

The Human Health Risk Assessment Based on Process Simulation and Uncertainty Analysis

Yue Pan, Xiankui Zeng*, Xinyu Gao, Jichun Wu, Dong Wang

School of Earth Sciences and Engineering, Nanjing University, Nanjing 210023, China

Received November 1, 2017

Accepted November 25, 2018

Abstract

Water resource is an important part of human living and production. With the modernization of cities, the problem of groundwater contamination is becoming more and more serious. It is outstanding to effectively assess the risk of groundwater contamination to human health. This paper proposes a human health risk assessment method based on the simulation of contaminant transport process and parameter uncertainty analysis. The method combines health risk assessment with groundwater contaminant transport processes and applies the TOUGH2 program to simulate the temporal and spatial distribution of contaminant in groundwater. In order to improve the accuracy of the assessment results, the influence of the uncertainty of the transport model on human health risk assessment is taken into account. And the key parameter (e.g., the permeability) of the transport model is inverted by Markov chain Monte Carlo simulation method. Based on a sandbox experiment, the human health risk exposed to a typical dense non-aqueous phase liquids contaminant tetrachloroethylene (PCE) is evaluated by considering the parameter uncertainty of the PCE transport model, which confirmed that the method can provide decision-making information for the management and prevention of contaminated sites.

Keywords: Human health risk, Dense non-aqueous phase liquids, Model parameter, Uncertainty

基于过程模拟与参数不确定性的人体健康风险评价

潘玥, 曾献奎*, 高鑫宇, 吴吉春, 王栋

南京大学地球科学与工程学院, 南京 210023, 中国

摘要: 水资源是人类生存与生产的重要组成部分, 随着城市的现代化发展, 地下水污染问题日益严峻, 有效评估地下水污染对人体健康的风险显得尤为重要。本文提出了一种基于污染物运移过程模拟及参数不确定性分析的人体健康风险评价方法。该方法将健康风险评价与地下水污染物运移过程相结合, 利用 TOUGH2 程序模拟有机污染物在地下水中的时空分布。为了提高评价结果的可靠性, 考虑污染物运移模拟模型的不确定性对人体健康风险评价的影响, 通过马尔科夫链蒙特卡洛模拟方法对模拟模型的关键参数 (如介质渗透率) 进行反演识别。基于一个室内砂箱实验, 选取典型重非水相污染物四氯乙烯 (PCE) 作为污染物对象, 并通过考虑 PCE 运移模拟模型的参数不确定性来评价人体健康风险, 证实了该方法能够为污染场地的管理与防治提供决策信息。

关键词: 人体健康风险, 重非水相流体 (DNAPL), 模型参数, 不确定性

1. 引言*

水是人类赖以生存的重要资源。随着社会经济的快速发展, 地下水污染已成为威胁生态系统与人体健康的重要环境问题。¹除了常规污染物重金属离

子、氮元素、氯元素外, 各种理化性质较为复杂的典型有机污染物逐渐引起社会的重视, 这一类有机污染物密度比水大且不溶于水, 又被称为重非水相流体 (DNAPL)。²由于这类污染物的理化性质比可溶污染物更复杂, 增加了人们对地下水污染监测及防治工作的难度, 为了控制地下水中 DNAPL 对人类健康的危害, 针对典型有机污染物 DNAPL 的

*Corresponding author: xiankuizeng@nju.edu.cn

Y. Pan, X. K. Zeng, X. Y. Gao, et al

健康风险评价已成为地下水环境管理的重要组成部分。

人体健康风险评价是指评价人体在潜在污染环境中受到的可能危害健康的影响概率。³ 评价内容包括识别潜在污染源, 预估人体所接触的污染物浓度, 以及量化暴露于污染的健康风险。常用的评价模型是美国环保署提出的 RAGS (risk assessment guidance for superfund) 模型, 评价过程可以分为四步: (1) 危险识别, (2) 剂量反应, (3) 暴露评估, (4) 风险表征。人体健康风险评价的重点在于准确计算污染物的浓度。⁴ 常规的污染物浓度获取办法是实地取样与实验室分析。⁵⁻⁶ 但事实上, 污染物对人体的影响是持续的, 随着时间的推移, 污染物浓度的时空分布会发生显著变化, 因此, 借助数值模拟技术利用实时动态变化的浓度值进行人体健康风险评价是十分有必要的。

