

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第4期

Vol.39 No.4

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

京津冀地区钢铁行业污染物排放清单及对 PM _{2.5} 影响	段文娇, 郎建全, 程水源, 贾佳, 王晓琦 (1445)
京津冀内陆平原区 PM _{2.5} 浓度时空变化定量模拟	郝静, 孙成, 郭兴宇, 王卫, 刘方田, 党海燕 (1455)
成都市冬季相对湿度对颗粒物浓度和大气能见度的影响	刘凡, 谭钦文, 江霞, 蒋文举, 宋丹林 (1466)
华山地区 PM _{2.5} 中无机离子垂直分布特征	曹聪, 王格慧, 吴灿, 李建军, 刘浪, 李瑾, 余兴 (1473)
烟花爆竹集中燃放的大气细颗粒物 (PM _{2.5}) 成分图谱	谢瑞加, 侯红霞, 陈永山 (1484)
长三角地区中小燃煤锅炉 PM _{2.5} 成分谱特征	徐健, 黄成, 李莉, 陈勇航, 楼晟荣, 乔利平, 王鸿宇 (1493)
民用燃煤排放分级颗粒物中重金属排放因子	严沁, 孔少飞, 刘海彪, 王伟, 吴剑, 郑明明, 郑淑睿, 杨国威, 吴方琪 (1502)
冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的分布特征及影响因素	张帅, 石金辉, 姚小红, 高会旺 (1512)
青岛大气降水中微量元素的浓度及溶解度	李茜, 石金辉, 李鹏志, 姚小红, 高会旺 (1520)
辽东湾大气中多环芳烃的含量组成及气粒分配	张玉凤, 宋永刚, 田金, 赵海勃, 杨爽, 吴金浩 (1527)
典型地区大气新型卤代阻燃剂污染特征、来源分析及人体暴露	李琦路, 杨孔, 李军, 张干 (1537)
苏州工业园区室内外颗粒物中多溴联苯醚污染特征及人体暴露水平	王俊霞, 顾海东, 张占恩, 钱飞跃 (1544)
上海市大气污染对感冒疾病相对危险度的影响	杨丝絮, 马玉霞, 周建丁, 周骥 (1552)
城镇化河流溶解性有机质的荧光特性与水质相关性: 以宁波市北仑区芦江为例	曹昌丽, 梁梦琦, 何桂英, 纵亚男, 唐剑锋 (1560)
艾比湖区域景观格局与河流水质关系探讨	曹灿, 张飞, 阿依尼格·亚力坤, 朱世丹, 郭苗, 阿丽米热·塔力甫江, Kung Hsiangte (1568)
三峡澎溪河水华期间水体 CH ₄ 浓度及其通量变化特征初探	秦宇, 张渝阳, 李哲, 马健荣 (1578)
漓江段地表水体旱季硝酸盐动态变化特征及其来源	苗迎, 章程, 肖琼, 赵海娟, 李成习 (1589)
柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价	张清华, 韦永著, 曹建华, 于爽 (1598)
黄柏河流域梯级水库沉积物磷形态特征及磷释放通量分析	刘佳, 雷丹, 李琼, 王亮, 张平, 肖尚斌 (1608)
白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估	高秋生, 焦立新, 杨柳, 田自强, 杨苏文, 安月霞, 贾海斌, 崔志丹 (1616)
典型有机氯农药在珠三角地区多介质环境中的归趋模拟	高梓闻, 徐月, 亦如瀚 (1628)
河道水旁路处理中试工艺中 PPCPs 的去除效果及机制	李力, 朱楦, 白瑶, 赵健, 曹之淇, 郭泓利, 李凌云, 李剑思 (1637)
蔡普生在氯消毒过程中的去除、转化与风险评价	樊鑫鑫, 杜尔登, 李佳琦, 赵丽丽, 王聿琳, 彭明国 (1645)
真空紫外/氯处理饮用水典型致嗅物质	孙昕, 张燚, 史路肖, 陈笑涵, 唐晓 (1654)
热活化过硫酸盐降解三氯生	蒋梦迪, 张清越, 季跃飞, 陆鸢鹤 (1661)
水体模拟颗粒物对四环素的吸附特性及基本规律	徐龙凤, 魏群山, 吕强, 唐立朋, 刘亚男, 柳建设 (1668)
海水优化 ANAMMOX 包埋固定化及其处理含海水污水的脱氮性能	单晓静, 于德爽, 李津, 陈光辉, 冯莉, 吕廷廷, 邵青 (1677)
外源甜菜碱投加增强高盐废水厌氧氨氧化脱氮性能	于德爽, 吴国栋, 李津, 周同, 王晓静 (1688)
硝化污泥富集及其强化高氨氮冲击的中试研究	盛晓琳, 崔灿灿, 王家德, 刘锐, 徐峰, 陈吕军 (1697)
分段进水对改良 A ² /O-BAF 双污泥系统反硝化除磷脱氮的影响	南彦斌, 彭永臻, 曾立云, 赵智超, 刘宏, 李慧, 陈永志 (1704)
不同温度下应用比值控制实现连续流好氧颗粒污泥短程硝化	梁东博, 卞伟, 阚睿哲, 王文啸, 赵青, 孙艺齐, 李军 (1713)
智能化曝气控制 A/O 工艺活性污泥特性演化对内源反硝化脱氮的作用机制	徐旻昶, 胡湛波, 张穗生, 李昊航 (1720)
温度对一体式厌氧流化床膜生物反应器运行效能及微生物群落结构的影响	李玥, 胡奇, 高文 (1731)
污泥臭原位置量工艺中抗生素的去除	汪鲁, 黄伟伟, 李彦刚, 强志民 (1739)
零价铁对污泥厌氧消化过程中四环素抗性基因水平转移的作用影响	杨帆, 徐雯丽, 钱雅洁, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (1748)
环境因子对全自养脱氮颗粒污泥功能菌协同效应的影响	陈希, 钱飞跃, 王建芳, 高军军, 沈耀良, 贾珣 (1756)
后置固相反硝化滤池工艺沿程微生物特性	张千, 吉芳英, 徐璇 (1763)
复合菌株 YH01 + YH02 强化 SBR 好氧反硝化脱氮及菌群结构分析	陈海升, 曹刚, 张迪, 黄郑郑, 莫测辉 (1773)
氮磷失衡下膨胀污泥性能及膨胀菌群落结构变化	贺雪濛, 丁丽丽, 张璐璐, 顾卓江, 任洪强 (1782)
1 株铜绿假单胞菌对砷的降解特性及代谢途径	李想, 张雪英, 周俊, 宋军, 王建刚, 雍晓雨, 贾红华 (1794)
铜尾矿库坝面土壤微生物群落动态的驱动因子	李磊, 景炬辉, 刘晋仙, 柴宝峰 (1804)
垦殖对桂林会仙喀斯特湿地土壤养分与微生物活性的影响	黄科朝, 沈育伊, 徐广平, 黄玉清, 张德楠, 孙英杰, 李艳琼, 何文, 周龙武 (1813)
黄土丘陵区退耕还林还草对土壤细菌群落结构的影响	陈孟立, 曾全超, 黄懿梅, 倪银霞 (1824)
河岸带表层土壤的铁氨氧化 (Feammox) 脱氮机制的探究	丁帮琛, 李正魁, 朱鸿杰, 陈湜, 覃云斌, 杨建华, 胡优优 (1833)
藏猪扰动作用下的高寒草甸土壤退化特征及微生物群落结构变化	展鹏飞, 肖德荣, 闫鹏飞, 刘振亚, 马金成, 陈志明, 格茸, 田伟, 王行 (1840)
深圳湾典型红树植物根表铁膜及其重金属富集特征	沈小雪, 李瑞利, 柴民伟, 邱国玉 (1851)
香港周边海域野生鱼体内 DDTs 和 PCBs 的含量分布和食用风险评估	苏杨, 鲍恋君, 曾永平 (1861)
偏远高山湿地土壤中 PAHs 污染特征: 以神农架大九湖为例	胡天鹏, 邢新丽, 柯艳萍, 毛瑶, 黎荧, 郑煌, 喻月, 张家泉, 祁士华 (1872)
西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征	孙涛, 马明, 王永敏, 安思危, 王定勇 (1880)
广西西江流域土壤镉含量特征及风险评估	宋波, 杨子杰, 张云霞, 王佛鹏, 周浪, 李黎, 钟雪梅 (1888)
长期施肥对旱地红壤及作物中砷累积的影响	张蓉, 余光辉, 李亚青 (1901)
三元土壤调理剂对田间水稻镉累积转运的影响	辜娇峰, 周航, 贾润语, 王倩倩, 李虹呈, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (1910)
稻田土壤性质与水稻镉含量的定量关系	王梦梦, 何梦媛, 苏德纯 (1918)
钙基膨润土辅助对堆肥及土壤 Cu、Zn 形态转化和白菜吸收的影响	赵军超, 王权, 任秀娜, 李荣华, Mukesh Kumar Awasthi, Altaf Hussain Lahori, 张增强 (1926)
外源碳和氮输入对降水变化下土壤呼吸的短期影响	贺云龙, 齐玉春, 彭琴, 董云社, 郭树芳, 闫钟清, 李兆林, 王丽芹 (1934)
模拟降水量减少对大豆-冬小麦轮作农田土壤呼吸的影响	王朝辉, 陈书涛, 孙鹭, 胡正华 (1943)
紫色土丘陵区农田源头沟渠一氧化氮排放的季节差异及影响因素	田琳琳, 任光前, 朱波 (1952)
季节非对称升温对喀斯特土壤 CO ₂ 释放的影响	唐国勇, 张春华, 刘方炎, 李昆, 马艳 (1962)
《环境科学》征订启事 (1472) 《环境科学》征稿简则 (1511) 信息 (1755, 1839, 1925)	

柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价

张清华^{1,2}, 韦永著³, 曹建华^{2,4}, 于爽^{2*}

(1. 桂林理工大学环境科学与工程学院, 桂林 541004; 2. 中国地质科学院岩溶地质研究所/国土资源部、广西岩溶动力学重点实验室, 桂林 541004; 3. 柳州市气象局, 柳州 545000; 4. 联合国教科文组织国际岩溶研究中心, 桂林 541004)

