

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2021121002

刘一民, 汪洋, 王济, 等. 山谷型填埋场地下水污染特征分析及健康风险评价[J]. 环境化学, 2022, 41(8): 2540-2550. LIU Yimin, WANG Yang, WANG Ji, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of groundwater in a valley type landfill[J]. Environmental Chemistry, 2022, 41 (8): 2540-2550.

山谷型填埋场地下水污染特征分析及健康风险评价*

刘一民^{1,3} 汪 洋^{2,3,4 **} 王 济^{1,3} 蔡雄飞^{1,3} 郑佳薇^{1,3}

(1.贵州师范大学地理与环境科学学院,贵阳,550025; 2.湖南城市学院市政与测绘工程学院,益阳,413000;
 3.贵州省喀斯特山地生态环境国家重点实验室培育基地,贵阳,550001; 4.中国科学院地球化学研究所环境地球国家重点实验室,贵阳,550081)

摘 要 山谷型填埋场是我国南方数量最多的填埋场类型,针对其周边地下水的污染特征分析、污染源 解析及健康风险评价具有重要意义.以长沙市某山谷型填埋场为例,从4个采样井收集雨季和非雨季时 期32份地下水样本,对BOD₅、COD_{Cr}、F⁻、NH₃-N、TN、Hg、Fe、Mn、Ni共9项指标进行分析测试. 运用F值综合水质评价法对水质进行评价并分析水污染特征,采用相关性分析和主成分分析法对污染源 进行源解析,最终利用USEPA健康风险模型评价不同途经的健康风险评价.研究结果表明,除F和 Hg外,其余水质指标评价等级均为极差,超标率:Fe=TN>COD_{Cr}=Ni>Mn>NH₃-N>BOD₅>F>Hg,变异 系数均处于高度变异水平;污染源解析方面,BOD₅和COD_{Cr}的主要来源为渗滤液,Hg、Fe、Mn、 Ni、F和TN的浓度受自然源和渗滤液共同作用,NH₃-N的主要来源是人为活动污染;研究区儿童和成 人的非致癌风险都在可接受范围内,雨季期的健康风险高于非雨季期,且儿童的健康风险高于成人,但 致癌物 Ni 在饮水途径下儿童和成人的致癌风险均高于最大可接受水平 1×10⁻⁴,饮水途径的风险高于皮 肤暴露途径,是引起人体健康风险的主要途径.

关键词 填埋场,地下水污染,污染特征,源解析,健康风险.

Pollution characteristics and health risk assessment of groundwater in a valley type landfill

LIU Yimin^{1,3} WANG Yang^{2,3,4} ** WANG Ji^{1,3} CAI Xiongfei^{1,3} ZHENG Jiawei^{1,3}
 (1. School of Geography and Environmental Science, Guizhou Normal University, Guiyang, 550025, China; 2. School of Municipal and Geomatics Engineering, Hunan City University, Yiyang, 413000, China; 3. State Key Laboratory Incubation Base for Karst Mountain Ecology Environment of Guizhou Provence, Guiyang, 550001, China; 4. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry Academy of Sciences, Guiyang, 550081, China)

Abstract Valley type landfill is the major landfill type in southern China. Hence, it is of great practical significance to analysis the characteristics and sources of the contaminants and assess the health risks of groundwater in the vicinity. A case study was carried out in one of the landfills in Changsha, 32 groundwater samples were collected from 4 sampling wells in both rainy and non-rainy

²⁰²¹ 年 12 月 10 目收稿(Received: December 10, 2021).

^{*} 贵州省教育厅青年人才成长项目 (KY[2017]125),湖南省自然科学基金省市联合项目 (2022JJ50274),湖南省自然科学基金 (2021JJ30078) 和 国家自然科学基金 (41807366) 资助.

Supported by Youth Talent Development Project of Guizhou Provincial Department of Education (KY [2017]125), Hunan Provincial Natural Science Foundation of China(2022JJ50274), Hunan Provincial Natural Science Foundation of China(2021JJ30078) and the National Natural Science Foundation of China (41807366).

^{**} 通信联系人 Corresponding author, Tel: 13808417274, E-mail: 15195806@qq.com

seasons, from which BOD₅, COD_{Cr}, F⁻, NH₃-N, TN, Hg, Fe, Mn, Ni were tested. F value comprehensive water quality evaluation method was used to evaluate water quality and analyze groundwater pollution characteristics, while correlation analysis and principal component analysis were used to identify the source apportionments. Last but not least, USEPA health risk assessment model was applied to evaluate the health risk of different exposure routes. The results indicate that, Except for F⁻ and Hg, the comprehensive water quality evaluation indexes are extremely unfavorable. The order of the exceedance rate was Fe=TN>COD_{Cr}=Ni>Mn>NH₃-N>BOD₅>F>Hg, and the coefficient of variation was at a high level. In terms of pollution source analysis, the major source of BOD₅ and COD_{Cr} is leachate. The concentrations of Hg, Fe, Mn, Ni, F⁻ and TN are affected by natural sources and leachate. The main source of NH₃-N is anthropogenic pollution. The non-carcinogenic risk of children and adults in the study area are within the acceptable range. The health risk in rainy season is higher compare to non-rainy season, and the health risk of children is higher than that of adults. However, the carcinogenic risk of Ni was higher than the maximum acceptable level (1×10⁻⁴), for both children and adults. The risk of drinking water is higher than that of skin exposure, which forms the main path to cause human health risk.

Keywords landfill, groundwater pollution, pollution characteristics, source analyze, health risk.

我国是人口和农业大国,在快速城市化和超大基数人口的背景下,生活垃圾成为亟待解决的问题, 填埋是处理生活垃圾的主要手段之一^[1].地下水是我国近十亿人口的饮用水资源^[2],生活垃圾填埋处理 产生的渗滤液下渗至地下含水层会造成地下水不同程度的污染,渗滤液中含有高浓度的有机物、无机 物和重金属等组分^[3],污染物经由不同的途径进入人体将导致一定的健康风险^[4-8].通过地下水健康风 险评价可以将污染物对人体的健康危害定量化,从而衡量危害程度^[9].目前国内使用最多的健康风险 评价模型是由美国环境保护署 (USEPA) 推出的模型^[1,10],但是由于生活饮食习惯、人种生理特征和地 域气候条件的差异,在实际的健康风险评价中部分参数因子需要根据实际情况做出修正^[1,7].

