.057 mg/L ($\text{NH}_4^+ - \text{N}$)、 0.001 mg/L ($\text{NO}_2^- - \text{N}$) 和 3.109 mg/L ($\text{NO}_3^- - \text{N}$);在承压水中, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的浓度范围与平均值分别为 $\text{ND} \sim 0.047 \text{ mg/L}$ 和 0.023 mg/L , $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 均未检出, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的浓度范围与平均值分别为 $0.054 \sim 1.436 \text{ mg/L}$ 和 0.745 mg/L 。 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的超标点存在于中深层潜水中,超标率为 2.00%; $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 浓度无超标点; $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度的超标点主要分布于浅层潜水和中深层潜水中,其超标率分别为 4.17% 和 2.00%。

3.2 健康风险评价

3.2.1 饮水摄入的非致癌风险 依据健康风险模型中非致癌风险指数 (HQ) 的定义可知,当 $HQ > 1$ 时,污染物对人体健康产生的非致癌风险不可接受,和田地区地下水“三氮”的非致癌风险指数计算结

果见表 4。

由表 4 可见,成人通过饮水摄入途径导致的非致癌风险为 1.712×10^{-3} ($\text{NH}_4^+ - \text{N}$)、 2.827×10^{-4} ($\text{NO}_2^- - \text{N}$)、 6.024×10^{-2} ($\text{NO}_3^- - \text{N}$);儿童通过饮水摄入途径导致的非致癌风险为 4.788×10^{-3} ($\text{NH}_4^+ - \text{N}$)、 7.907×10^{-4} ($\text{NO}_2^- - \text{N}$)、 1.669×10^{-1} ($\text{NO}_3^- - \text{N}$)。其中,成人和儿童中非致癌风险指数由高到低的污染物分别为 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 、 $\text{NO}_2^- - \text{N}$;从地下水“三氮”的非致癌风险指数的平均值来看,污染物产生的非致癌风险均在可接受范围内。但是从 HQ 的范围可知, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 对成人产生的非致癌风险最大值为 8.438×10^{-1} ,接近非致癌风险的可接受范围,对儿童产生的非致癌风险最大值为 2.360,超过了非致癌风险的可接受范围; $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 对成人和儿童产生非致癌风险指数最大值分别为 3.689×10^{-2} (成人)、 1.032×10^{-1} (儿童) 和 8.573×10^{-3} (成人)、 2.398×10^{-2} (儿童),其值均在非致癌风险的可接受范围内。