摘要: 为说明柳江流域饮用水源地的重金属元素含量特征及饮用水水质对人体健康的潜在危害, 于2016年1~12月对柳江干流及主要支流的水体进行常规水质指标和Cd、As、Cr、Hg、Zn、Cu、Pb、Fe、Mn等金属元素进行分析检测, 并采用美国EPA推荐使用的健康风险评价模型对饮用水源地的健康风险进行评价。结果表明, Cd、As、Cr、Zn、Cu、Pb、Fe、Mn含量未超过我国地表水环境质量标准(GB 3838-2002)的限值, Hg含量存在超标。对重金属含量进行Pearson相关性分析, 其中Cd、Pb、As与Fe可能具有相似的来源, Cu、Cr、Hg、Zn之间污染具有多源性, 9种重金属含量与pH值间均不存在显著相关性。柳江流域饮用水源地致癌重金属元素健康风险成人和儿童分别为 $4.52\text{E}-04\text{ a}^{-1}$ 和 $5.91\text{E}-04\text{ a}^{-1}$, 非致癌健康风险成人和儿童分别为 $8.96\text{E}-09\text{ a}^{-1}$ 和 $1.14\text{E}-08\text{ a}^{-1}$ 。致癌重金属Cr、As、Cd通过饮水途径所造成的人均年健康风险分别表现为 $\text{Cr} > \text{As} > \text{Cd}$, 风险值范围为 $3.58\text{E}-06 \sim 1.21\text{E}-04\text{ a}^{-1}$, Cr和As的风险值大于ICRP所推荐的风险水平 $5.0 \times 10^{-5}\text{ a}^{-1}$ 。该研究区内重金属元素非致癌健康风险值范围为 $3.53\text{E}-12 \sim 2.87\text{E}-09\text{ a}^{-1}$, 均在EPA推荐的可接受水平内, 初步认为不会对人体健康产生明显危害。流域主要健康风险来源于致癌物。Cr和As是柳江流域水环境产生健康风险的主要污染物, 应当优先列为柳江流域水环境风险管理的主要对象。

关键词: 柳江流域; 水源地; 健康风险评价; 模型; 重金属

中图分类号: X52; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)04-1598-10 DOI: 10.13227/j.hjks.201708210

Heavy Metal Pollution of the Drinking Water Sources in the Liujiang River Basin, and Related Health Risk Assessments

ZHANG Qing-hua^{1,2}, WEI Yong-zhu³, CAO Jian-hua^{2,4}, YU Shi^{2*}

(1. College of Environmental Science and Engineering, Guilin University of Technology, Guilin 541004, China; 2. Key Laboratory of Karst Dynamics, Ministry of Land and Resources & Guangxi, Institute of Karst Geology, Chinese Academy of Geological Sciences, Guilin 541004, China; 3. Liuzhou Meteorological Bureau, Liuzhou 545000, China; 4. International Research Center on Karst under the Auspices of UNESCO, Guilin 541004, China)

Abstract: The characteristics of heavy metal pollution in drinking water in the Liujiang river basin and its potential hazards on human health were investigated. In this study, the regular water-quality indices and the contents of metal elements Cd, As, Cr, Hg, Zn, Cu, Pb, Fe, and Mn in the Liujiang river and its main tributaries were detected from January to December of 2016. The health risks of drinking contaminated water were evaluated by the health risk assessment model recommended by the US EPA. The results showed that the concentrations of all of the aforementioned metal elements, except Hg, did not exceed the limits recommended by China's surface water environmental quality standard (GB 3838-2002). Pearson correlation analysis of the concentrations of metal elements indicated that Cd, Pb, As, and Fe may have similar sources, and Cu, Cr, Hg, and Zn may have source of diversity, while there was no significant correlation between the concentrations of metal elements and the pH value. The carcinogenic health risks posed by heavy metal elements in the Liujiang river basin in adults and children were $4.52\text{E}-04\text{ a}^{-1}$ and $5.91\text{E}-04\text{ a}^{-1}$, respectively, while the non-carcinogenic health risks were $8.96\text{E}-09\text{ a}^{-1}$ and $1.14\text{E}-08\text{ a}^{-1}$, respectively. The heavy metal elements in drinking water, on the basis of their average carcinogenic health risks, were ranked as $\text{Cr} > \text{As} > \text{Cd}$, and the risk levels ranged from $3.58\text{E}-06$ to $1.21\text{E}-04\text{ a}^{-1}$; the risk values of Cr and As were higher than the maximum allowance levels recommended by ICRP ($5.0 \times 10^{-5}\text{ a}^{-1}$). Simultaneously, the risk levels of the average non-carcinogenic health risks ranged from $3.53\text{E}-12$ to $2.87\text{E}-09\text{ a}^{-1}$, and the range was lower than the maximum allowance levels recommended by EPA. Carcinogens, especially Cr and As, are the main causes of health risks in the aquatic environment of the Liujiang river basin, and should be prioritized as the main objects of aquatic environmental risk management in the Liujiang river basin.

Key words: Liujiang River Basin; water sources; health risk assessment; model; heavy metal

收稿日期: 2017-08-24; 修订日期: 2017-09-21

基金项目: 国家自然科学基金项目(41402324, 41402238); 广西自然科学基金项目(2014GXNSFBA118228)

作者简介: 张清华(1990~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为环境地球化学, E-mail: Tsinghua_CAGS@163.com

* 通信作者, E-mail: yushi@karst.ac.cn

随着人口的剧增以及经济的快速发展,水环境污染的问题日益严重,特别是饮用水的安全受到了严重的威胁。“十二五”规划中提出水环境重金属污染防治,表明我国水体重金属污染的问题严重性以及水环境重金属污染治理的迫切性。重金属污染主要指因重金属或其化合物所引起的环境污染问题,日常生活中重金属污染物主要通过工农业生产活动或生活污水的排放、受污染的河流底泥的释放以及大气的干湿沉降等方式进入水体。重金属污染具有富集性,在自然环境中很难通过微生物等途径降解,最终通过食物链等途径进入人体中,直接或间接地危害人类健康^[1~4]。如20世纪30年代发生在日本富山县的“痛痛病”就是由于工矿企业向河流排放过量的Cd元素,导致Cd及其化合物直接通过消化道进入人体进而损伤人体肾脏,阻碍代谢功能,进而造成骨质疏松和软化,严重影响患者的劳动能力和生活问题^[5]。近年来,水环境的重金属污染问题面临更加严峻的考验,据统计,90%的癌症是由化学致癌物所导致的,而饮水就是重要的途径之一^[6~8]。广西盛产铅、锌等有色重金属,广西的重金属污染主要以Cd、As污染为主^[9,10]。自2008年以来,广西水体重金属污染现象频发,最严重的一次是在2012年发生在龙江河的Cd污染事故,这是建国以来重金属对河流污染最严重的事件之一,流域300 km受到污染,对周边市民的饮水安全问题造成威胁。

水体污染健康风险评价是在1980年之后在我国新兴起的一项新型研究领域,其主要是将污染物和人体健康相关联,定量描述污染物对人体健康的危害程度^[11]。水体健康风险评价主要是针对水体环境中对人体有害的物质,该种物质可分为两类,即是基因毒物质和躯体毒物质,前者包括放射性污染和化学致癌物,后者主要指非致癌物^[12]。对水体重金属污染状况及其可能存在的健康风险进行评价具有重要意义。当前较多研究主要集中在健康风险评价模型对区域水环境污染水平的研究^[13~17]。对柳江水体重金属健康风险评价虽也有报道,但都仅限于某一河段开展或重金属评价种类单一,而对整个河流的健康风险评价还较少。本研究从整个流域角度出发,对柳江流域由上而下及其主要支流进行了采样研究,分析了河水中的Cd、As、Cr、Hg、Zn、Cu、Pb、Fe和Mn 9种重金属,并针对不同的年龄段人群(儿童和成人)进行致癌和非致癌的健康风险评价,以期为该地区饮用水环境的风险管理提供

理论基础和决策依据。

1 研究区概况

柳江是珠江流域西江水系的第二大支流,为西江的一级支流,位于 $108^{\circ}32' \sim 110^{\circ}28'E$, $23^{\circ}54' \sim 26^{\circ}03'N$ 之间,流域面积58 398 km²,发源于贵州省独山县南部,由西北向东南流经贵州省三都县等至广西老堡口汇入古宜河称为都柳江,自此河道折向南流,流经广西融安、融水、柳城等县至凤山与龙江汇合称为融江;之后始称柳江。上游为河源老堡口,柳州为中、下游的分界,干流全长773.3 km,属雨源型河流,流域年平均温度18~20℃,年降雨量1 400~1 800 mm,柳江围绕着广西最大的工业城市——柳州市,柳州市是广西的工业重镇,也是广西“三废”排放的重点城市。柳江直接流经的9县(市)的工农业以及生活用水的92%直接取自于柳江。每年排入柳江的废水量多达3.5亿t,工业废水占83%,严重威胁着柳江的水环境安全^[18]。

2 材料与方法

2.1 样品采集

根据柳江河干流及其主要支流的环境和水文基本特征,课题组设置了21个采样点(如图1),并于2016年1~12月每月定点采样一次,按照《生活饮用水标准检验方法》采样原则进行采样,每个采样点用清洗干净的直立式采样器在水面下0.5 m处采集水样,每次取3个平行样,储存于用样品润洗过的聚乙烯瓶中,每个样品均加HNO₃(优级纯)酸化至pH<2,密封保存,用于重金属和总氮、总磷的分析测定。同时使用便携式检测仪对柳江流域水样的温度(*T*)、溶解氧(DO)、电导率(EC)、pH值进行现场测定。采集的水样在24 h内置于4℃的冰箱中保存。

2.2 样品分析

使用电感耦合等离子体原子发射质谱仪(ICP-MS)测定重金属Cd、As、Cr、Hg、Zn、Cu、Pb、Fe和Mn的浓度,总磷和总氮使用国家标准规定的钼酸分光光度法(GB 11893-89)和紫外分光光度法(GB 11894-89),氟化物使用环境行业标准(HJ/T 84-2001)中的离子色谱法进行检测。质量控制使用国家标准中心提供的标准物质进行,分析结果表明所有实验分析的重金属的相对标准偏差均小于10%,数据的精确度和准确度都满足要求。分析过程中所使用的玻璃器皿等器材均在配制的硝酸溶液



图1 柳江流域饮用水源地采样点分布示意

Fig. 1 Distribution of the drinking water sources used as sampling points in the towns of the Liujiang River Basin

(浓 $\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O}=3:1$) 中浸泡 1 d 以上,并用蒸馏水和超纯水洗干净后置于烘箱中烘干,水样分析过程中设置空白对照,分析过程中所使用的化学试剂均为分析纯,实验用水为超纯水.