有研究表明在渗滤液、土壤、气候、岩性和水文地质特征等综合影响下,地下水污染物的浓度在 季风季节和寒冷季节前后常有明显变化^[11];李军等^[12]研究了会仙洞湿地丰、平、枯时期地下水重金属 污染及健康风险,探讨了不同时期地下水污染特征变化及人群健康风险表征;渗滤液下渗至地下含水 层是一个复杂多变的过程^[13],不同类型的填埋场下渗面也不尽相同.下渗面为花岗岩的填埋场,花岗岩 中含金属元素的矿石在降水淋溶作用下会溶解出金属元素进入地下水中,当地居民生产活动所产生的 污染物也会经不同途径进入地下水,造成地下水污染源的多样性和复杂性.为了能更好地了解地下水 污染源的复杂联系,主成分分析和相关性分析方法被广泛用于地下水污染源解析^[14-16];目前对填埋场 地下水污染的研究大多是单一途径下的健康风险评价及污染特征分析^[17-22],而对山谷型填埋场地下水 污染特征分析、来源解析及多途径的健康风险评价研究较少.山谷型填埋场是我国南方数量最多最典 型的填埋场类型,研究该类型填埋场的地下水污染对实际地下水污染防治有重要意义.

本研究以长沙市某山谷型填埋场为例,分别在雨季期和非雨季期采集地下水样,对其水质进行评价,运用多元数理统计方法分析雨季前后地下水污染特征,选用主成分和相关性分析方法解析污染来源,最终利用健康风险模型分别对儿童和成人进行饮水和皮肤暴露途径的健康风险评价.以期为区域地下水污染治理及人体健康安全保障提供决策依据和参考数据.

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 研究区概况

研究区为长沙市某一山谷型填埋场,地貌属于剥蚀丘山,呈东北-西南走向山谷地形,处于亚热带 季风湿润气候区,全年雨水充足,山谷地层厚度小、冲沟发育深,低洼地段有部分冲积层及残坡积层. 距填埋场 2 km 范围内分布有池塘和水坝,中间存在由东北延伸至西南向的分水岭. 区域内仅出露第四 系及燕山晚期花岗岩,所以地下水按含水层介质类型可分为松散沉积物孔隙水和基岩裂隙水,补给来 源主要为大气降水及地表水下渗补给. 第四系松散沉积物覆盖层为黄褐、黄白色含碎石的砂质土 (揭 露最厚为 9.6 m,图 1). 燕山晚期花岗岩主要为二云母二长花岗岩,揭露有强风化花岗岩层、中风化花 岗岩层、微风化花岗岩层的 3 个亚层 (揭露最薄为 4.5 m),花岗岩渗透系数在 6.129×10⁻⁴—1.517× 10⁻³ cm·s⁻¹范围内,属弱、中透水性地层. 各钻孔均贯穿第四系覆盖层和各花岗岩层,钻孔监测井最深 为 51.8 m. 地下水水位埋藏浅,一般在 3—9 m 之间,因地形陡、水力坡度大、岩石裂隙发育,故径流条 件好,地下水向谷底流动汇集迅速在断裂、节理发育地带,径流畅通,循环深度较大,裂隙水以潜流形 式沿节理裂隙排泄于下游残坡积层中.填埋场防渗措施未完善,有渗滤液下渗污染地下水的情况出现, 区域内育有两条隐伏破碎带,破碎带内岩石裂隙发育及风化程度高,岩层中发育有几组节理,破碎带沿 填埋区至黑坝水库呈自东北向西南走向,地下水流向与破碎带走向一致.



1.2 样品采集与分析

本研究分别于 2018 年 7 月、8 月和 12 月非雨季期及 2019 年 3 月、4 月、5 月和 6 月雨季期在 ZK1—ZK4采样井取样,每时期采集4组共计32个水样,于7月19日对当地的地下水背景值进行实 际测量,背景水样取自区内山谷南侧山体地表出露的花岗岩裂隙水,地势高,地下水水位高,因此无人 为扰动,与研究区属于同一水文地质单元且地下水类型相同.采样点遵循《地下水环境监测技术规范》 (HJ/T 164—2004)要求布设,采样井位于填埋场西南方,布设在填埋场至黑坝水库间的两条破碎带上, 每条破碎带上布设2个水井,其中 ZK3 和 ZK4 所在破碎带的水文地质剖面图如图1 所示,各钻孔距离 填埋场的直线距离分别是 ZK3(551 m)、ZK1(743 m)、ZK4(775 m) 和 ZK2(1312 m), 点位布设与地下水 流向一致.水样用 0.45 μm 的微孔过滤膜过滤后密封装于经去离子水洗净并用水样充分润洗的 500 mL 聚乙烯瓶中,在需要测试的重金属水样中加入硝酸酸化水样至 pH 值≤2,水样放置于 4 ℃ 避光冰箱保 存.以《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017)和《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002)中的III类水 标准作为水样指标选取依据^[23-24],选取浓度高于地下水Ⅲ类水标准的污染物 (BOD5、CODcr、TN、 NH₃-N、F⁻、Fe、Mn 和 Ni) 和 Hg 共计 9 项指标进行测试分析, 其中 Hg 因考虑到其自身具有的毒理性 质选取为水样指标.采用电感耦合等离子质谱仪 (ICP-MS) 测定 Hg、Fe、Mn、Ni的浓度, BOD5 和 COD_{Cr}分别用五日培养法和重铬酸钾法测定浓度, NH₃-N、F⁻和 TN 均根据《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017) 中提供的分光光度法测定浓度. 每组样品设置空白样, 相对标准偏差保证低于 5%, 测定 结果控制在质量标准要求范围内.