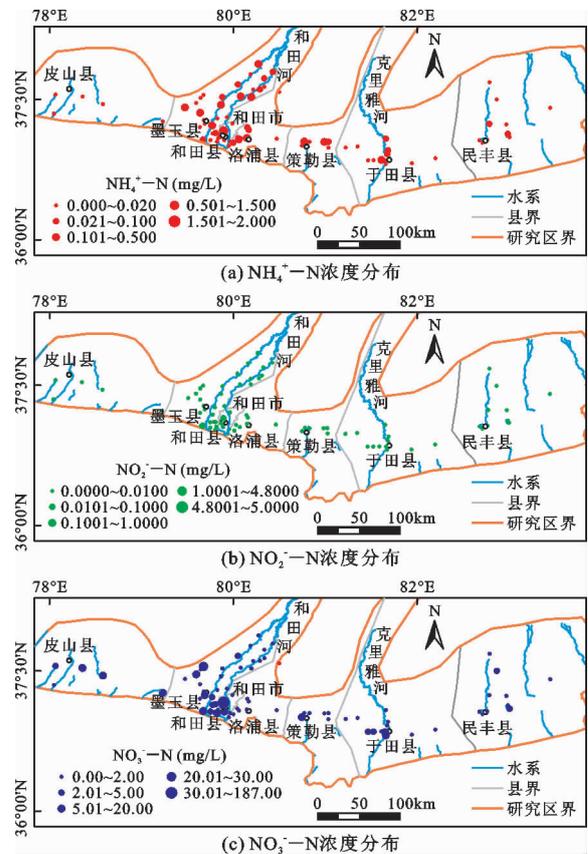


图2 和田地区地下水“三氮”浓度分布

和田地区地下水“三氮”非致癌风险空间分布见图 3。

表2 和田地区各县(市)地下水“三氮”浓度统计表

县(市)	指标	标准值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	极小值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	极大值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	平均值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	点位检 出率/%	点位超 标率/%	变异 系数
和田市	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	1.116	0.265	40.00	20.00	1.63
	$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	ND	0.027	0.006	40.00	0.00	1.92
	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	0.172	42.122	11.012	100.00	20.00	1.46
和田县	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	0.217	0.060	53.33	0.00	1.15
	$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	ND	0.001	0.000	20.00	0.00	2.02
	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	0.039	6.185	1.742	100.00	0.00	1.17
洛浦县	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	0.171	0.047	55.56	0.00	1.21
	$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	ND	0.002	0.001	66.67	0.00	0.97
	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	0.020	1.562	0.397	100.00	0.00	1.51
民丰县	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	0.047	0.009	20.00	0.00	2.00
	$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	ND	0.001	0.000	10.00	0.00	3.00
	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	ND	3.549	1.143	90.00	0.00	1.05
墨玉县	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	0.202	0.045	53.85	0.00	1.40
	$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	ND	0.001	0.000	15.38	0.00	2.35
	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	ND	25.147	4.796	92.31	7.69	1.53
于田县	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	0.109	0.019	33.33	0.00	1.66
	$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	ND	0.004	0.000	16.67	0.00	2.76
	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	0.144	10.135	2.357	100.00	0.00	1.29
策勒县	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	0.186	0.061	50.00	0.00	1.15
	$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	ND	0.004	0.001	33.33	0.00	1.97
	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	0.208	9.887	2.022	100.00	0.00	1.74
皮山县	$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	0.5	ND	ND		0.00	0.00	
	$\text{NO}_2^- - \text{N}$	1.0	0.001	0.008	0.004	100.00	0.00	0.75
	$\text{NO}_3^- - \text{N}$	20.0	1.788	11.061	5.916	100.00	0.00	0.51

表3 和田地区各含水层中“三氮”浓度统计表

指标	地下水类型	样本数	极大值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	极小值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	平均值/ ($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$)	超标 点数	超标率/ %
$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	浅层潜水	24	0.202	ND	0.044	0	0.00
	中深层潜水	50	1.116	ND	0.057	1	2.00
	承压水	2	0.047	ND	0.023	0	0.00
$\text{NO}_2^- - \text{N}$	浅层潜水	24	0.008	ND	0.0003	0	0.00
	中深层潜水	50	0.027	ND	0.001	0	0.00
	承压水	2	ND	ND		0	0.00
$\text{NO}_3^- - \text{N}$	浅层潜水	24	25.147	ND	2.983	1	4.17
	中深层潜水	50	42.122	ND	3.109	1	2.00
	承压水	2	1.436	0.054	0.745	0	0.00

由图3可看出, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 相对于其他地区,非致癌风险较高的地区位于和田河流域和墨玉县西部地区(图3(a)、3(b)),呈零星分布,其风险指数远小于1,不会对人体有危害。和田地区西部及和田

市中心的 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 产生的非致癌风险高于其他地区(图3(c)、3(d)),但是其非致癌风险水平在人体可接受范围内, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 对人体健康也不会造成威胁。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 对成人健康影响最大的区域位于和

田市(其 HQ 值大于 0.5),其次为皮山县、墨玉县的西北地区边缘及策勒县西南地区,该区域内非致癌风险指数在 0.1~0.5 之间(图 3(e))。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 对儿童产生的健康风险最高的地区为和田市中心与墨玉县西北地区(图 3(f)),这些区域的风险指数最大值达到了非致癌风险指数限值的 2 倍以上,其次为皮山县,其非致癌风险指数大于 0.5,虽然未超过 1,但仍然需要引起重视。

3.2.2 健康风险不确定性分析 由于 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 的非致癌风险指数在人体可接受范围内,所以仅对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 产生的健康风险进行不确定性分