2.3 水环境健康风险评价模型

目前,国内通常使用美国 EPA 所推荐的健康风险评价模型来评价水环境中有害物质所造成的健康风险,其中的有害物质包括化学致癌物和非化学致癌物,通过饮水途径摄入的化学致癌物的健康风险评价模型^[19~21]:

$$R_i = (D_i \cdot q_i)/72 \tag{1}$$

若结果 >0.01,则按高剂量暴露计算:

$$R_i = [1 - \exp(-D_i q_i)]/72$$

式中, R_i 为化学致癌物质 i 经过饮水途径的平均个人致癌风险, a^{-1} ; D_i 为化学致癌物质 i 经过饮水方式的单位体重日平均暴露剂量, $\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$; q_i 为化学致癌物质 i 通过饮水方式摄入的致癌系数, $\text{kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$; 72 为广西人均寿命.

通过饮水方式摄入的非化学物质的致癌风险评价模型:

$$H_i = (D_i/\text{RFD}_i) \times 10^{-6}/72 \tag{2}$$

式中, H_i 为非致癌物质 i 通过饮水方式摄入的人均年致癌风险, a^{-1} ; RFD_i 为非致癌物质 i 通过饮水方式摄入的单位体重日均暴露剂量, $\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$.

通过饮水方式的单位体重日均暴露剂量 D_i 可表示为:

$$D_i = 2.2c_i/64.3 \text{ (成人)} \tag{3}$$

$$D_i = 1.0c_i/22.9 \text{ (儿童)} \tag{4}$$

式中, 2.2 为成人每天的平均饮水量, L; 1.0 为儿童每天的平均饮水量, L; c_i 为化学致癌物质或非致癌物质的质量浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; 64.3 为成人平均体重(kg), 22.9 为 7 岁儿童平均体重(kg)^[22,23].

有毒的化学物质对人体健康所造成的危害作用复杂多样,有协同作用、拮抗作用和相加作用.由于一般的水体中,各有毒化学物质的浓度均较低,因此,假定每种毒物对人体健康的累积效应呈相加作用,即水环境的总体健康风险程度可以表示为:

$$R_{\text{总}} = R_i + H_i \tag{5}$$

2.4 参数选择

根据国际癌症研究机构(IARC)和世界卫生组织(WHO)编制的分类系统,以及美国 EPA 的推荐值,本次调查分析所测得的重金属污染物中,化学致癌物有 Cd、As 和 Cr,非化学致癌物质有 Fe、Hg、Zn、Cu、Pb、Mn,其致癌强度系数和非致癌物质参考剂量如表 1^[24].

表 1 致癌物质的致癌强度系数和非致癌物质参考剂量

Table 1 Values of q_i and RFD_i of model parameters

致癌物质	$q_i/\text{kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$	非致癌物质	$\text{RFD}_i/\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$	非致癌物质	$\text{RFD}_i/\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$
Cd	6.1	Pb	1.4×10^{-3}	Cu	5×10^{-3}
As	15	Hg	3×10^{-4}	Fe	0.7
Cr	41	Zn	0.3	Mn	1.4

3 结果与讨论

3.1 柳江流域各取样点的水质分析

柳江流域各取样点水质理化参数如表 2 所示,

从中可知,河水温度的变化范围为 6.0 ~ 32.4℃,平均值为 20.8℃,不同月份河水温度变化较大,河水 pH 值的变化范围为 6.60 ~ 8.85,平均值为 7.55,结果显示柳江流域的水体 pH 变化不大,大

多呈微碱性, 溶解氧浓度变化介于 6.10 ~ 11.16 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间, 平均值为 8.18 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 根据《地表水环境质量标准(GB 3838-2002)》柳江流域水体 DO 优于 I 类水质要求. 水体总磷浓度不高, 平均浓度符合地表水 I 类水质要求, 说明水体没有明显的受到磷污染, 但位于采样点 L16 的总磷浓度存在超标, 超过国家标准限值将近 4 倍, 为 IV 类水质, 这主要是因为柳江流域中游分布的工业园带是柳州市经济较为发达的区域, 在这一地区, 人为因素对于流经这一区域的河流的水质影响较大. 水体氨氮平均含量和氟化物平均浓度均符合地表水环境质量标准 I 类水质要求.

表 2 柳江流域饮用水源地水质理化参数¹⁾

Table 2 Water quality parameters in the Liujiang River Basin

地点		L1	L2	L3	L4	L5	L6	L7
$T/^{\circ}\text{C}$	检出范围	7.0 ~ 31.2	8.2 ~ 29.4	10.0 ~ 31.2	9.9 ~ 30.4	7.0 ~ 29.8	8.9 ~ 30.2	11.0 ~ 30.6
	平均值	20.1	19.8	21.2	20.0	19.0	20.1	21.9
pH	检出范围	6.94 ~ 8.03	6.75 ~ 7.77	6.81 ~ 7.75	6.88 ~ 7.83	6.86 ~ 8.07	6.83 ~ 7.84	7.11 ~ 8.20
	平均值	7.57	7.38	7.28	7.31	7.50	7.42	7.74
$\text{TP}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	Nd ~ 0.07	Nd ~ 0.05	Nd ~ 0.06	Nd ~ 0.06	Nd ~ 0.07	Nd ~ 0.06	Nd ~ 0.07
	平均值	0.027	0.022	0.025	0.024	0.026	0.028	0.026
$\text{DO}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	6.97 ~ 11.11	6.55 ~ 10.94	6.17 ~ 10.51	6.49 ~ 10.81	6.90 ~ 10.99	6.76 ~ 11.09	7.00 ~ 9.69
	平均值	8.28	8.29	8.08	8.19	8.20	8.32	8.14
氨氮/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	0.02 ~ 0.10	0.03 ~ 0.13	0.03 ~ 0.14	0.05 ~ 0.16	0.05 ~ 0.22	0.04 ~ 0.21	0.02 ~ 0.22
	平均值	0.051	0.076	0.071	0.088	0.077	0.126	0.072
氟化物/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	0.026 ~ 0.13	0.026 ~ 0.13	0.027 ~ 0.13	0.001 ~ 0.11	0.02 ~ 0.13	0.01 ~ 0.11	0.059 ~ 0.17
	平均值	0.048	0.053	0.057	0.038	0.048	0.031	0.086
电导率/ $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$	检出范围	244.1 ~ 298.2	241.0 ~ 329.9	279.8 ~ 312.4	193.8 ~ 309.8	176.6 ~ 214.3	134.7 ~ 187.8	288.5 ~ 409.2
	平均值	263.4	276.7	298.2	231.8	183.5	152.3	307.8
地点		L8	L9	L10	L11	L12	L13	L14
$T/^{\circ}\text{C}$	检出范围	6.0 ~ 24.5	11.0 ~ 28.0	12.0 ~ 29.0	11.0 ~ 30.6	10.0 ~ 29.8	12.0 ~ 29.0	12.0 ~ 29.0
	平均值	17.5	20.6	21.6	21.5	20.9	21.6	21.6
pH	检出范围	7.62 ~ 8.37	7.44 ~ 8.37	6.58 ~ 8.04	6.65 ~ 7.83	6.73 ~ 7.70	7.03 ~ 8.13	7.07 ~ 8.09
	平均值	7.98	7.88	7.26	7.28	7.20	7.52	7.59
$\text{TP}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	0.02 ~ 0.09	Nd ~ 0.07	Nd ~ 0.09	Nd ~ 0.06	Nd ~ 0.05	Nd ~ 0.13	Nd ~ 0.13
	平均值	0.036	0.032	0.026	0.025	0.022	0.034	0.034
$\text{DO}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	7.15 ~ 11.16	6.70 ~ 10.45	6.94 ~ 10.58	6.65 ~ 10.64	6.46 ~ 10.62	6.91 ~ 10.39	6.91 ~ 10.39
	平均值	8.40	8.41	8.30	8.15	8.15	8.33	8.33
氨氮/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	0.05 ~ 0.10	0.01 ~ 0.09	0.03 ~ 0.16	0.02 ~ 0.11	0.03 ~ 0.12	0.04 ~ 0.59	0.04 ~ 0.59
	平均值	0.076	0.048	0.108	0.070	0.070	0.149	0.149
氟化物/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	0.061 ~ 0.23	0.082 ~ 0.27	0.01 ~ 0.05	0.03 ~ 0.056	0.03 ~ 0.12	0.04 ~ 0.14	0.04 ~ 0.15
	平均值	0.108	0.176	0.019	0.045	0.043	0.063	0.067
电导率/ $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$	检出范围	199.3 ~ 245.5	112.5 ~ 178.2	178.2 ~ 197.4	127.8 ~ 196.2	138.9 ~ 217.6	118.7 ~ 156.2	299.1 ~ 312.4
	平均值	200.9	123.4	182.0	150.9	175.3	143.7	231.6
地点		L15	L16	L17	L18	L19	L20	L21
$T/^{\circ}\text{C}$	检出范围	11.0 ~ 32.4	11.0 ~ 31.9	12.0 ~ 29.0	12.0 ~ 29.0	12.0 ~ 29.0	12.0 ~ 29.0	9.0 ~ 31.1
	平均值	22.2	22.0	21.4	21.4	21.5	21.5	19.6
pH	检出范围	6.81 ~ 8.15	7.29 ~ 8.85	7.14 ~ 8.04	7.33 ~ 8.07	7.24 ~ 8.14	6.98 ~ 8.08	7.24 ~ 8.16
	平均值	7.42	7.94	7.60	7.73	7.69	7.61	7.71
$\text{TP}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	Nd ~ 0.10	0.08 ~ 0.23	Nd ~ 0.10	Nd ~ 0.07	Nd ~ 0.07	Nd ~ 0.07	0.03 ~ 0.09
	平均值	0.030	0.168	0.053	0.038	0.042	0.028	0.048
$\text{DO}/\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	6.85 ~ 10.44	6.10 ~ 10.58	6.65 ~ 9.89	6.46 ~ 9.73	6.28 ~ 9.84	7.10 ~ 10.08	6.59 ~ 10.41
	平均值	8.27	7.88	8.03	7.96	8.02	8.25	7.89
氨氮/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	0.02 ~ 0.21	0.17 ~ 0.60	0.06 ~ 0.37	0.02 ~ 0.20	0.04 ~ 0.30	0.06 ~ 0.24	0.01 ~ 0.16
	平均值	0.080	0.301	0.185	0.121	0.153	0.118	0.92
氟化物/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	检出范围	0.036 ~ 0.13	0.056 ~ 0.17	0.043 ~ 0.15	0.054 ~ 0.17	0.052 ~ 0.15	0.042 ~ 0.15	0.076 ~ 0.27
	平均值	0.060	0.090	0.071	0.083	0.078	0.069	0.127
电导率/ $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$	检出范围	123.8 ~ 156.3	156.2 ~ 198.7	266.7 ~ 298.1	177.7 ~ 208.9	221.3 ~ 346.2	98.7 ~ 136.8	143.7 ~ 198.6
	平均值	137.5	172.1	283.5	183.2	236.7	105.2	157.3