1.3 地下水水质综合评价

采用《地下水质量标准》(GB/T 14848—2017)中的F值综合水质评价方法对填埋场地下水进行地下水质量评价(表1),不同类别标准值相同时,从优不从劣^[23].计算公式如下:

$$F = \sqrt{\frac{\bar{F}^2 + F_{\max}^2}{2}} \tag{1}$$

式中, F表示综合评价分值; Fmax 表示单项组分评价分值的最大值; F表示各单项组分评分平均值.

耒1 抽下水质量等级

f	R	除す	区价	
<	VV	PM/ V	ועו	

Table 1 Groundwater quality grade										
级别Grade	优秀Excellent	良好Good	较好Medium	较差Poor	极差Fail					
F	F<0.80	0.80≤F<2.50	2.50 <i>≤F</i> <4.25	4.25≤F<7.20	F≥7.20					

1.4 健康风险评价模型

地下水中的污染物主要经由饮水和皮肤暴露的2种途径进入人体.健康风险可分为致癌风险和非 致癌风险, TN、NH3-N、F-、Hg、Fe和 Mn 为非致癌物质, 致癌物是 Ni, 受体人群分为儿童和成人. 因模 型是由国外引进,同我国居民在生活饮食习惯、人种身体条件和地域气候等方面存在差异,所以模型 中的部分参数需要结合我国居民的实际情况做出修正,确保结果的真实性[1-7].模型中相关参数详细 值、含义及来源见表2和表3.

	Table 2 Model parameter meaning and value source									
参数	含义	单位	儿童	成人	参考文献					
Parameter	Meaning	Unit	Children	Adult	References					
CW	污染物浓度	$mg \cdot L^{-1}$	S	S	S					
IR	每日平均摄入量	$L \cdot d^{-1}$	1.14	1.7	[15]					
EF	暴露频率	$\mathbf{d} \cdot \mathbf{a}^{-1}$	350	350	[25]					
ED	暴露持续时间	а	10	30	[2]					
BW	平均体重	kg	16	62.7	[7]					
ΔT	平均作用时间	d(非致癌)	3650	10950	[15]					
AI		d (致癌)	25550	25550	[15]					
SA	皮肤接触面积	cm ²	8000	18000	[12]					
ET	皮肤暴露时间	$\mathbf{h} \cdot \mathbf{d}^{-1}$	0.6333	0.4167	[10]					
CF	单位体积转换因子	L·cm ⁻³	0.001	0.001	[15]					

注: S代表为实测值. Note: S indicates the measured value.

表3 模型 SF、RfD 和 PC 计算数值

Table 3	Calculated values	of model SF,	RfD and PC
---------	-------------------	--------------	------------

迷别	参数 Parameter	SF/(mg·	$(kg \cdot d)^{-1}$)	RfD/(mg·	$RfD/(mg \cdot (kg \cdot d)^{-1})$			
Category		饮水途经 Route of drinking water	皮肤接触途经 Route of skin contact	饮水途经 Route of drinking water	皮肤接触途经 Route of skin contact	$PC/(cm \cdot h^{-1})$		
	F- —		_	0.06	0.013	0.001		
	NH ₃ -N	_	_	0.97	0.8	0.001		
北北古	TN	_	_	0.5 ²	1.0^{2}	0.001		
非蚁癌	Fe	_	_	0.3	0.045	0.0001		
	Mn	_	_	0.046	0.00184	0.0001		
	Hg	—	—	0.0003	0.0003	0.0018		
致癌	Ni	0.84	0.841	0.02	0.0054	0.0001		

注: ---表示无对应参考值; 1表示由饮水途径参数代替; 2表示由每日最大可摄入量代替.

Note: — indicates no corresponding reference value;1 is replaced by drinking water route parameter;2 represents the maximum daily intake.

暴露剂量,计算公式如下:

$$ADD_{i} = \frac{CW \times IR \times EF \times ED}{BW \times AT}$$
(2)

$$ADD_{d} = \frac{CW \times SA \times PC \times ET \times EF \times ED \times CF}{BW \times AT}$$
(3)

式中, ADD_i 表示饮水摄入途径日均暴露剂量, 单位 mg·(kg·d)⁻¹; ADD_d 表示皮肤摄入途经日均暴露剂量, 单位 mg·(kg·d)⁻¹, PC 表示皮肤渗透系数, 单位 cm·h⁻¹.

非致癌风险:

$$HQ = \frac{ADD}{RfD}$$
(4)

$$HI = HO_i + HQ_d$$
(5)

式中, HQ 为非致癌风险熵; HI 为人群在饮水和皮肤两种暴露途径下的非致癌总风险值; RfD 为各污染物的参考剂量, 单位 mg·(kg·d)⁻¹. 根据美国环境保护署 (USEPA) 推荐的非致癌风险值的等级划分, 当 HI<1 时, 人体的非致癌风险在可接受范围内; 当 HI>1 时, 说明非致癌物对人体有潜在的健康风险^[26].

致癌风险:

$$CR = ADD \times SF$$
 (6)

式中, CR 为终身致癌风险值; SF 为致癌斜率系数. 据 USEPA 的风险阈值分级, 致癌风险的最大可接受 阈值为 1×10⁻⁴, 当 CR 高于这一阈值时, 表明可能存在一定的致癌风险; 当 CR<1×10⁻⁶时, 则认为存在的 致癌风险极小或可忽略^[26].

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 地下水水质评价

填埋场雨季和非雨季时期地下水中各污染物的综合水质评价结果见表 4. 水质评价分值在 0<F< 9.25 范围内,两时期水质等级良好的仅有 Hg, F⁻的水质非雨季期 (4.25 较好) 比雨季期 (7.38 极差) 质量 好, Ni 在非雨季期的水质呈极差等级 (8.32). 除 F⁻、Hg 及 Ni 以外,其余污染物在雨季期和非雨季期水 质均呈极差等级,且综合污染程度为 TN>COD_{C7}>Fe>Mn>BOD₅>NH₃-N,其中以 Fe 在非雨季期的水质 污染程度最高 (9.25 极差). 经水质评价结果可知填埋场区域地下水受到不同程度的污染,为查明污染 原因,需要进一步的开展污染解析.