由于地下水系统的复杂性与多变性, 污染物的运移过程受到诸多因素的影响, 如流速、含水层性质、污染物降解作用等。因此, 利用模拟模型描述污染物运移过程时, 模拟结果(如污染物浓度)通常会受到这些因素的影响而具有不确定性, 导致依据模拟结果进行人体健康风险评价时, 评价结果具有不确定性。本次研究通过室内砂箱 DNAPL 运移实验进行人体健康的风险评价, 运用 TOUGH2 程序模拟污染物的运移过程, 采用马尔科夫链蒙特卡洛(MCMC)方法分析了 DNAPL 运移模型关键参数(介质渗透率)的不确定性, 利用 DNAPL 饱和度观测数据进行参数反演获得其后验分布, 在考虑模型参数不确定性的基础上进行人体健康风险评价。

2. 研究方法

2.1. 人体健康风险评价

人体健康风险评价基于 RAGS 模型, 采用常规评价指标: 人体一生患癌症风险 (ELCR) 进行定量评价, 本次选取的风险阈值为 10^{-6} 。ELCR 是一种随时间变化的综合指标, 仅依赖于研究区内的环境敏感位置。本次的环境敏感位置由控制平面 x 表示, 与地下水流向相垂直。DNAPL 污染物为四氯乙烯 (PCE), ELCR 的表达式可以写作:

$$ELCR = CDI \times CPF \quad (1)$$

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

其中, CDI 表示慢性每日摄入量 ($mg/kg \cdot d$); CPF 表示潜在致癌因子代谢率; IR 表示每日饮水量 (L/d); BW 表示体重 (kg); ED 表示暴露时长

(y); EF 表示暴露频率 (d/y); AT 表示人的寿命 (d); C 表示地下水中的污染物浓度 (mg/L)。

2.2. DNAPL 运移模型

DNAPL 是一种与水不混溶的液体, 因此其运移问题可以理解为多相流动问题, 各相(如水相、气相、DNAPL 相)在地下水系统中的运移过程以达西定律为基础得到平衡控制方程:

$$\int_{V_n} \varphi \sum_{\beta} (S_{\beta} \rho_{\beta} X_{\beta}^{\kappa}) dV_n = \int_{\Gamma_n} \left[\sum_{\beta} -k \frac{k_{\beta r} \rho_{\beta}}{\mu_{\beta}} (\nabla p_{\beta} - \rho_{\beta} \mathbf{g}) \right] \cdot \mathbf{n} d\Gamma_n \quad (3) + \int_{V_n} q^{\kappa} dV_n$$

其中 t 表示时间 (s); φ 表示孔隙度; S_{β} 表示 β 相的饱和度; ρ_{β} 表示 β 相的密度 (kg/m^3); X_{β}^{κ} 表示 β 相中 κ 质所占的质量分数; V_n 表示流域; Γ_n 表示流域表面积 (m^2); k 表示绝对渗透率 (m^2); $k_{\beta r}$ 表示 β 相的相对渗透率 (m^2); μ_{β} 表示 β 相的动态粘滞系数 (cP); P_{β} 表示 β 相的流体压力 (Pa); \mathbf{n} 表示法向量; \mathbf{g} 表示重力加速度 (m/s^2); q^{κ} 代表单位体积内生成或消耗热量的速率。本次研究利用多相流模拟程序 TOUGH2 模拟 DNAPL 的运移过程。

2.3. 马尔科夫链蒙特卡洛模拟

针对一个非线性方程(如 DNAPL 运移方程) $M=f(\theta)$, 其观测数据可以表示为:

$$\mathbf{D} = f(\theta) + \varepsilon \quad (4)$$

$$p(\theta | \mathbf{D}) = \frac{p(\mathbf{D} | \theta) p(\theta)}{\int p(\mathbf{D} | \theta) p(\theta) d\theta} \quad (5)$$

其中 $p(\theta)$ 代表参数 θ 的先验分布密度; $p(\mathbf{D} | \theta)$ 代表参数的似然函数, 即模型参数为 θ 时, 模拟结果与观测数据 \mathbf{D} 之间的拟合程度。