1) Nd 表示未检出

3.2 柳江流域重金属浓度时空变化特征

柳江流域饮用水源地重金属浓度变化情况如表 3, 柳江流域各采样点重金属浓度的空间分布如图 2, 由表 3 和图 2 可知, 在采样分析的 9 种重金属元素中, 重金属在水体中的平均浓度顺序为 $\text{Fe} > \text{Mn} > \text{Zn} > \text{Cu} > \text{Pb} > \text{Cr} > \text{As} > \text{Cd} > \text{Hg}$, 根据《地表水环境质量标准 (GB 3838-2002)》水质标准要求, 重金属 Hg 存在超标, Hg 的平均值超过标准值的 1.4 倍, 个别时段检测值最高超过国家标准限值的 2 倍, 柳江流域饮用水源地中的 Hg 浓度相对较高可能与上世纪 80 年代农药的广泛使用有关, 造成河流沉积物 Hg 的积累, 进而引起区域背景值较高. Cu、As、Zn、Cr、Cd、Fe、Mn 和 Pb 这 8 种重金属元素的浓度均符合《地表水环境质量标准 (GB 3838-2002)》I 类水质标准要求. 各个采样点的重金属元素浓度相差较大, 检测到的最小值和最大值最大相

差 21 倍(如 As), 这可能是因为不同河段及支流的重金属污染往往受到污染源的影响, 研究区域内的重金属元素浓度具有明显的地域分布特点: 位于柳江下游的采样点处于研究区域主要的工业区内, 分布有多个工业园以及多家水泥生产厂, 当地工业污染物的排放对河流影响较大, 在此处采集的水样无论重金属元素平均浓度还是氨氮、总磷等水质指标浓度均为本研究区域最大.

由图 3 可知, 柳江流域水体各重金属浓度具有明显随时间变化的特征, 大体呈现出夏季最低, 冬季最高的变化规律, 河水中重金属浓度出现这种季节上的不同主要是因为水循环条件不同而造成的. 柳江属于雨源型河流, 7、8 月为流域丰水期, 河流流量大增, 河水中的重金属浓度由于稀释作用而降低, 因此, 夏季河流中的重金属浓度相较于其他季节的重金属浓度偏低, 冬季情况则相反.

表 3 柳江流域饮用水源地重金属污染物检测结果¹⁾/μg·L⁻¹

Table 3 Content of metal pollutants in the Liujiang River Basin/μg·L⁻¹

重金属	流域上游			流域中游			流域下游		
	检出范围	平均值	变异系数	检出范围	平均值	变异系数	检出范围	平均值	变异系数
Cd	Nd ~ 5.01	1.39 ± 0.27	0.19	Nd ~ 12.00	1.28 ± 0.11	0.086	Nd ~ 1.3	1.23 ± 0.047	0.04
As	Nd ~ 2.44	0.99 ± 0.34	0.35	Nd ~ 3.30	1.28 ± 0.077	0.06	0.10 ~ 2.10	0.93 ± 0.53	0.57
Cr	1.25 ~ 8.10	2.94 ± 1.90	0.65	Nd ~ 3.70	2.88 ± 1.46	0.51	Nd ~ 7.8	3.65 ± 1.96	0.54
Hg	Nd ~ 0.04	0.019 ± 0.003	0.16	Nd ~ 0.10	0.02 ± 0.003	0.15	Nd ~ 0.04	0.023 ± 0.004	0.17
Zn	Nd ~ 51.00	10.78 ± 3.51	0.60	Nd ~ 23.00	6.00 ± 3.51	0.59	25.00 ~ 158.00	47.5 ± 26.51	0.56
Cu	Nd ~ 32	17.78 ± 6.48	0.36	Nd ~ 35.10	16.83 ± 2.41	0.14	20.00 ~ 47.00	23.67 ± 7.27	0.31
Pb	1.50 ~ 7.17	2.44 ± 2.02	0.84	Nd ~ 5.60	2.45 ± 0.59	0.24	1.30 ~ 8.60	2.10 ± 0.91	0.43
Fe	30.50 ~ 243.57	150.85 ± 10.05	0.067	99.78 ~ 542.00	357.1 ± 38.05	0.11	107.00 ~ 134.73	122.91 ± 11.44	0.09
Mn	10.40 ~ 70.83	45.75 ± 34.35	0.75	88.46 ~ 233.60	118.17 ± 25.63	0.22	10.05 ~ 71.42	35.57 ± 14.42	0.41

1) Nd 表示未检出

3.3 重金属、pH、总磷和氨氮相关性分析

重金属浓度相关性较好时, 表明重金属可能具有相同的来源或者经历相同的迁移转化过程, 对柳江流域重金属浓度、pH、总磷和氨氮进行 Pearson 相关性分析, 得到如表 4 的相关矩阵, 从中可知, Cd 浓度与 Pb 浓度及 Fe 浓度之间存在显著的正相关性 ($P < 0.01$), Fe 浓度与氨氮浓度之间存在显著负相关 ($P < 0.05$), As 浓度与 Fe 浓度间存在显著正相关 ($P < 0.01$), 表明 Cd、Pb、As 及 Fe 重金属元素具有相似的来源, 而氨氮与 Fe 的来源不同. 氨氮浓度与总磷浓度之间存在显著正相关 ($P < 0.05$), 这在一定程度上反映了矿山开采、电子产品的生产以及钢铁制造等人类活动对河流的污染, 人为活动排放污染物的特征是富含磷和氨氮. 有研究指出, 酸性废水会引起固体废弃物中的金属元素的活化及迁移^[25], 而柳江流域水体多呈现微碱性,

这可能是河水 pH 与 9 种重金属元素含量之间均不存在显著相关性的原因. Cu、Cr、Hg、Zn 之间均不存在显著相关性, 表明河流的污染源具有多样性.

3.4 柳江流域饮用水源地重金属健康风险评价

根据流域河流水体中重金属元素浓度数据, 按照健康风险评价模型和参数选择可以计算出 2016 年柳江流域饮用水源地的重金属污染物人均年致癌风险和非致癌风险, 计算结果见表 5 和表 6, 从中可以知道, 儿童的致癌总风险为成人的 2.1 倍, 非致癌总风险为成人的 1.3 倍. 相较于成人, 儿童对重金属的敏感度要高于成人, 更容易受到重金属的危害, 因此, 应该加强对儿童饮用水安全的管理和控制.

从表 5 可以看出, 研究区域内的化学致癌物 Cd、As、Cr 通过饮水途径所引起的成人和儿童的总致癌风险值分别在 $3.58\text{E} - 06 \sim 4.03\text{E} - 06$ 、 $5.59\text{E} - 05$