			Table 4	Water qual	ity evaluatio	n results			
时期Period	BOD ₅	COD _{Cr}	TN	NH ₃ -N	F-	Hg	Fe	Mn	Ni
雨季	8.11	8.79	8.76	7.55	7.38	0	8.05	7.58	_
非雨季	7.27	8.73	9.06	7.67	4.25	2.19	9.25	8.07	8.32
综合	7.69	8.76	8.91	7.61	5.82	1.1	8.65	7.83	_

表 4 水质评价结果

Note: - indicates not tested; / indicates that the item has no calculation result; Same as below.

2.2 污染特征分析

雨季和非雨季时期填埋场地下水中各污染物的浓度变化特征如表 5 所示. 以《地下水质量标准》 (GB/T 14848—2017) 中Ⅲ类水标准限值作为阈值,除 Hg 以外,其他污染物在雨季和非雨季期均出现浓 度 超标,各污染物综合期超标率为:Fe=TN>COD_{Cr}=Ni>Mn>NH₃-N>BOD₅>F>Hg,超标率在 21.88%—84.38%之间.BOD₅、COD_{Cr}、F⁻、Hg、Fe、Mn 和 Ni 的综合期平均浓度分别为背景值的 2.1、 2、7、3.3、2.6、11、90倍,表明其浓度可能还受到渗滤液的影响.综合期变异系数均高于 0.36,在 0.51—2.57区间内,属于高度变异^[27].相同时期下变异系数高于 1 的有非雨季期 BOD(1.07)、Hg(1.26)、 Fe(1.22)、Mn(2.55)、Ni(1.49)和雨季期 F⁻(1.23)、Hg(1.26)、Fe(2.04)及 Mn(2.05),相同时期较高的变异系 数揭示了地下水污染在空间上的变化差异显著^[18],这可能是由存在于填埋场至黑坝水库的两条破碎带 引起的.两时期下 BOD₅、F⁻、Fe 及 Mn 的变异系数差异明显,同一污染物在不同时期变异系数的差异 化现象反映出污染物浓度受时间尺度的影响^[12].

Table 5 Statistical analysis of political concentration in different periods (ing'L')										
时期Period	d 统计值Statistics	BOD_5	COD _{Cr}	TN	NH ₃ -N	F-	Hg	Fe	Mn	Ni
	最小值	2.45	14.5	0.36	0.06	0.25	0.0014	0.038	0.015	_
	最大值	18.05	63.2	3.65	1.53	4.5	0.09	41.43	5.96	_
雨禾	平均值	5.82	34.76	1.58	0.49	1.59	0.02	6.46	0.69	_
兩字	标准差	4.07	16.17	0.75	0.44	1.96	0.02	13.19	1.42	_
	变异系数	0.7	0.47	0.48	0.9	1.23	1.26	2.04	2.05	_
	超标率/%	5	87.5	81.25	37.5	37.5	0	75	43.75	_
	最小值	1.9	16.4	0.45	0.06	0.02	0.001	0.141	0.013	0.01
	最大值	21.85	88.8	4.24	1.65	1.44	0.42	39.53	13.84	0.48
北雨禾	平均值	4.57	35.08	2.06	0.61	0.5	0.08	7.43	1.28	0.09
非图学	标准差	4.91	19.88	1.03	0.47	0.32	0.11	9.07	3.26	0.13
	变异系数	1.07	0.57	0.5	0.76	0.65	1.26	1.22	2.55	1.49
	超标率/%	12.5	75	87.5	43.75	6.25	0	93.75	87.5	81.25
	最小值	1.9	14.5	0.36	0.06	0.02	0.001	0.038	0.013	0.01
	最大值	21.85	88.8	4.25	1.65	4.5	0.42	41.43	13.84	0.48
炉入期	平均值	5.19	34.92	1.82	0.55	1.05	0.05	6.94	0.99	0.09
坏百别	标准差	4.55	18.12	0.94	0.46	1.51	0.08	11.33	5.23	0.13
	变异系数	0.88	0.52	0.51	0.83	1.44	1.64	1.63	2.57	1.49
	超标率/%	34.36	81.25	84.38	34.38	21.88	0	84.38	68.63	81.25
	背景值	2.5	17.19	5.42	_	0.15	0.015	2.66	0.09	0.001
	渗滤液	264.2	2641.15	4.47	_	1.45	0.027	3.6	0.64	0.061
	地下水Ⅲ类水 标准	≤4	≤20	≤1.0	≤0.5	≤1.0	≤0.001	≤0.3	≤0.1	≤0.02

表 5 不同时期污染物浓度统计分析 (mg·L⁻¹)

a 11.1+

1:00

al amalusia

hla 5

St.

注:黑体为地表水Ⅲ类水标准值;Hg的浓度为µg·L⁻¹.

Note: The bold text is the standard value of class $I\!I$ surface water; The concentration of Hg is $\mu g \cdot L^{-1}$.

由图 2 可知, 雨季和非雨季时期地下水中 COD_{Cr}、Fe、Mn 和 F 的浓度变化差异明显, 其余污染物 浓度雨季前后变化幅度不大.





各钻孔距填埋场的直线距离关系为ZK3<ZK1<ZK4<ZK2,BOD₅和COD_{Cr}的浓度随距离的增大而减小,表明受到渗滤液影响较大.F⁻、NH₃-N、TN、Hg、Fe、Mn及Ni的浓度在随距离增大的过程中浓

T = 1

度无明显的规律性递减变化,说明在污染过程中还存在其他污染源输入.地下水雨季期 COD_{Cr} 的浓度 高于非雨季期,是由于雨季期间地表径流进入填埋堆体总量增加从而增高了堆体中的水头,进而造成 堆体底部渗滤液的入渗加剧.F⁻在雨季期间浓度有明显增加,除渗滤液下渗影响外,雨季降水量增加, 淋溶作用增强,存在于岩土体中的可溶性 F⁻更容易溶入地下水.非雨季期 Fe、Mn 的浓度高于雨季期, 非雨季期间径流较小,所以含有 Fe、Mn 元素的花岗岩含水层水环境变化比雨季期间稳定.