马尔科夫链蒙特卡洛模拟的基本思路可以总结为: (1) 根据专家知识或经验, 设置模型参数 $\theta[\theta_1, \theta_2, \dots, \theta_d]$ 的先验分布, 如分布函数、分布范围等信息; (2) 定义似然函数来描述模型模拟值 $f(\theta)$ 与观测数据 \mathbf{D} 之间的拟合程度, 通常采用高斯似然函数; (3) 选择一种抽样算法在模型参数 θ 的先验分布范围内随机抽样, 通过构建平稳分布的马尔科夫链, 实现对目标函数 $p(\theta)$ 概率分布空间的充分搜索, 获得模型参数的后验概率分布 $p(\theta | \mathbf{D})$; (4) 根据获得的模型参数的后验概率分布, 输入模拟模型 f , 获得

模型输出的后验概率分布。本次研究步骤(1)中,需要反演识别的模型参数 θ 为介质渗透率,步骤(3)中,使用高效稳定的 DREAM 算法作为抽样算法。

3. 案例分析

使用的二维砂箱尺寸为长(x) 0.60m, 宽(y) 0.45m, 厚(z) 0.016m, 在砂箱内均匀填充粒径范围在 0.5mm~0.35mm 的石英砂, 在 $x=0$ 与 $x=0.6m$ 处设定水头边界, 用蠕动泵控制砂箱内水流流速, 使其稳定在 1m/d, 污染物注入点位于 $x=0.3m$, $y=0.4m$, $z=0.008m$, 如图 1 所示。

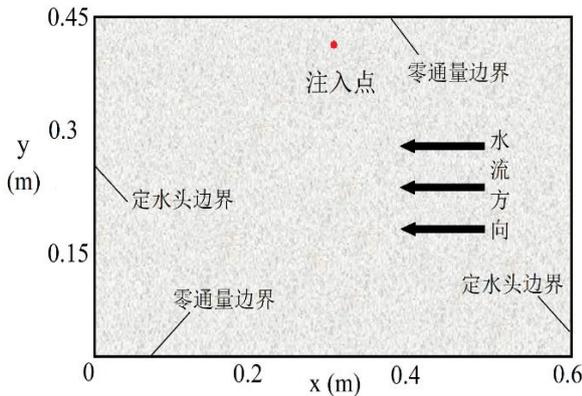


图 1 砂箱示意图

Fig.1. Schematic diagram of the sandbox

在模拟开始时刻, 恰好 PCE 停止注入, 砂箱中 PCE 分布如图 2, 此时 PCE 已经运移至砂箱底部并形成堆积相, 运移路径上存在 PCE 残余相。环境敏感面取靠近左边界的一侧的剖面。在 DNAPL 数值模拟过程中, 介质渗透率、孔隙度、DNAPL 进液压力倒数等参数均对 DNAPL 分布具有显著影响, 其

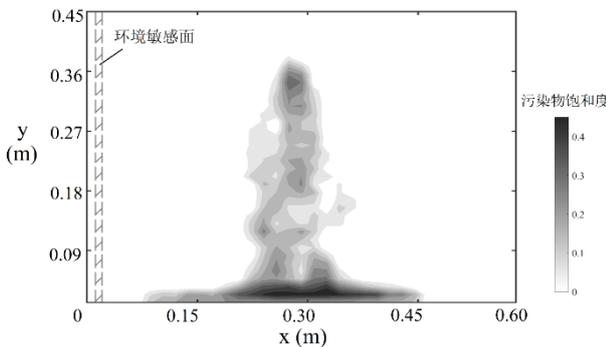


图 2 DNAPL 饱和度分布图

Fig.2. The saturation distribution of DNAPL

中介质渗透率的敏感性较高。⁸ 常规的模拟方法是采用石英砂介质的经验渗透率进行模拟, 但得到的结果具有一定的不确定性。本案例假设具有较高敏感性的石英砂介质渗透率是未知变量(k), 并以此为前提建立 PCE 运移数值模型。利用光透法监测污染物运移期间在砂箱中的饱和度分布情况, 得到数字图像, 并采用 Matlab R2014(a)软件编译程序处理数字图像, 得到砂箱内 $x=0.008m$ 剖面处 PCE 饱和度数值。⁷ 在整个砂箱内均匀选取 608 个观测点, 其中 x 方向上等距布设 32 列, y 方向上等距布设 32 列, y 方向上等距布设 19 行 (32×19), 观测时间选取污染物停止注入后的第 0 分钟、第 20 分钟、第 40 分钟三个时刻。