析。利用 Crystal Ball 软件进行 Monte Carlo 模拟分析,首先对样本计算所得的非致癌风险指数进行分布拟合,再通过拟合优度检验来确定最佳拟合分布。本次选用了 Anderson - Darling 检验法对拟合优度进行检验,拟合结果 Anderson - Darling 检验的计算值为 0.435(小于 1.5),拟合结果为优良,非致癌风险指数的最佳概率拟合分布类型为对数正态分布。其次,设置假设单元和预测单元。将地下水污染物的实测浓度(C)、饮水率(IR)、人体体重(BW) 设为假设单元,将非致癌风险指数(HQ) 设为预测单元,进行 10 000 次模拟抽样,参数的设置见表 5。

表 4 和田地区地下水“三氮”在饮水摄入途径的非致癌风险指数 HQ

污染物	成人		儿童	
	范围	平均值	范围	平均值
$\text{NH}_4^+ - \text{N}$	$0 \sim 3.689 \times 10^{-2}$	1.712×10^{-3}	$0 \sim 1.032 \times 10^{-1}$	4.788×10^{-3}
$\text{NO}_2^- - \text{N}$	$0 \sim 8.573 \times 10^{-3}$	2.827×10^{-4}	$0 \sim 2.398 \times 10^{-2}$	7.907×10^{-4}
$\text{NO}_3^- - \text{N}$	$0 \sim 8.438 \times 10^{-1}$	6.024×10^{-2}	$0 \sim 2.360$	1.669×10^{-1}