2.3 污染源分析

研究区地下水污染存在多方面的原因.首先,一定程度上是与填埋场渗滤液的渗漏有关,除此外地下水污染还受其他自然原因和人为原因的共同作用^[28].其次,大气降水是研究区地下水的主要补给源之一,因此大气沉降跨区域所带来的污染以及区内一定浓度的土壤背景值为地下水污染提供了可能,另外含金属元素的矿物质经溶滤作用会对地下水中金属元素的浓度造成影响,这也是必要考虑的因素^[14];最后,因研究区所处地域的生态环境质量优越,旅游区的建设也带来诸多人类活动影响.

2.3.1 污染源类型分析

为了查明地下水污染原因,通过相关性分析(表 6)和主成分分析进一步解析地下水中污染物质的 来源.对非雨季时期水样数据进行 KMO 和 Bartlett 球度检验,结果 KMO>0.5、P<0.001,符合主成分分 析的检验条件.对雨季时期水样数据进行相关性分析和主成分分析显示各因子间的相关性较差,不能 通过 KMO 和 Bartlett 球度检验,因研究区是山谷地形及地下破碎带的存在,雨季期间地表水和地下水 径流速度较快,不利于污染物的富集沉积,各污染物浓度间的关联性降低,所以不采用该时期数据进行 因子分析.主成分分析共提取了 4 个公因子 (F1—F4),累计贡献了总方差的 84.976%(表 7).根据最大方 差法对污染因子做正交旋转得到因子荷载矩阵,旋转结果见表 8.

Table 6 Correlation analysis results												
指标Index	BOD_5	COD _{Cr}	F-	NH ₃ -N	TN	Hg	Fe	Mn	Ni			
BOD ₅	1											
COD _{Cr}	0.533*	1										
F	-0.32	-0.329	1									
NH3N	0.282	0.051	-0.11	1								
TN	0.029	-0.06	0.446	-0.36	1							
Hg	-0.158	-0.157	0.593*	-0.213	0.369	1						
Fe	-0.005	-0.058	0.709**	-0.038	0.319	0.626**	1					
Mn	-0.133	-0.074	0.770**	-0.017	0.261	0.780**	0.934**	1				
Ni	-0.164	-0.14	0.558*	-0.239	0.124	0.664**	0.758**	0.787**	1			

表	6	相关性分析结果
ahle 6	C	orrelation analysis resu

注:**表示在0.01水平上显著, *表示在0.05水平上显著. Note: ** means significant at the 0.01 level, * means significant at the 0.05 level.

表 7	污染因子的总方差解释
-----	------------

Table / Interpretation of total variance of pollution factors												
		起始特征值	Ì	携	昆取平方和载	入	旋转平方和载人 Rotate squares and load					
成分	Sta	rting eigenva	lues	Extract the	sum of squa	res and load						
Components	特征值	方差/%	累计/%	特征值	方差/%	累计/%	特征值	方差/%	累计/%			
	Eigenvalue	Variance	Cumulative	Eigenvalue	Variance	Cumulative	Eigenvalue	Variance	Cumulative			
1	4.168	46.312	46.312	4.168	46.312	46.312	3.788	42.088	42.088			
2	1.593	17.699	64.011	1.593	17.699	64.011	1.651	18.34	60.428			
3	1.214	13.486	77.497	1.214	13.486	77.497	1.211	13.46	73.888			
4	0.826	9.179	86.675	0.826	9.179	86.675	1.151	12.788	86.675			
5	0.446	4.958	91.634									
6	0.383	4.257	95.891									

									续表 7
	起始特征值						旋转平方和载入		
成分	Starting eigenvalues			Extract the sum of squares and load			Rotate squares and load		
Components	特征值	方差/%	累计/%	特征值	方差/%	累计/%	特征值	方差/%	累计/%
	Eigenvalue	Variance	Cumulative	Eigenvalue	Variance	Cumulative	Eigenvalue	Variance	Cumulative
7	0.2	2.222	98.112						
8	0.153	1.705	99.817						
9	0.016	0.183	100						

	Table 8 Princi	pal component factor lo	bad	
指标Index	PC 1	PC 2	PC 3	PC 4
BOD_5	-0.092	0.838	0.138	0.301
COD _{Cr}	-0.053	0.888	-0.114	-0.108
F^{-}	0.725	-0.365	0.407	0.077
NH ₃ -N	-0.057	0.092	-0.196	0.949
TN	0.19	0.023	0.935	-0.214
Hg	0.791	-0.096	0.205	-0.175
Fe	0.923	0.043	0.168	0.083
Mn	0.975	-0.044	0.1	0.066
Ni	0.885	-0.068	-0.14	-0.232

表 8 主成分因子载荷

主成分 PC1 的主要载荷因子分别是 Hg、Fe、Mn、Ni 及 F⁻,相关性分析得到 Hg、Fe、Mn、Ni 和 F相互之间显著正相关,认为 5 种元素可能存在同源性.通过表 5 得到地下水中 Hg、Fe、Mn 和 Ni 的平 均浓度均高于渗滤液及背景值,表明渗滤液并不是地下水体中金属元素的唯一物质来源. 贺勇等^[29] 研 究表明研究区土壤中 Ni 的自然背景值较高,呈中等程度污染水平,在雨水淋溶下土壤中的 Ni 会下渗 至地下含水层中,所以地下水体中 Ni 的来源除了受渗滤液的富集影响外更多地受到土壤背景值影响. 根据相关性分析得到地下水中 Hg、Fe 和 Mn 之间呈正相关关系, Fe 和 Mn 的相关性系数较高为 0.934,表明 Fe 和 Mn 的物质来源可能相同,研究区地下水类型为基岩裂隙水和松散沉积物孔隙水,地 层岩性以燕山晚期的二云母二长花岗岩为主,花岗岩中的磁铁矿和黄铁矿等矿石含有 Fe、Mn 元素,受 山谷地形、气候湿热和雨量充沛影响,年降水量在 1350 mL 以上,含水层孔隙松散、裂隙节理发育,故 径流通畅,含有 Fe、Mn 的矿石在长期的风化剥蚀和降水淋溶作用下溶解向地下水富集. Hg 作为黄铁 矿的伴生元素^[30],本研究地下水 Hg 含量较低并未出现超标,在 Fe、Mn 溶滤的同时伴随少量的 Hg 至 地下水中.自然条件下,下广泛存在于土壤沉积物中,常与金属元素结合以可溶性化合物的形态进行物 质迁移^[31-34],在研究区的地质背景条件下则以铁锰氧化态的形式存在,地表沉积物覆盖层以砂质土为 主,孔隙间径流通透,下在强烈的溶滤作用下会被迁移至地下水,但下的平均浓度低于渗滤液浓度,表 明下受到自然源和渗滤液的共同作用.因此,第一主成分的元素主要受到自然源和渗滤液的共同作用.