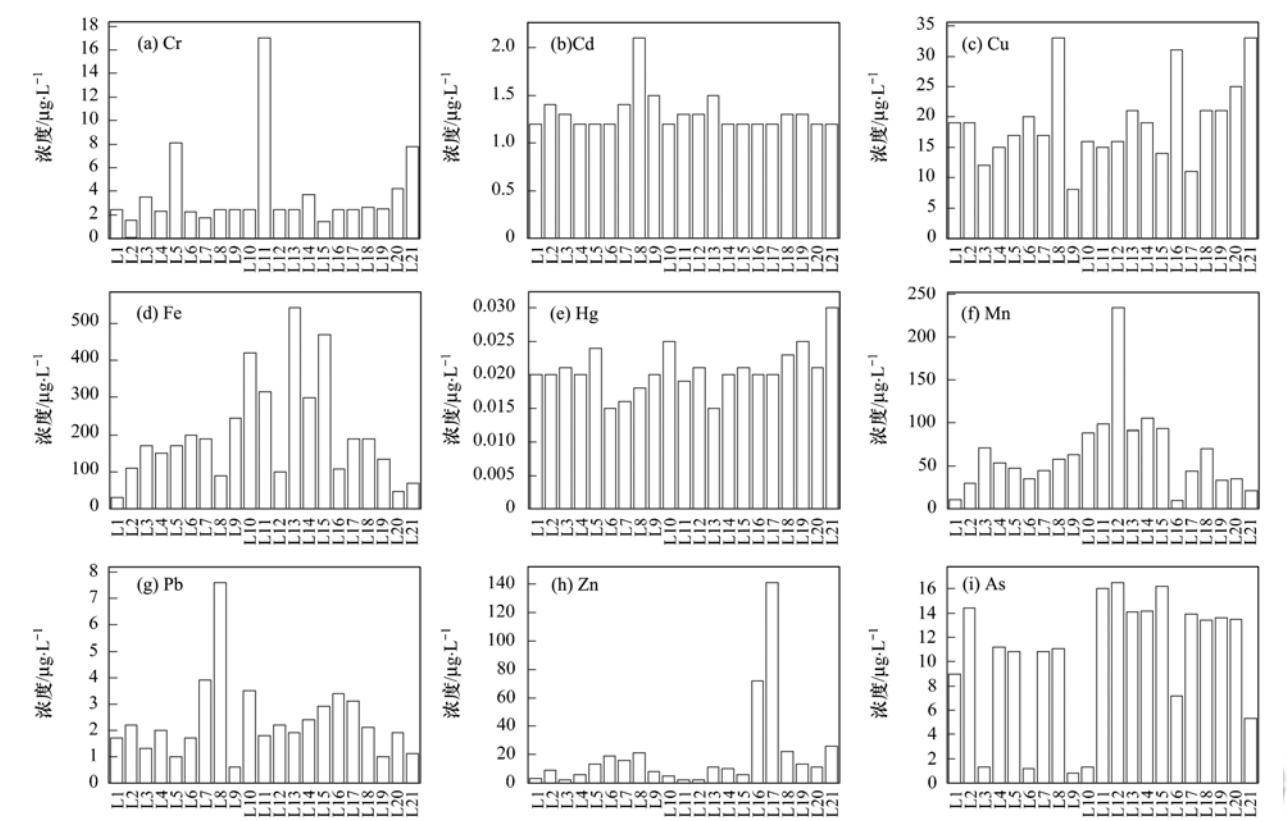


图2 柳江流域饮用水源地重金属空间分布特征

Fig. 2 Spatial distributions of heavy metals in the Liujiang River Basin

表4 柳江流域饮用水源地重金属、pH、总磷和氨氮相关矩阵¹⁾

Table 4 Partial correlation matrix of heavy metal concentrations, pH, total phosphorus, and ammonia in the Liujiang River Basin													
	Cd	As	Cr	Hg	Zn	Cu	Pb	Fe	Mn	pH	TP	氨氮	
Cd	1												
As	0.042	1											
Cr	-0.127	0.142	1										
Hg	-0.336	-0.117	0.208	1									
Zn	-0.108	0.062	-0.130	-0.022	1								
Cu	0.291	0.033	0.023	0.194	0.059	1							
Pb	0.665 **	0.142	-0.246	-0.303	0.222	0.396	1						
Fe	0.831 **	0.987 **	0.0379	-0.029	-0.655	-0.568	-0.448	1					
Mn	0.396	0.157	0.917 *	0.000	-0.263	-0.244	-0.036	0.019	1				
pH	0.444	-0.102	-0.207	-0.006	0.342	0.519	0.338	-0.599	-0.018	1			
TP	-0.108	-0.113	-0.093	0.048	0.542 *	0.462 *	0.173	-0.857	0.270	0.514 *	1		
氨氮	-0.227	0.036	-0.176	-0.040	0.648 **	0.372	0.121	-0.932 *	-0.233	0.348	0.855 *	1	

1) * 表示 $P < 0.05$, ** 表示 $P < 0.01$

~ 9.30E - 05、5.74E - 05 ~ 9.51E - 05 和 4.56E - 06 ~ 5.14E - 06、7.14E - 05 ~ 1.19E - 04、7.32E - 05 ~ 1.21E - 04 a⁻¹之间, 致癌重金属元素所产生的健康风险数量级为 10⁻⁶ ~ 10⁻⁴, 其中, Cr 的风险值最大, As 次之, 这 2 种重金属的人均年致癌风险均超过了国际辐射防护委员会 (ICRP) 所推荐的最大可接受水平 5.0 × 10⁻⁵ a⁻¹, Cd 的风险值远小于 Cr 和 As 这 2 种重金属元素, 相差 1 ~ 2 个

数量级, 其人均年致癌风险低于 ICRP 的推荐值, 但大于部分机构 (英国皇家协会) 所推荐的 1 × 10⁻⁶ a⁻¹ 的水平. 分段流域的致癌风险顺序为: 流域中游 > 流域下游 > 流域上游. 这主要是因为柳江流域中游集中分布有钢铁、汽车、化工等制造业, 工农业排放和交通污染均有可能增加河流中的重金属含量, 以 Cd 为例, 工业生产活动所排放的 Cd 可能经大气沉降和地表径流进入水体, 最终富集于沉积环

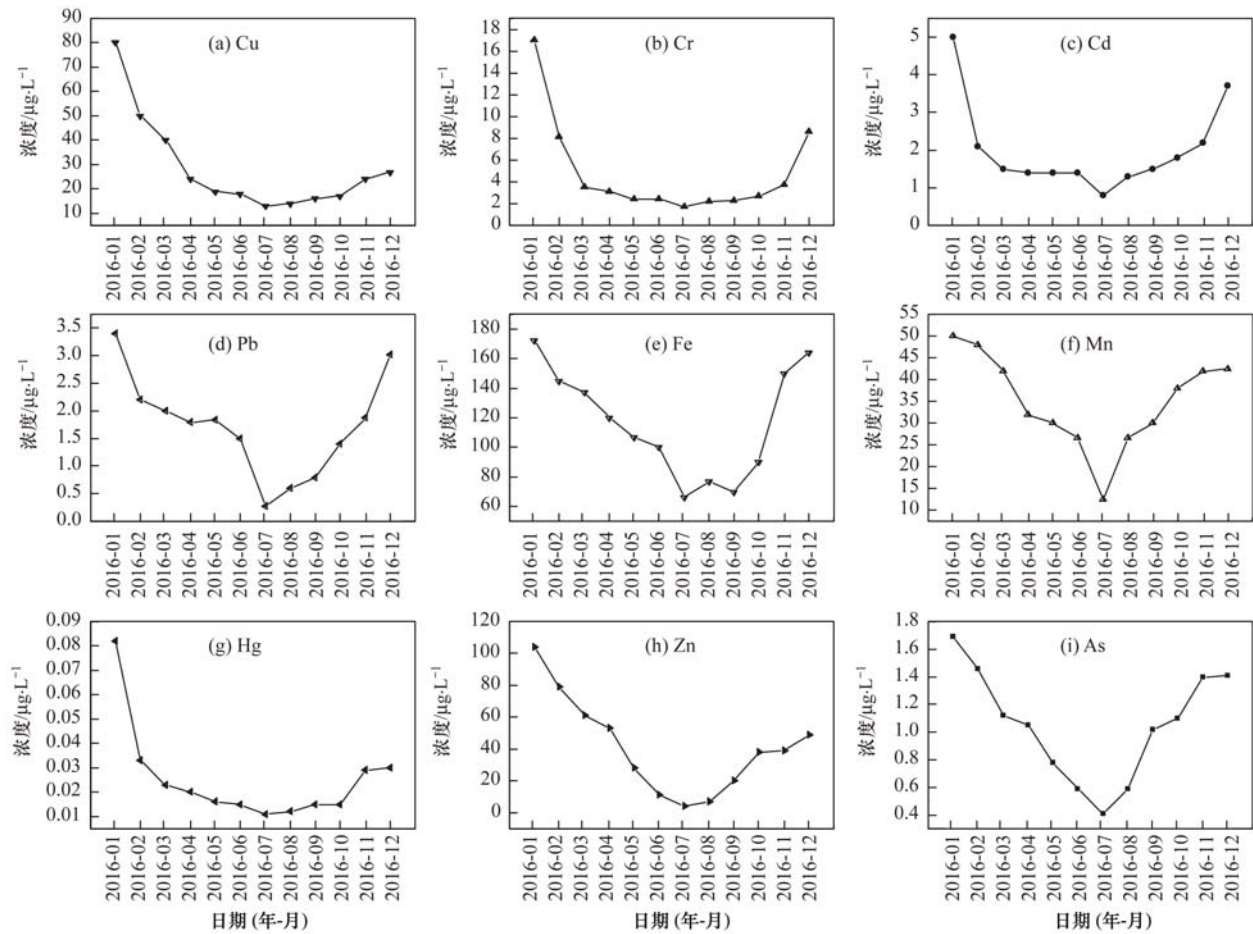


图3 柳江流域饮用水源地各重金属浓度月际动态变化

Fig. 3 Dynamic changes in the heavy metals concentrations in different months in the Liujiang River Basin

表5 柳江流域饮用水源地重金属污染物人均年致癌风险/a⁻¹

Table 5 Average annual carcinogenic risk caused by metal pollution of the drinking water sources in the towns of the Liujiang River Basin/a⁻¹

重金属	流域上游		流域中游		流域下游	
	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童
Cd	4.03E-06	5.14E-06	3.72E-06	4.75E-06	3.58E-06	4.56E-06
As	5.59E-05	7.14E-05	9.30E-05	1.19E-04	7.95E-05	1.01E-04
Cr	5.74E-05	7.32E-05	9.51E-05	1.21E-04	7.11E-05	9.08E-05
致癌总风险	1.17E-04	1.50E-04	1.92E-04	2.45E-04	1.54E-04	1.96E-04

表6 柳江流域饮用水源地重金属污染物人均年非致癌风险/a⁻¹

Table 6 Average annual non-carcinogenic risk caused by metal pollution of the drinking water sources in the towns of the Liujiang River Basin/a⁻¹

重金属	流域上游		流域中游		流域下游	
	成人	儿童	成人	儿童	成人	儿童
Pb	8.30E-10	1.06E-09	8.32E-10	1.06E-09	7.13E-10	9.10E-10
Hg	3.06E-11	3.91E-11	3.19E-11	4.08E-11	3.67E-11	4.68E-11
Zn	1.71E-11	2.18E-11	9.50E-12	1.12E-11	7.52E-11	9.60E-11
Cu	1.69E-09	2.16E-09	1.60E-09	2.04E-09	2.25E-09	2.87E-09
Fe	1.02E-10	1.31E-10	6.13E-11	7.82E-11	6.05E-10	7.72E-10
Mn	1.55E-11	1.98E-11	5.84E-11	7.45E-11	3.53E-12	4.51E-12
非致癌总风险	2.69E-09	3.43E-09	2.59E-09	3.30E-09	3.68E-09	4.70E-09

境中^[26]. 饮用水源地重金属致癌风险来源表现为: Cr > As > Cd, 这与文泽伟^[18]对龙江-柳江-西江流域

的水化学特征和重金属污染研究结果相一致. Cr 和 As 应当作为该研究区域优先控制管理的污染物质.