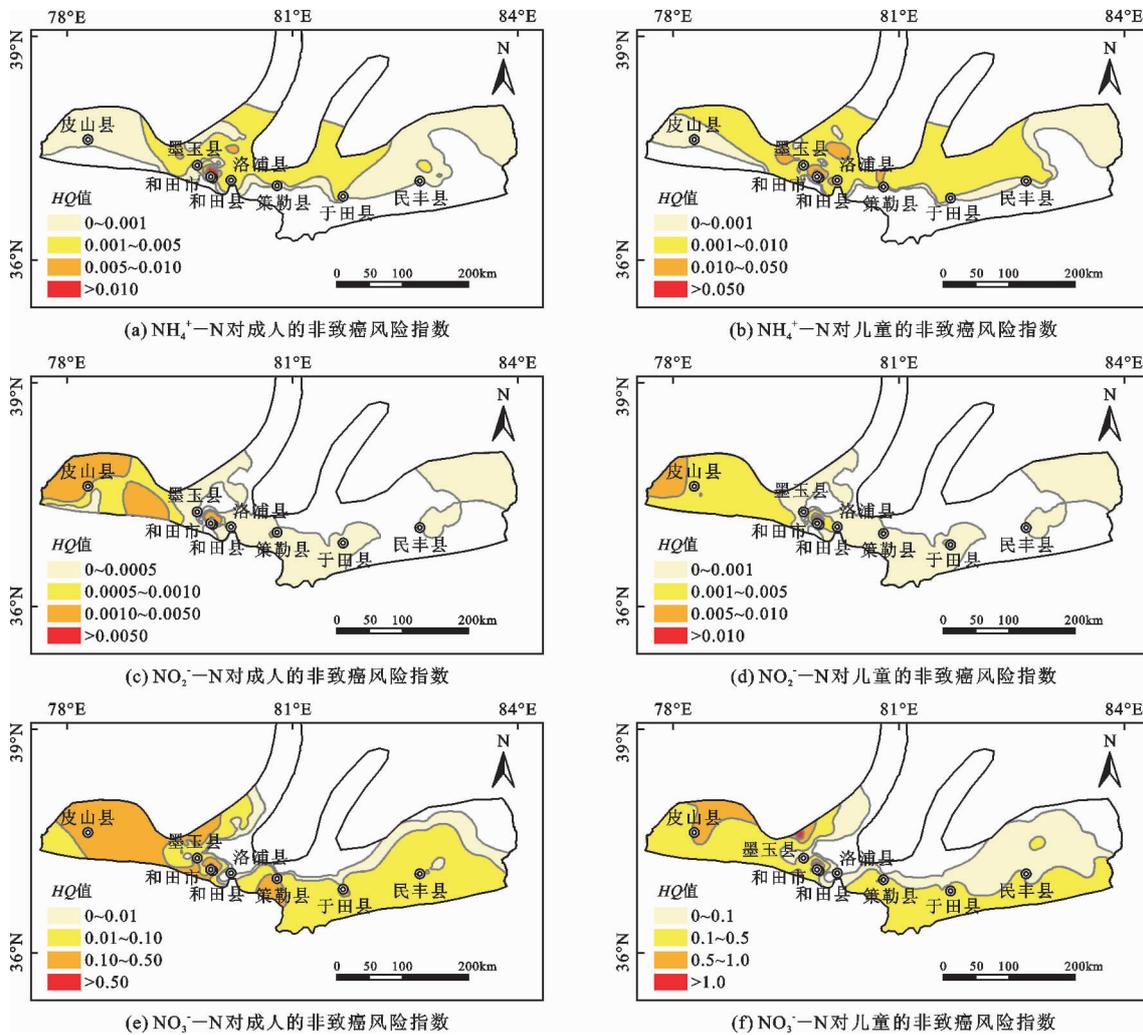


图 3 和田地区地下水“三氮”非致癌风险空间分布

表5 Crystal Ball 风险评估软件中参数设置

计算参数	数值	来源
地下水污染物的实测浓度 $C / (\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$	3.007	检测分析数据
饮水率 $IR / (\text{L} \cdot \text{d}^{-1})$	2.0(成人), 1.8(儿童)	参考文献[33]数据
人体体重 BW / kg	62.40(成人), 20.08(儿童)	参考文献[35]、[36]数据
非致癌风险指数	$HQ = (C \cdot IR) / BW / 1.6$	参考文献[29]、[30]数据

模拟结果表明,成人和儿童的非致癌风险指数的均值分别为0.06和0.16,最大值分别为0.72和1.21。模拟结果与之前计算结果基本一致, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 对研究区内儿童的非致癌风险指数超过了人体可接受范围。通过对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度、体重、饮水率进行敏感性分析可得,成人与儿童在饮水摄入途径下, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度对健康风险方差的贡献率最大,分别为0.97和0.99。体重对方差的贡献率为负相关,饮水率对方差的贡献率最小,为0.006(成人)和0.005(儿童)。

4 讨论

通过分析和田地区地下水“三氮”污染现状,可知研究区部分地区地下水中 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 与 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 存在超标现象,其中污染最为严重的地区主要分布在和田市市中心及和田河流域。和田河流域为新疆的古老绿洲之一,分布着墨玉县、和田市、和田县等县(市),是人口相对密集区,人类日常生活中产生的废物废水对于地下水中 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度有着重要的影响^[40]。和田河流域也是农业生产活动频繁地区,大量的氮肥使用,使氮素以 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 的形式进入土壤,通过硝化作用以 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的形式进入地下水中^[41]。近些年来,和田河流域的耕地面积不断扩大,氮肥的使用量也越来越多,这也是地下水氮污染越来越严重的原因。人类活动是造成地下水“三氮”污染的主要因素,但自然因素也不能忽略,自然因素主要包括包气带岩性结构特征、氧化还原条件等因素^[42]。

健康风险评价结果表明,研究区内地下水“三氮”对人体产生的非致癌风险大小排序为 $\text{NO}_3^- - \text{N} > \text{NH}_4^+ - \text{N} > \text{NO}_2^- - \text{N}$,其中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 非致癌风险均在人体可接受范围内; $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 对成人产生的非致癌风险在可接受范围内,对儿童产生的非致癌风险存在超出可接受范围的采样点,对当地儿童的健康造成一定的威胁,需要引起重视。儿童的非致癌风险水平高于成人,说明儿童更容易受到污染物的伤害。其主要原因是儿童

的日平均暴露剂量高于成人,日平均暴露剂量与人体体重、饮水率等因素相关。从空间上看, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 对儿童产生危害的地区主要集中在和田市和墨玉县西北地区,该地区的儿童面临着很高的非致癌风险,非致癌风险指数 HQ 最大值到达2.360,主要原因是该地区受人类活动的影响更大,地下水中 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度存在超标点。其次为皮山县,非致癌风险指数 HQ 在0.5~1.0之间,若继续进行不合理的农业生产活动或地下水开采都可能会导致其风险指标超过限值。