主成分 PC2 主要载荷因子为 BOD₅ 和 COD_{Cr},在 0.05 水平上显著相关,认为来源可能相同.研究区 雨季期间的平均温度为 26.53 ℃,有研究表明 24.9—27.0 ℃ 的温度范围利于水体中微生物的生命活动 和渗滤液的形成^[13].填埋场的防渗装置未完善,渗滤液的下渗污染从而促使地下水中 BOD₅ 和 COD_{Cr} 的含量升高,渗滤液中 BOD₅ 和 COD_{Cr} 的浓度通距填埋场距离的增大依次递减,且平均浓度高于背景值,说明地下水中 BOD₅ 和 COD_{Cr} 的浓度受到渗滤液的影响较大.因此,认为第二主成分 BOD₅ 和 COD_{Cr} 的主要来源为渗滤液.

主成分 PC3 TN 的因子载荷较高,研究区渗滤液和背景值浓度分别是地下水中 TN 浓度的 2.5 倍和 3 倍.农业含氮肥料的施入也会造成水体 TN 污染^[35],但研究区自然条件较好,森林及水资源丰富,当地政府在研究区附近规划了数个森林公园旅游区,为保护生态环境对当地的农业用地进行退耕,可以排除农业施肥输入的影响.所以,第三主成分 TN 主要来自于渗滤液及自然背景的输入.

主成分 PC4 NH₃-N 作为主要正载荷因子,相关性分析显示 NH₃-N 与其他污染物的相关系数低于 0.3 甚至呈负相关,说明物质来源可能存在差异.区内原有的养殖场因生态园区的建立已经陆续关闭搬 迁,但是在畜禽养殖中产生的污水和动物粪便未能规范处理,污染物随土壤和地表径流迁移至地下含 水层,地下水 NH₃-N 含量超标.而生态旅游的兴起也伴生了当地农家乐庄园等一系列餐饮服务业的产 生,在此餐饮服务活动过程中的排放物也会引起地下水 NH₃-N 污染.因此,第四主成分 NH₃-N 的来源 与人类活动有较大关系.

2.4 健康风险评价

填埋场地下水健康风险评价结果如图 3 所示. 经饮水和皮肤暴露途径引起的儿童和成人非致癌健 康风险结果变化一致,依次为: Fe>Mn>F>TN>NH₃-N>Hg. 两种途径下的非致癌风险都表现为儿童高 于成人,表明在相同条件下儿童比成人对污染物的敏感性更高,更容易受到潜在风险的影响,这与儿童 的行为习惯和身体发育程度紧密相关^[36].同时,饮水途径的非致癌风险高于皮肤暴露途径. 降雨是引起 地下水污染变化的原因之一,对研究区域雨季期和非雨季期儿童和成人的非致癌风险评价得到儿童: 雨季>非雨季,成人:雨季>非雨季;且两时期的非致癌风险儿童>成人,表明雨季期人群健康风险高于 非雨季时期. 儿童和成人的 HI 分别为 9.151×10⁻⁶ 和 3.481×10⁻⁶, HI 均小于 1,都处于人体可接受范围 内,儿童的 HI 是成人的 3.63 倍.



本研究选取的致癌物质是 Ni,总体上 Ni 的致癌风险成人高于儿童,成人的致癌风险是儿童的 1.14 倍. 饮水途径下成人和儿童的致癌风险均高于 USEPA 推荐的最大可接受水平 1×10⁻⁴,且该途径的 致癌风险成人高于儿童,说明在饮水途径下人群有潜在的致癌风险. 经皮肤暴露途径下儿童和成人的 致癌健康风险均低于 USEPA 的推荐水平 1×10⁻⁶,表明皮肤暴露途径带来的人群致癌风险较低.

3 结论 (Conclusion)

(1) 研究区地下水水质评价结果显示, 地下水整体上的污染程度较高, 水质评价等级以极差为主, 仅部分水质呈较好及以上等级 (F⁻和 Hg). 综合超标率为: Fe=TN>COD_{Cr}=Ni>Mn>NH₃-N>BOD₅>F>Hg, TN 和 Fe 的超标率为 84.38%, 其中 COD_{Cr}、Fe、Mn 和 F⁻在雨季前后浓度变化明显, 同时各污染物的变 异系数均处于高度变异.

(2) 污染源解析表明研究区地下水污染是多方面共同作用的结果, BOD₅和 COD_{Cr} 的主要来源为 渗滤液; Hg、Fe、Mn、Ni、F⁻和 TN 主要来源自然源和渗滤液; NH₃-N 则认为主要受人类活动影响.

(3)健康风险评价结果表明,非致癌物的 HQ 和人群的 HI 均在可接受水平内.非致癌风险儿童高 于成人,雨季高于非雨季.致癌物 Ni 经饮水途径引起的人群致癌风险均高于 USEPA 推荐的最大可接 受水平 1×10⁻⁴,且致癌风险成人高于儿童.由饮水途径引起的健康风险高于皮肤暴露途径,表明饮水是 引起人群健康风险的主要途径.