由表 6 可知, 由非致癌重金属元素所产生的健康风险数量级为 $10^{-12} \sim 10^{-9}$, 与重金属元素致癌风险相比, 其所占的比例不到 1%, 非致癌重金属所致的人均年致癌风险大小顺序为 $\text{Cu} > \text{Fe} > \text{Pb} > \text{Hg} > \text{Zn} > \text{Mn}$, 成人和儿童的总致癌风险值分别在 $3.53\text{E} - 12 \sim 2.25\text{E} - 09$ 和 $4.51\text{E} - 12 \sim 2.87\text{E} - 09$ 之间, 均远小于 $1 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1}$, 认为是可以接受的风险等级. 分段流域的非致癌风险水平顺序为: 流域下游 > 流域上游 > 流域中游. 健康总风险等于致癌物质和非致癌物质所产生的健康风险相加, 在本研究中, 致癌重金属元素所产生的健康风险值是非致癌重金属元素所产生的健康风险值的 $10^5 \sim 10^6$ 倍, 因此, 可以认为该研究区域饮用水源地的重金属健康风险主要来自于致癌重金属元素, 这与其他研究者的研究结果相一致^[27~30], 致癌风险的空间分布表明了该研究地区的健康风险格局.

由图 4 可以知道, 致癌重金属元素 Cr、As、Cd 通过饮水途径对人群健康所产生的危害应当引起重视. Cr 是柳江流域中游地段饮用水源产生致癌健康风险最大的重金属元素, Cr 污染主要来源于电镀、

制革、印染、金属加工等行业, 在本次研究中, Cr 的高风险值与柳州市地区工厂排污企业的分布有关, 柳江流域中游频繁的人类活动^[31], 如钢铁生产、化工制造、汽车配件生产等对柳江的水质产生较大的影响, 工业点源污染所造成的河水污染应当得到及时的处理, 加强该区域的环境管理迫在眉睫. 同时, 饮用水源地的管理和控制往往是根据常规水质指标与标准的对比而做决定, 这存在一定的弊端, 弱化了有毒有害因子对人群健康可能造成的影响. Pb 和 Cu 虽然在河水中检测到的浓度不大, 毒性也较小, 但其在研究区域水环境中的积累已经达到了需要警戒的程度, Cr、As 等重金属元素在河水中的检测量也较低, 部分时段甚至没有检测出, 但在经过健康风险评价之后, 其致癌风险值远超国际机构所推荐值, 成为主要风险来源物质. 因此, 科学合理地制定我国地表水环境质量标准阈值以及将饮用水源的健康风险评价与水质评价相结合, 更能准确地掌握饮用水的安全和质量, 及时了解饮用水水环境状况, 有助于相应污染物管理和控制政策的实施和制定.

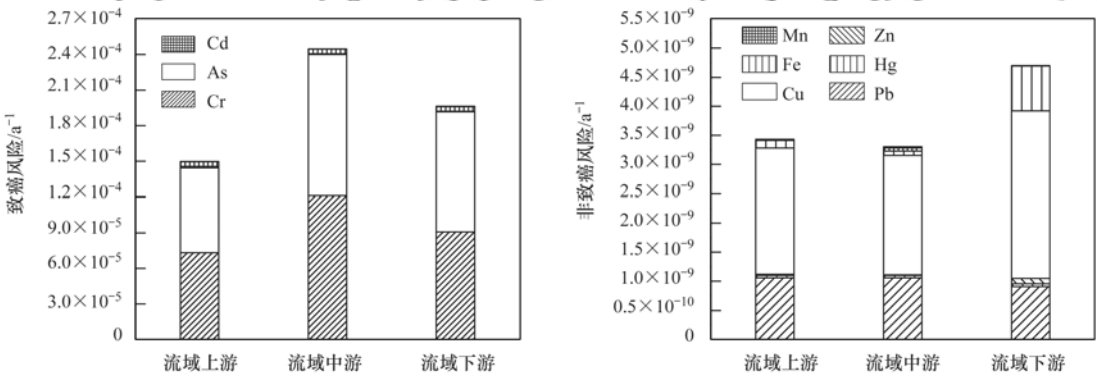


图 4 柳江流域饮用水源地分段流域成人人均年致癌风险与人均年非致癌风险柱状图

Fig. 4 Histogram of average annual carcinogenic risk and non-carcinogenic risk of adult people casual by metal pollution of drinking water sources of the towns in the different sublevels of the Liujiang River Basin

需要指出的是, 本研究所采用美国 EPA 所推荐的风险评价模型对柳江流域饮用水源地进行健康风险评价, 所引用的参数均为国际通用系数, 可能与研究区的实际情况并不完全一致^[32], 此次风险评价主要针对重金属元素等常规水质指标, 并未考虑三氯甲烷、四氯化碳等有机化学物质的风险作用, 也未涉及到微生物和放射性水质指标的影响^[33~35], 存在一定的局限性. 重金属元素污染物的暴露途径只考虑了通过饮水途径, 而未涉及通过皮肤接触、空气吸入, 食物摄入等其他途径^[36]. 另外, 通过饮水途径暴露的健康风险评价与人们的消

费习惯以及职业类型等因素相关^[37,38], 这需要更加复杂的评价方法, 并且要得到实际风险人群接触污染物的平均暴露剂量、个人体质、年龄、性别以及食品中的分配等具体指标. 由于本研究中主要采集柳江干流及其主要支流的水样, 但供居民实际饮用的是经过自来水厂处理后的水, 重金属浓度可能会低于柳江干流及其支流水体, 以上情况均有可能使风险评价的结果和结论出现偏差, 因此, 对于柳江流域饮用水源地中重金属元素污染物的健康风险评价的研究还只是初步阶段, 还需要在今后的工作中进一步探讨和完善.

4 结论

(1)研究区域内饮用水源地的常规水质指标基本上能达到国家地表水质量Ⅱ类标准,监测分析的9种重金属元素浓度总体较低,水源地水质尚可,但总磷的个别采样点的监测值超过Ⅳ水质标准,Hg的平均值为Ⅱ类水质标准。

(2)致癌重金属元素风险值大小表现为 $Cr > As > Cd$;非致癌重金属元素健康风险值大小顺序为 $Cu > Fe > Pb > Hg > Zn > Mn$,非致癌重金属元素健康风险均小于 $1 \times 10^{-6} a^{-1}$,认为是可以接受的风险水平;致癌重金属元素的健康风险值远大于非致癌重金属元素健康风险值,是非致癌重金属元素的 $10^5 \sim 10^6$ 倍; Cr 、 As 、 Cd 已经成为柳江流域饮用水源地水体的主要致癌因子,应当考虑将其列为优先风险决策和管理的重点对象。与成人相比,儿童是更加容易受到危害的群体,需加强对儿童饮用水安全的管理和监督。

(3)柳江流域饮用水区域间的健康风险大小顺序,致癌健康风险为:流域中游 > 流域下游 > 流域上游;非致癌健康风险为:流域下游 > 流域上游 > 流域中游。

(4)分段流域的水源地中,需要优先控制管理的重金属污染物对应如下,流域上游: As 、 Pb ,流域中游: Cr 、 As ,流域下游: Cr 。

参考文献:

- [1] Zhang C, Dong S H. A new water quality assessment model based on projection pursuit technique [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2009, **21** (Suppl 1): S154-S157.
- [2] 张智慧,李宝,梁仁君. 南四湖南阳湖区河口与湖心沉积物重金属形态对比研究[J]. *环境科学学报*, 2015, **35** (5): 1408-1416.
Zhang Z H, Li B, Liang R J. Comparison of sediment heavy metal fractions at estuary and center of Nanyang zone from Nansi Lake, China[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35** (5): 1408-1416.
- [3] 叶成权. 乡镇集中式饮用水源水质健康风险评价[J]. *北方环境*, 2012, **25** (3): 80-90, 86.
- [4] 辛成林,任景玲,张桂玲,等. 海南东部河流、河口及近岸水域颗粒态重金属的分布及污染状况[J]. *环境科学*, 2013, **34** (4): 1315-1323.
Xin C L, Ren J L, Zhang G L, *et al.* Distributions and pollution status of heavy metals in the suspended particles of the estuaries and coastal area of eastern Hainan[J]. *Environmental Science*, 2013, **34** (4): 1315-1323.
- [5] 贾英,方明,吴友军,等. 上海河流沉积物重金属的污染特征与潜在生态风险[J]. *中国环境科学*, 2013, **33** (1): 147-153.
Jia Y, Fang M, Wu Y J, *et al.* Pollution characteristics and potential ecological risk of heavy metals in river sediments of Shanghai[J]. *China Environmental Science*, 2013, **33** (1): 147-153.
- [6] Steinemann A. Rethinking human health impact assessment[J]. *Environmental Impact Assessment Review*, 2000, **20** (6): 627-645.
- [7] IARC. Arsenic and arsenic compounds[R]. IARC Monographs on the Evaluation of the Carcinogenic Risk of Chemicals to Humans, 1980. 39-141.
- [8] Borum D, Abernathy C. Human oral exposure to inorganic arsenic: arsenic exposure and health [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 1994, **16**: 21-30.
- [9] 钟雪梅,夏德尚,宋波,等. 广西土壤镉含量状况与风险评估研究进展[J]. *自然资源学报*, 2017, **32** (7): 1256-1270.
Zhong X M, Xia D S, Song B, *et al.* Review on soil cadmium study and risk assessment in Guangxi[J]. *Journal of Natural Resources*, 2017, **32** (7): 1256-1270.
- [10] 宋波,刘畅,陈同斌. 广西土壤和沉积物砷含量及污染分布特征[J]. *自然资源学报*, 2017, **32** (4): 654-668.
Song B, Liu C, Chen T B. Contents and pollution distribution characteristics of arsenic in soils and sediments in Guangxi Zhuang autonomous region[J]. *Journal of Natural Resources*, 2017, **32** (4): 654-668.
- [11] Covello V T, Merkhofer M W. Risk assessment methods: approaches for assessing health and environmental risks [M]. New York: Plenum Press, 1993. 1-34.
- [12] 符刚,曾强,赵亮,等. 基于GIS的天津市饮用水水质健康风险评价[J]. *环境科学*, 2015, **36** (12): 4553-4560.
Fu G, Zeng Q, Zhao L, *et al.* Health risk assessment of drinking water quality in Tianjin based on GIS [J]. *Environmental Science*, 2015, **36** (12): 4553-4560.
- [13] 王秋莲,张震,刘伟. 天津市饮用水源地水环境健康风险评价[J]. *环境科学与技术*, 2009, **32** (5): 187-190.
Wang Q L, Zhang Z, Liu W. Environmental health risk assessment of drinking water source in Tianjin [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **32** (5): 187-190.
- [14] 邹滨,曾永年,Zhan B F,等. 城市水环境健康风险评价[J]. *地理与地理信息科学*, 2009, **25** (2): 94-98.
Zou B, Zeng Y N, Zhan B F, *et al.* Spatial and temporal health risk assessment of water environment in urban area [J]. *Geography and Geo-Information Science*, 2009, **25** (2): 94-98.
- [15] 刘材材,项凌云,徐韧. 长江口水源地重金属含量趋势分析及风险评价[J]. *环境科学与技术*, 2016, **39** (S1): 393-397.
Liu C C, Xiang L Y, Xu R. Analysis and assessment on trend of heavy metals concentrations and risk in water resource area in Changjiang estuary [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **39** (S1): 393-397.
- [16] 于霞,安艳玲,吴起鑫. 赤水河流域表层沉积物重金属的污染特征及生态风险评价[J]. *环境科学学报*, 2015, **35** (5): 1400-1407.
Yu X, An Y L, Wu Q X. Pollution characteristics and ecological risk assessment of heavy metals in the sediments of Chishui River [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35** (5): 1400-1407.
- [17] 王若师,许秋瑾,张炯,等. 东江流域典型乡镇饮用水源地重金属污染健康风险评价[J]. *环境科学*, 2012, **33** (9): 3083-3088.
Wang R S, Xu Q J, Zhang X, *et al.* Health risk assessment of

- heavy metals in typical township water sources in Dongjiang river basin[J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(9): 3083-3088.
- [18] 文泽伟. 龙江-柳江-西江流域的水化学特征和重金属污染研究[D]. 广州: 华南理工大学, 2016. 9-10.
- Wei Z W. Study on hydrochemistry characteristics and heavy metal pollution in the Longjiang-Liujiang-Xijiang watershed[D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2016. 9-10.
- [19] 王进军, 刘占旗, 古晓娜, 等. 环境致癌物的健康风险评价方法[J]. 国外医学卫生学分册, 2009, **36**(1): 50-58.
- [20] US EPA. Available information on assessment exposure from pesticides in food[R]. Washington, DC: U. S. Environmental Protection Agency Office of Pesticide Programs, 2000.
- [21] 李丽娜. 上海市多介质环境中持久性毒害污染物的健康风险评价[D]. 上海: 华东师范大学, 2007. 126-129.
- Li L N. Health risk assesment of persistent toxic substances in different ambient medium of Shanghai [D]. Shanghai: East China Normal University, 2007. 126-129.
- [22] EPA/600/P-95/002Fa-c. Exposure factors handbook[S].
- [23] EPA/600/R-06/096F. Child-specific exposure factors handbook [S].
- [24] 孙超, 陈振楼, 张翠, 等. 上海市主要饮用水源地水重金属健康风险初步评价[J]. 环境科学研究, 2009, **22**(1): 60-65.
- Sun C, Chen Z L, Zhang C, *et al.* Health risk assessment of heavy metals in drinking water sources in Shanghai, China[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2009, **22**(1): 60-65.
- [25] 刘敬勇, 常向阳, 涂湘林. 矿山开发过程中重金属污染研究综述[J]. 矿产与地质, 2006, **20**(6): 645-650.
- [26] Wang J, Liu G J, Lu L L, *et al.* Geochemical normalization and assessment of heavy metals (Cu, Pb, Zn, and Ni) in sediments from the Huaihe river, Anhui, China[J]. *Catena*, 2015, **129**: 30-38.
- [27] 李祥平, 齐剑英, 陈永亨. 广州市主要饮用水源中重金属健康风险的初步评价[J]. 环境科学学报, 2011, **31**(3): 547-553.
- Li X P, Qi J Y, Chen Y H. Preliminary health risk assessment of heavy metals in the main drinking water sources of Guangzhou [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2011, **31**(3): 547-553.
- [28] 马海涛, 何金平, 杨晓灵, 等. 南宁市邕江水源重金属污染物健康风险初评[J]. 环境科学与技术, 2014, **37**(S1): 377-381.
- Ma H T, He J P, Yang X L, *et al.* Preliminary health risk assessment of heavy metals in Yongjiang River water sources of Nanning City[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **37**(S1): 377-381.
- [29] 李永丽, 刘静玲. 滦河流域不同时空水环境重金属污染健康风险评价[J]. 农业环境科学学报, 2009, **28**(6): 1177-1184.
- Li Y L, Liu J L. Health risk assessment on heavy metal pollution in the water environment of Luan river[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2009, **28**(6): 1177-1184.
- [30] 张永祥, 蔡德所, 吴攀高. 广西龙江河沉积物重金属污染特征及生态风险评价[J]. 中国农村水利水电, 2014, (6): 50-53.
- Zhang Y X, Cai D S, Wu P G. Assessment of the pollution characteristic of heavy metal in the sediment and ecological risk in Longjiang river of Guangxi [J]. *China Rural Water and Hydropower*, 2014, (6): 50-53.
- [31] 王媛婷, 涂艳. 山水城市工业园区规划模式探索——以柳州市洛维工业园区为例[J]. 规划师, 2010, **26**(5): 50-54.
- [32] 段小丽, 王宗爽, 王贝贝, 等. 我国北方某地区居民饮水暴露参数研究[J]. 环境科学研究, 2010, **23**(9): 1216-1220.
- Duan X L, Wang Z S, Wang B B, *et al.* Drinking water-related exposure factors in a typical area of northern China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **23**(9): 1216-1220.
- [33] Burnet J B, Penny C, Ogorzaly L, *et al.* Spatial and temporal distribution of *Cryptosporidium* and *Giardia* in a drinking water resource: implications for monitoring and risk assessment [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **472**: 1023-1035.
- [34] Balderrama-Carmona A P, Gortáres-Moroyoqui P, Álvarez-Valencia L H, *et al.* Quantitative microbial risk assessment of *Cryptosporidium* and *Giardia* in well water from a native community of Mexico[J]. *International Journal of Environmental Health Research*, 2015, **25**(5): 570-582.
- [35] 郑孝俊, 梁静静. 城市饮用水放射性污染风险评估[J]. 水利水电快报, 2010, **31**(8): 9-13.
- [36] 郝汉舟, 陈同斌, 吴基良, 等. 武汉市儿童多途径铅暴露风险评估[J]. 环境科学, 2012, **33**(6): 2075-2082.
- Hao H Z, Chen T B, Wu J L, *et al.* Risk assessment of lead exposure from different intake pathways for children in Wuhan city[J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(6): 2075-2082.
- [37] 高继军, 张力平, 黄圣彪, 等. 北京市饮用水源水重金属污染物健康风险的初步评价[J]. 环境科学, 2004, **25**(2): 47-50.
- Gao J J, Zhang L P, Huang S B, *et al.* Preliminary health risk assessment of heavy metals in drinking waters in Beijing[J]. *Environmental Science*, 2004, **25**(2): 47-50.
- [38] 李晓玲, 刘锐, 兰亚琼, 等. J市饮用水氯消毒副产物分析及其健康风险评价[J]. 环境科学, 2013, **34**(9): 3474-3479.
- Li X L, Liu R, Lan Y Q, *et al.* Study on chlorinated disinfection byproducts and the relevant health risk in tap water of J city[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(9): 3474-3479.