本次采用的健康风险评价只考虑了一种暴露途径(饮水摄入),还有其他多种暴露途径及地下水中其他离子的致癌风险,实际的风险指数应该大于本文的计算结果,风险评价模型中的参数也由于地域、生活习惯、人体体质等差异而存在不确定性。利用Monte Carlo模拟分析能够减少健康风险评价模型熵值法存在的不确定性,且模拟结果与实际采样分析结果基本一致。Monte Carlo模拟过程中概率分布模型的选择、参数的设置等都很重要^[43],但是也存在模拟结果的不确定性,主要为前期野外采样及送检过程中的误差所致。目前,关于减少模拟结果不确定性的研究较少,应是今后需要深入研究与解决的问题。

5 结论

(1)研究区内地下水中 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的超标率为1.32%, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度的超标率为2.63%, $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 未检出超标点, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 与 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度超标点均位于和田市。垂直分布上, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 浓度的超标点存在于中深层潜水, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 主要分布于浅层潜水和中深层潜水。和田市潜水区 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 的超标问题应引起当地相关部门的关注和重视。

(2) $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ 和 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 对研究区内人群产生的非致癌风险指数较低,在人体可接受范围内,不会对人体造成危害; $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 对研究区内儿童的健康造成了威胁,儿童比成人更容易受到污染物的伤

害。建议相关部门在当地地下水污染防治工作中,优先对 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 进行控制,其次为 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$,且需要加强对儿童饮水安全的管理与监督。

(3)本次健康风险评价只考虑了饮水摄入的暴露途径,该途径是指直接将地下水作为饮用水源,未经过水处理工艺。建议当地对于直接饮用的地下水,在饮用前采取相应的净化措施,以减轻对人体的危害。

(4)Monte Carlo 模拟虽然能够减少健康风险评价模型中存在的 uncertainty,但模拟结果仍存在一定的 uncertainty,因而在野外采样、样品的保存与运送、样品的测试等过程中需要严格执行相关规范标准,以减少误差。

(5)本文对和田地区地下水“三氮”的污染现状及健康风险评价的研究只是初步工作,今后还需要进一步对该地区地下水中“三氮”及其他水质指标进行深入研究。

参考文献:

- [1] 江南,周明华,李红,等.长江上游典型山地农业小流域浅层地下水硝态氮时空变异特征及影响因素[J].环境科学,2020,41(10):4539-4546.
- [2] 刘朝明.地下水水源地硝酸盐污染的原位修复试验研究[D].合肥:合肥工业大学,2019.
- [3] 张庆乐,王浩,张丽青,等.饮水中硝态氮污染对人体健康的影响[J].地下水,2008,30(1):57-59+64.
- [4] 赵仑山,岑况,刘秀丽,等.珠江三角洲含N-亚硝胺地下水与地区性癌症[J].地学前缘,2019,26(2):335-349.
- [5] 李军,赵一,邹胜章,等.会仙岩溶湿地丰平枯时期地下水金属元素污染与健康风险[J].环境科学,2021,42(1):184-194.
- [6] 张清华,韦永著,曹建华,等.柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价[J].环境科学,2018,39(4):1598-1607.
- [7] 林丽,范薇,周金龙,等.喀什地区浅层地下水重金属污染健康风险评价[J].节水灌溉,2020,(5):93-98.
- [8] 韩琳,徐夕博.基于PMF模型及地统计的土壤重金属健康风险定量评价[J].环境科学,2020,41(11):5114-5124.
- [9] 陈云增,李天奇,马建华,等.沙颍河流域典型癌病高发区水体硝态氮污染及健康风险[J].环境科学学报,2019,39(5):1698-1707.
- [10] 徐斌,张艳.泾惠渠灌区浅层地下水硝酸盐污染特征及健康风险评价[J].干旱区资源与环境,2018,32(7):70-75.
- [11] EGBUERI J C. Heavy metals pollution source identification and probabilistic health risk assessment of shallow groundwater in Onitsha, Nigeria[J]. Analytical Letters, 2020, 53(10): 1620-1638.
- [12] 耿雅妮,杨宁宁,董洁,等.宝鸡市饮用水源地重金属健康风险评价[J].水资源与水工程学报,2019,30(3):73-84.
- [13] 段小龙,郝凯越,黄德才,等.林芝市饮用水水源地健康风险评价[J].水资源与水工程学报,2020,31(3):97-101.
- [14] 高文琪,丁文广,吴守霞,等.天水市2013-2017年饮用水源水质分析及健康风险评价[J].环境化学,2020,39(7):1821-1831.
- [15] 徐倩云,艾舜豪,高祥云,等.鄱阳湖流域水体和水产品中苯酚的暴露特征及人体健康风险评估[J].环境科学,2021,42(3):1354-1360.
- [16] YANG Shou, YANG Qingchun, MA Hongyun, et al. Health risk assessment of phreatic water based on triangular fuzzy theory in Yinchuan plain [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2018, 164: 732-738.
- [17] FAN Wen, ZHOU Jinlong, ZHOU Yinzhu, et al. Water quality and health risk assessment of shallow groundwater in the southern margin of the Tarim Basin in Xinjiang, P. R. China [J]. Human and Ecological Risk Assessment: An International Journal, 2021, 27(2): 483-503.
- [18] 邓玉,倪福全,李林桓,等.基于ANN-MC模型的农村饮用水源健康风险不确定性量化研究[J].华北水利水电大学学报(自然科学版),2017,38(4):25-32.
- [19] 周方明,王锋,谷明晗,等.基于蒙特卡罗法的缓变型防洪风险分析[J].水资源与水工程学报,2018,29(5):180-185.
- [20] 吴娟娟,卞建民,万罕立,等.松嫩平原地下水氮污染健康风险评估[J].中国环境科学,2019,39(8):3493-3500.
- [21] 侯珺,周金龙,曾妍妍,等.石河子地区地下水“三氮”空间分布特征及影响因素分析[J].水资源与水工程学报,2018,29(1):1-8.
- [22] 吕晓立,刘景涛,周冰,等.塔城盆地地下水“三氮”污染特征及成因[J].水文地质工程地质,2019,46(2):42-50.
- [23] 陈劲松,周金龙,魏兴,等.新疆喀什噶尔河流域平原区地下水“三氮”含量分布特征及影响因素分析[J].环境化学,2020,39(11):3246-3254.
- [24] 於嘉闻,周金龙,曾妍妍,等.新疆喀什地区东部地下水“三氮”空间分布特征及影响因素[J].环境化学,2016,35(11):2402-2410.
- [25] 吐尔逊·买买提明.和田地区水资源利用存在的主要问题及对策[J].水文,2015,35(3):92-95.
- [26] 曾妍妍,吴津蓉,周金龙,等.新疆和田地区地下水质量与污染现状评价[J].人民黄河,2015,37(7):79-81.
- [27] 马金珠.新疆和田地区地下水资源及其可持续开发利用[J].中国沙漠,2002,22(3):242-248.