参考文献 (References)

- [1] 段小丽, 王宗爽, 李琴, 等. 基于参数实测的水中重金属暴露的健康风险研究 [J]. 环境科学, 2011, 32(5): 1329-1339. DUAN X L, WANG Z S, LI Q, et al. Health risk assessment of heavy metals in drinking water based on field measurement of exposure factors of Chinese people [J]. Environmental Science, 2011, 32(5): 1329-1339(in Chinese).
- [2] 张韵, 黄健盛, 赵丽, 等. 垃圾填埋场地下水对居民健康的风险评价 [J]. 环境科学与管理, 2015, 40(9): 172-176. ZHANG Y, HUANG J S, ZHAO L, et al. Health risk assessment for residents exposure to groundwater in a formal landfill [J]. Environmental Science and Management, 2015, 40(9): 172-176(in Chinese).
- [3] XU Y, XUE X, DONG L, et al. Long-term dynamics of leachate production, leakage from hazardous waste landfill sites and the impact on groundwater quality and human health [J]. Waste Management, 2018, 82: 156-166.
- [4] 王月,安达,席北斗,等.基于三角随机模拟的生活垃圾填埋场地下水环境健康风险评价模型 [J].环境工程技术学报,2016, 6(1):49-56.
 WANG Y, AN D, XI B D, et al. Assessment model of landfill sites groundwater environmental health risk based on stochastic

simulation-triangular fuzzy numbers [J]. Journal of Environmental Engineering Technology, 2016, 6(1): 49-56(in Chinese).

- [5] 徐颖,马艺铭,张溪,等. 某生活垃圾填埋场周边地下水饮水途径健康风险评价 [J]. 生态环境学报, 2021, 30(3): 558-568. XU Y, MA Y M, ZHANG X, et al. Health risk assessment of groundwater drinking pathway around A municipal solid waste landfill [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2021, 30(3): 558-568(in Chinese).
- [6] 王晓东,田伟,张雪艳. 宁夏地区地下水金属元素分布特征及健康风险评价 [J]. 环境科学, 2022, 43(1): 329-338.
 WANG X D, TIAN W, ZHANG X Y. Distribution characteristics and health risk assessment of metal elements for groundwater in the Ningxia region of China [J]. Environmental Science, 2022, 43(1): 329-338(in Chinese).
- [7] 余璇,康亭,郑晓笛,等.陈家冲垃圾填埋场地下水环境健康风险评价 [J].南水北调与水利科技,2017,15(5):82-88. YU X, KANG T, ZHENG X D, et al. Study on groundwater quality impacted by Chenjiachong sanitary landfill [J]. South-to-North Water Transfers and Water Science & Technology, 2017, 15(5):82-88(in Chinese).
- [8] STEFANIA G A, ROTIROTI M, BUERGE I J, et al. Identification of groundwater pollution sources in a landfill site using artificial sweeteners, multivariate analysis and transport modeling [J]. Waste Management, 2019, 95: 116-128.
- [9] 周文武,陈冠益,穷达卓玛,等.拉萨市垃圾填埋场地下水水质的居民健康风险评价 [J].环境化学,2020,39(6):1513-1522. ZHOU W W, CHEN G Y, QIONG D, et al. Health risk assessment of groundwater quality in Lhasa landfill [J]. Environmental Chemistry, 2020, 39(6):1513-1522(in Chinese).
- [10] 周巾枚, 蒋忠诚, 徐光黎, 等. 铁矿周边地下水金属元素分布及健康风险评价 [J]. 中国环境科学, 2019, 39(5): 1934-1944. ZHOU J M, JIANG Z C, XU G L, et al. Distribution and health risk assessment of metals in groundwater around iron mine [J]. China Environmental Science, 2019, 39(5): 1934-1944(in Chinese).
- [11] ZENG D, CHEN G Y, ZHOU P, et al. Factors influencing groundwater contamination near municipal solid waste landfill sites in the Qinghai-Tibetan plateau [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2021, 211: 111913.
- [12] 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.
 LI J, ZHAO Y, ZOU S Z, et al. Metal pollutions and human health risks in groundwater from wet, normal, and dry periods in the Huixian karst wetland, China [J]. Environmental Science, 2021, 42(1): 184-194(in Chinese).
- [13] MISHRA S, TIWARY D, OHRI A, et al. Impact of municipal solid waste landfill leachate on groundwater quality in Varanasi, India [J]. Groundwater for Sustainable Development, 2019, 9: 100230.
- [14] 赵卫东, 赵芦, 龚建师, 等. 宿州矿区浅层地下水污染评价及源解析 [J]. 地学前缘, 2021, 28(5): 1-14.
 ZHAO W D, ZHAO L, GONG J S, et al. Pollution assessment and source apportionment of shallow groundwater in Suzhou mining area, China [J]. Earth Science Frontiers, 2021, 28(5): 1-14(in Chinese).
- [15] 师环环,潘羽杰,曾敏,等.雷州半岛地下水重金属来源解析及健康风险评价 [J].环境科学, 2021, 42(9): 4246-4256.
 SHI H H, PAN Y J, ZENG M, et al. Source analysis and health risk assessment of heavy metals in groundwater of Leizhou Peninsula [J]. Environmental Science, 2021, 42(9): 4246-4256(in Chinese).
- [16] HUANG G X, ZHANG M, LIU C Y, et al. Heavy metal(loid)s and organic contaminants in groundwater in the Pearl River Delta that has undergone three decades of urbanization and industrialization: Distributions, sources, and driving forces [J]. Science of the Total Environment, 2018, 635: 913-925.
- [17] 旦增,周鹏,周文武,等. 西藏日喀则市垃圾填埋场地下水环境质量评价 [J]. 环境工程, 2019, 37(5): 200-205.
 DAN Z, ZHOU P, ZHOU W W, et al. Groundwater environmental quality assessment in the landfill in Shigatse, Tibet [J].
 Environmental Engineering, 2019, 37(5): 200-205(in Chinese).
- [18] 韩聪,高宗军,刘久潭,等. 郯城地区地下水化学特征及针对硝酸盐的健康风险评价 [J]. 地球与环境, 2021, 49(4): 436-446.
 HAN C, GAO Z J, LIU J T, et al. Chemical characteristics of groundwater and health risk assessment of nitrate in Tancheng area [J].
 Earth and Environment, 2021, 49(4): 436-446(in Chinese).
- [19] 李东凡, 滕彦国, 胡斌, 等. 拉林河流域地下水地球化学及污染特征 [J]. 北京师范大学学报(自然科学版), 2019, 55(6): 741-747.