CONTENTS

Air Pollutant Emission Inventory from Iron and Steel Industry in the Beijing-Tianjin-Hebei Region and Its Impact on PM _{2.5}	DUAN Wen-jiao, LANG Jian-lei, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (1445)
Simulation of the Spatio-temporally Resolved PM _{2.5} Aerosol Mass Concentration over the Inland Plain of the Beijing-Tianjin-Hebei Region	HAO Jing, SUN Cheng, GUO Xing-yu, <i>et al.</i> (1455)
Effect of Relative Humidity on Particulate Matter Concentration and Visibility During Winter in Chengdu	LIU Fan, TAN Qin-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1466)
Vertical Distributional Characteristics of Inorganic Ions of PM _{2.5} at Mt. Huashan, Inland China	CAO Cong, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (1473)
Analysis of the Composition of Atmospheric Fine Particles (PM _{2.5}) Produced by Burning Fireworks	XIE Rui-jia, HOU Hong-xia, CHEN Yong-shan (1484)
Chemical Composition Characteristics of PM _{2.5} Emitted by Medium and Small Capacity Coal-fired Boilers in the Yangtze River Delta Region	XU Jian, HUANG Cheng, LI Li, <i>et al.</i> (1493)
Emission Factors of Heavy Metals in Size-resolved Particles Emitted from Residential Coal Combustion	YAN Qin, KONG Shao-fei, LIU Hai-biao, <i>et al.</i> (1502)
Distribution of Oxalate in Atmospheric Aerosols and the Related Influencing Factors in Qingdao, During Winter and Spring	ZHANG Shuai, SHI Jin-hui, YAO Xiao-hong, <i>et al.</i> (1512)
Concentrations and Solubility of Trace Elements in Atmospheric Precipitation in Qingdao	LI Qian, SHI Jin-hui, LI Peng-zhi, <i>et al.</i> (1520)
Occurrence and Gas-particle Partitioning of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Air of Liaodong Bay	ZHANG Yu-feng, SONG Yong-gang, TIAN Jin, <i>et al.</i> (1527)
Analysis of Sources, Pollution Characteristics, and Human Exposure to Atmospheric New Halogenated Flame Retardants in Selected Areas	LI Qi-lu, YANG Kong, LI Jun, <i>et al.</i> (1537)
Contamination Characterization and Human Exposure Levels to Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor and Outdoor Air in Industrial Park of Suzhou City	WANG Jun-xia, GU Hai-dong, ZHANG Zhan-en, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Air Pollution on the Cold Disease in Shanghai	YANG Si-xu, MA Yu-xia, ZHOU Jian-ding, <i>et al.</i> (1552)
Fluorescent Dissolved Organic Matter and Its Correlation with Water Quality in a Urban River: A Case Study of the Lujiang River in Beilun, Ningbo	CAO Chang-li, LIANG Meng-qi, HE Gui-ying, <i>et al.</i> (1560)
Relationship Between Landscape Pattern and Water Quality in the Ebinur Lake Region	CAO Can, ZHANG Fei, Ayinigeer·Yalikun, <i>et al.</i> (1568)
CH ₄ Fluxes During the Algal Bloom in the Pengxi River	QIN Yu, ZHANG Yu-yang, LI Zhe, <i>et al.</i> (1578)
Dynamic Variations and Sources of Nitrate During Dry Season in the Lijiang River	MIAO Ying, ZHANG Cheng, XIAO Qiong, <i>et al.</i> (1589)
Heavy Metal Pollution of the Drinking Water Sources in the Lujiang River Basin, and Related Health Risk Assessments	ZHANG Qing-hua, WEI Yong-zhu, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (1598)
Characteristics of Phosphorus Fractions and Phosphate Diffusion Fluxes of Sediments in Cascade Reservoirs of the Huangbai River	LIU Jia, LEI Dan, LI Qiong, <i>et al.</i> (1608)
Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Baiyangdian Lake	GAO Qiu-sheng, JIAO Li-xin, YANG Liu, <i>et al.</i> (1616)
Simulating the Fate of Typical Organochlorine Pesticides in the Multimedia Environment of the Pearl River Delta	GAO Zi-wen, XU Yue, YI Ru-han (1628)
Mechanisms and Efficiencies of Removal of PPCPs by Pilot River Water Bypass Treatment Process	LI Li, ZHU Bing, BAI Yao, <i>et al.</i> (1637)
Chlorination of Naproxen: Removal, Transformation and Risk Assessment	FAN Xin-xin, DU Er-deng, LI Jia-qi, <i>et al.</i> (1645)
Removing Typical Odorants in Drinking Water by Vacuum Ultraviolet Combined with Chlorine	SUN Xin, ZHANG Yi, SHI Lu-xiao, <i>et al.</i> (1654)
Degradation of Triclosan by Heat Activated Persulfate Oxidation	JIANG Meng-di, ZHANG Qing-yue, JI Yue-fei, <i>et al.</i> (1661)
Adsorption of Tetracycline on Simulated Suspended Particles in Water	XU Long-feng, WEI Qun-shan, LÜ Qiang, <i>et al.</i> (1668)
Characteristics and Performance of Embedded ANAMMOX Bacteria in Treating Saline Wastewater	SHAN Xiao-jing, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (1677)
Enhanced Nitrogen Removal of ANAMMOX Treating Saline Wastewater With Betaine Addition	YU De-shuang, WU Guo-dong, LI Jin, <i>et al.</i> (1688)
Pilot-scale Experiment on Enrichment of Nitrifying Activated Sludge and Its Application in Enhancing a Wastewater Biological Treatment System Against Ammonia Shocking Loads	SHENG Xiao-lin, CUI Can-can, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (1697)
Effect of Step Feed on Denitrifying Phosphorus and Nitrate Removal in a Modification of the Two Sludge A ² /O-BAF System	NAN Yan-bin, PENG Yong-zhen, ZENG Li-yun, <i>et al.</i> (1704)
Achieving Partial Nitrification in a Continuous-flow Aerobic Granular Sludge Reactor at Different Temperatures Through Ratio Control	LIANG Dong-bo, BIAN Wei, KAN Rui-zhe, <i>et al.</i> (1713)
Mechanism of Action of Activated Sludge Properties in Nitrogen Removal by Endogenous Denitrification Through an Intelligent Aeration-controlled A/O Process	XU Min-yang, HU Zhan-bo, ZHANG Sui-sheng, <i>et al.</i> (1720)
Effect of Temperature on the Performance and Microbial Community Structure in an Integrated Anaerobic Fluidized-bed Membrane Bioreactor Treating Benzothiazole Wastewater	LI Yue, HU Qi, GAO Da-wen (1731)
Removal of Antibiotics During In-situ Sludge Ozone-reduction Process	WANG Lu, BEN Wei-wei, LI Yan-gang, <i>et al.</i> (1739)
Effect of Zero Valent Iron on the Horizontal Gene Transfer of Tetracycline Resistance Genes During Anaerobic Sludge Digestion Process	YANG Fan, XU Wen-li, QIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1748)
Effects of Environmental Factors on the Synergy of Functional Bacteria in Completely Autotrophic Granular Sludge	CHEN Xi, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (1756)
Microbiological Characteristics of a Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process	ZHANG Qian, JI Fang-ying, XU Xuan (1763)
Aerobic Denitrification and Microbial Community Shift in SBR Bioaugmented with Strains YH01 and YH02	CHEN Hai-sheng, CAO Gang, ZHANG Di, <i>et al.</i> (1773)
Performance, Sludge Characteristics, and the Microbial Community Dynamics of Bulking Sludge Under Different Nitrogen and Phosphorus Imbalances	HE Xue-meng, DING Li-li, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1782)
Degradation Characteristics and Metabolic Pathway of a Pyrene-Degrading <i>Pseudomonas aeruginosa</i> Strain	LI Xiang, ZHANG Xue-ying, ZHOU Jun, <i>et al.</i> (1794)
Driving Factors of the Dynamics of Microbial Community in a Dam of Copper Mine Tailings	LI Cui, JING Ju-hui, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (1804)
Effects of Reclamation on Soil Nutrients and Microbial Activities in the Huixian Karst Wetland in Guilin	HUANG Ke-chao, SHEN Yu-yi, XU Guang-ping, <i>et al.</i> (1813)
Effects of the Farmland-to-Forest/Grassland Conversion Program on the Soil Bacterial Community in the Loess Hilly Region	CHEN Meng-li, ZENG Quan-chao, HUANG Yi-mei, <i>et al.</i> (1824)
Insight into the Mechanism of Feammox in the Surface Soils of a Riparian Zone	DING Bang-jing, LI Zheng-kui, ZHU Hong-jie, <i>et al.</i> (1833)
Soil Degradation-Associated Microbial Community Structure Changes in an Alpine Meadow Under Tibetan Pig Herding	ZHAN Peng-fei, XIAO De-rong, YAN Peng-fei, <i>et al.</i> (1840)
Characteristics of Iron Plaque and Its Heavy Metal Enrichment in Typical Mangrove Plants in Shenzhen Bay, China	SHEN Xiao-xue, LI Rui-li, CHAI Min-wei, <i>et al.</i> (1851)
Spatial Distribution of DDTs and PCBs in Wild Fish from Hong Kong Coastal Areas and Potential Human Health Risk Assessment	SU Yang, BAO Lian-jun, ZENG Eddy Y (1861)
Pollution Characteristics of PAHs in Soil from a Remote Mountain Wetland-Dajiu Lake, Shengnongjia	HU Tian-peng, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1872)
Migration and Transformation of Mercury in Unsubmerged Soil and Sediment at One Typical Forest Reservoir in Southwest China	SUN Tao, MA Ming, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (1880)
Accumulation of Cd and Its Risks in the Soils of the Xijiang River Drainage Basin in Guangxi	SONG Bo, YANG Zi-jie, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (1888)
Effects of Long-term Fertilization Regimes on As Accumulation in Upland Red Earth and the Crops Growing on It	ZHANG Rong, YU Guang-hui, LI Ya-qing (1901)
Effects of a Tribasic Amendment on Cadmium and Arsenic Accumulation and Translocation in Rice in a Field Experiment	GU Jiao-feng, ZHOU Hang, JIA Run-yu, <i>et al.</i> (1910)
Quantitative Relationship Between Paddy Soil Properties and Cadmium Content in Rice Grains	WANG Meng-meng, HE Meng-yuan, SU De-chun (1918)
Effect of Ca-bentonite on Cu and Zn Forms in Compost and Soil, and Their Absorption by Chinese Cabbage	ZHAO Jun-chao, WANG Quan, REN Xiu-na, <i>et al.</i> (1926)
Effects of Short-term Exogenous Nitrogen and Carbon Input on Soil Respiration Under Changing Precipitation Pattern	HE Yun-long, QI Yu-chun, PENG Qin, <i>et al.</i> (1934)
Effects of Simulated Precipitation Reduction on Soil Respiration in a Soybean-Winter Wheat Rotation Cropland	WANG Zhao-hui, CHEN Shu-tao, SUN Lu, <i>et al.</i> (1943)
Seasonal Variation in Nitric Oxide Emission from an Agricultural Headwater Ditch in the Hilly Purple Soil Area and the Factors Influencing Emission	TIAN Lin-lin, REN Guang-qian, ZHU Bo (1952)
Effects of Seasonal Asymmetric Warming on Soil CO ₂ Release in Karst Region	TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i> (1962)