- [28] 饶志, 储小东, 吴代赦, 等. 鄱阳湖平原地下水重金属含量特征与健康风险评估[J]. 水文地质工程地质, 2019, 46(5): 31-37.
- [29] YANG Mei, FEI Yuhong, JU Yiwen, et al. Health risk assessment of groundwater pollution—A case study of typical city in North China Plain[J]. Journal of Earth Science, 2012, 23(3): 335-348.
- [30] USEPA. Risk assessment guidance for superfund: Volume I—human health evaluation manual (Part A) [M]. U. S. Environmental Protection Agency, 1989.
- [31] USEPA. Integrated risk information system [M]. United States Environmental Protection Agency, 2012.
- [32] WU Jianghua, SUN Zhanchao. Evaluation of shallow groundwater contamination and associated human health risk in an alluvial plain impacted by agricultural and industrial activities, mid-west China [J]. Exposure and Health, 2016, 8(3): 311-329.
- [33] 盛丹睿, 温小虎, 冯起, 等. 张掖盆地地下水硝酸盐污染与人体健康风险评估[J]. 中国沙漠, 2019, 39(5): 37-44.
- [34] CHEN Jie, WU Hao, QIAN Hui, et al. Assessing nitrate and fluoride contaminants in drinking water and their health risk of rural residents living in a semiarid region of northwest China [J]. Exposure and Health, 2017, 9(3): 183-195.
- [35] 赵秀阁, 段小丽. 中国人群暴露参数手册(成人卷)概要 [M]. 北京: 中国环境出版社, 2014.
- [36] 段小丽. 中国人群暴露参数手册(儿童卷)概要 [M]. 北京: 中国环境出版社, 2016.
- [37] 耿梦梦, 徐明芳, 王阳, 等. 基于 Monte Carlo 模拟法对液态乳中黄曲霉毒素 M₁ 的风险评估 [J]. 食品科学, 2018, 39(5): 226-233.
- [38] 王丽, 黄德寅, 刘茂, 等. 蒙特卡洛模拟方法在苯致癌风险评价中的应用 [J]. 安全与环境学报, 2011, 11(5): 231-235.
- [39] 张德新, 马红梅, 何振宇. 基于 Monte Carlo 模拟法对大米途径摄入镉的风险评估 [J]. 环境卫生学杂志, 2013, 3(1): 40-44.
- [40] TANG Zixi, ZHANG Yongfu, ZENG Lifang, et al. Investigation and analysis of three nitrogen pollution in groundwater in Ledong, Hainan Province [J]. Agricultural Biotechnology, 2019, 8(3): 135-137.
- [41] 李玲, 周金龙, 齐万秋, 等. 和田河流域绿洲区地下水“三氮”污染状况及影响因素 [J]. 环境化学, 2019, 38(2): 395-403.
- [42] 吕晓立, 刘景涛, 朱亮, 等. 兰州市地下水中“三氮”污染特征及成因 [J]. 干旱区资源与环境, 2019, 33(1): 95-100.
- [43] 王阳, 徐明芳, 耿梦梦, 等. 基于 Monte Carlo 模拟法对水源水体中微囊藻毒素的健康风险评估 [J]. 环境科学, 2017, 38(5): 1842-1851.

(上接第 125 页)

- [13] LI Zhiwei, GAO Peng. Impact of natural gullies on groundwater hydrology in the Zoige peatland, China [J]. Journal of Hydrology: Regional Studies, 2019, 21: 25-39.
- [14] ZHANG Wenjiang, YI Yonghong, SONG Kechao, et al. Hydrological response of alpine wetlands to climate warming in the eastern Tibetan Plateau [J]. Remote Sensing, 2016, 8(4): 336. <https://doi.org/10.3390/rs8040336>
- [15] 李丽, 高俊琴, 雷光春, 等. 若尔盖不同地下水水位泥炭湿地土壤有机碳和全氮分布规律 [J]. 生态学杂志, 2011, 30(11): 2449-2455.
- [16] LI Binquan, YU Zhongbo, LIANG Zhongmin, et al. Effects of climate variations and human activities on runoff in the Zoige Alpine Wetland in the eastern edge of the Tibetan Plateau [J]. Journal of Hydrologic Engineering, 2014, 19(5): 1026-1035.
- [17] 游宇驰, 李志威, 黄草, 等. 1990-2016 年若尔盖高原荒漠化时空变化分析 [J]. 生态环境学报, 2017, 26(10): 1671-1680.
- [18] 柴岫, 朗惠卿, 金树仁, 等. 若尔盖高原的沼泽 [M]. 北京: 科学出版社, 1965.
- [19] MA Kun, LIU Junguo, BALKOVIC J, et al. Changes in soil organic carbon stocks of wetlands on China's Zoige plateau from 1980 to 2010 [J]. Ecological Modelling, 2016, 327: 18-28.
- [20] 李丹. HOB0 水位计与传统方法在地下水位动态监测中的对比分析 [J]. 内蒙古气象, 2016(5): 39-41.
- [21] YANG Gang, CHEN Huai, WU Ning, et al. Effects of soil warming, rainfall reduction and water table level on CH₄ emissions from the Zoige peatland in China [J]. Soil Biology and Biochemistry, 2014, 78: 83-89.