LI D F, TEN Y G, HU B, et al. Geochemistry and pollution of groundwater in Lalin River Basin [J]. Journal of Beijing Normal

University (Natural Science), 2019, 55(6): 741-747(in Chinese).

- [20] FOUFOU A, DJORFI S, HAIED N, et al. Water pollution diagnosis and risk assessment of Wadi Zied plain aquifer caused by the leachates of Annaba landfill (N-E Algeria) [J]. Energy Procedia, 2017, 119: 393-406.
- [21] 刘国,刘晏辉,何天煜,等.某垃圾填埋场地下水水化学与水质评价研究[J].环境科学与技术,2019,42(4):221-228.
- LIU G, LIU Y H, HE T Y, et al. Study on water chemistry and water quality evaluation of groundwater in a landfill [J]. Environmental Science & Technology, 2019, 42(4): 221-228(in Chinese).
- [22] 敦宇,武超,杨帆,等.基于随机模拟的地下水铬污染健康风险动态评价 [J].南水北调与水利科技,2019,17(6):121-126,137.

DUN Y, WU C, YANG F, et al. Dynamic health risk assessment of chromium pollution in groundwater based on the stochastic simulation [J]. South-to-North Water Transfers and Water Science & Technology, 2019, 17(6): 121-126,137(in Chinese).

[23] 国家质量监督检验检疫总局,中国国家标准化管理委员会.地下水质量标准:GB/T 14848—2017[S].北京:中国标准出版 社,2017.

General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, Standardization Administration of the People's Republic of China. Standard for groundwater quality: GB/T 14848—2017[S]. Beijing: Standards Press of China, 2017(in Chinese).

[24] 国家环境保护总局,国家质量监督检验检疫总局.地表水环境质量标准:GB 3838—2002[S].北京:中国环境科学出版社, 2002.

State Environmental Protection Administration of the People's Republic of China, General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Environmental quality standards for surface water: GB 3838—2002[S]. Beijing: China Environment Science Press, 2002(in Chinese).

- [25] 段小丽, 聂静, 王宗爽, 等. 健康风险评价中人体暴露参数的国内外研究概况 [J]. 环境与健康杂志, 2009, 26(4): 370-373. DUAN X L, NIE J, WANG Z S, et al. Human exposure factors in health risk assessment [J]. Journal of Environment and Health, 2009, 26(4): 370-373(in Chinese).
- [26] USEPA. Risk assessment guidance for superfund, human health evaluation manual (Part A), vol. 1[R]. Washington DC: Office of Emergency and Remedial Response, 1989: 35-52.
- [27] LV J S, LIU Y, ZHANG Z L, et al. Factorial kriging and stepwise regression approach to identify environmental factors influencing spatial multi-scale variability of heavy metals in soils [J]. Journal of Hazardous Materials, 2013, 261: 387-397.
- [28] KHAN K, LU Y L, KHAN H, et al. Health risks associated with heavy metals in the drinking water of Swat, northern Pakistan [J]. Journal of Environmental Sciences, 2013, 25(10): 2003-2013.
- [29] 贺勇,李冰冰,朱考飞,等. 长沙市固体废弃物处理场水文地质及环境效应评价 [J]. 钻探工程, 2021, 48(4): 110-115.
 HE Y, LI B B, ZHU K F, et al. Evaluation of hydrogeology and environmental effect of a municipal solid waste landfill in Changsha [J]. Drilling Engineering, 2021, 48(4): 110-115(in Chinese).
- [30] 刘贝,黄文辉,敖卫华,等. 沁水盆地晚古生代煤中硫的地球化学特征及其对有害微量元素富集的影响[J]. 地学前缘, 2016, 23(3): 59-67.

LIU B, HUANG W H, AO W H, et al. Geochemistry characteristics of sulfur and its effect on hazardous elements in the Late Paleozoic coal from the Qinshui Basin [J]. Earth Science Frontiers, 2016, 23(3): 59-67(in Chinese).

- [31] 徐静,刘国华,郦逸根,等.氟的生物环境地球化学与含氟水处理技术 [J].西部探矿工程,2004,16(10):209-211.
 XU J, LIU G H, LI Y G, et al. Fluorine bio-environmental geochemistry and fluoric water treatment [J]. West-China Exploration Engineering, 2004, 16(10): 209-211(in Chinese).
- [32] ADIMALLA N, VENKATAYOGI S. Geochemical characterization and evaluation of groundwater suitability for domestic and agricultural utility in semi-arid region of Basara, Telangana State, South India [J]. Applied Water Science, 2018, 8(1): 1-14.
- [33] ALSUHAIMI A O, ALMOHAIMIDI K M, MOMANI K A. Preliminary assessment for physicochemical quality parameters of groundwater in Oqdus Area, Saudi Arabia [J]. Journal of the Saudi Society of Agricultural Sciences, 2019, 18(1): 22-31.
- [34] 张勇,郭纯青,孙平安,等.基于空间分析荞麦地流域地下水健康风险评价 [J].中国环境科学, 2019, 39(11): 4762-4768.
 ZHANG Y, GUO C Q, SUN P G, et al. Groundwater health risk assessment based on spatial analysis in the Qiaomaidi watershed [J].
 China Environmental Science, 2019, 39(11): 4762-4768(in Chinese).
- [35] 杨琴, 汤秋鸿, 张永勇. 淮河流域(河南段)水质时空变化特征及其与土地利用类型的关系 [J]. 环境科学研究, 2019, 32(9): 1519-1530.
 YANG Q, TANG Q H, ZHANG Y Y. Spatiotemporal changes of water quality in Huai River Basin(Henan Section) and its correlation

with land use patterns [J]. Research of Environmental Sciences, 2019, 32(9): 1519-1530(in Chinese).

[36] 高凤杰,王鑫,韩晶,等.东北黑土区小流域耕地土壤重金属污染特征及健康风险评价:以海沟河小流域为例 [J].中国农业 大学学报,2020,25(8):73-83.

GAO F J, WANG X, HAN J, et al. Heavy metal pollution characteristics and its health risk assessment in a mollisol watershed of Northeast China: Taking Haigou watershed as study case [J]. Journal of China Agricultural University, 2020, 25(8): 73-83(in Chinese).