4. 结果分析与讨论

为对比参数不确定性对风险评价的影响, 对介质渗透率进行参数识别, 利用识别后的渗透率进行人体健康风险评价, 随后将渗透率设为固定的参考值再次进行风险评价, 并对比考虑与不考虑渗透率不确定性条件下的人体健康风险评价结果。

(1) 参数不确定性分析。利用 DREAM 算法对模型参数的概率空间进行搜索时, 设置三条平行的马尔可夫链, 每条链的长度设定为 25,000, 准备期 (burn-in period) 的长度设定为 10,000, 利用每条链余下长度 (15,000) 生成模型参数的后验分布, 最终获得 45,000 个参数后验样本, 其概率密度分布如图 3 所示。

从图中可以看出, 参数的分布得到明显收敛,

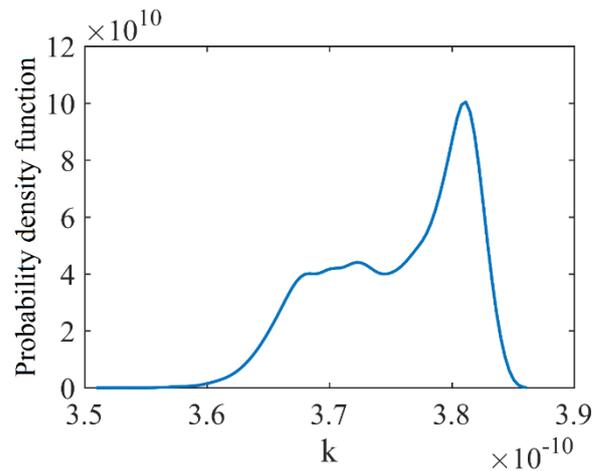


图 3 渗透率参数 k 的后验概率分布图

Fig.3. The probability density function of permeability

Y. Pan, X. K. Zeng, X. Y. Gao, et al

表明渗透率对于观测值（饱和度）具有较高的敏感性， k 的先验分布范围为 $[2.0 \times 10^{-10}, 6.0 \times 10^{-10}]$ ，识别得到的后验分布范围缩小至 $[3.51 \times 10^{-10}, 3.87 \times 10^{-10}]$ 。渗透率的后验分布显示了双峰分布的特征，表明了参数概率空间的复杂性。

(2) 参数不确定性对人体健康风险评价的影响。在后验参数样本的基础上，利用 RAGS 模型得到 ELCR 的频数分布。如图 4 所示，受渗透率后验分布的影响，ELCR 的分布同样表现出明显的多峰分布特征，结合模型参数的不确定性，这表明 ELCR 的概率空间非常复杂。为了对比参数不确定性对风险评价结果的影响，将参数 k 固定在经验值 ($k=1.33 \times 10^{-10}$)，⁷ 模拟得到 ELCR 的经验值 ($ELCR=1.357 \times 10^{-5}$)，在图中用黑色虚线表示，该值在 ELCR 分布中出现的概率较低。因此，将污染物运移模型的参数设定为确定值，忽略参数不确定性来进行人体健康风险评价是不准确的。

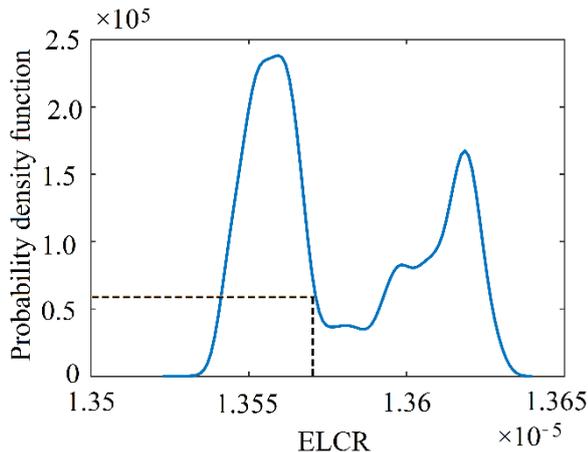


图 4 ELCR 概率分布图（黑色虚线表示 ELCR 经验值）

Fig.4. The probability density function of ELCR (the black dash represented the reference value of ELCR)

5. 结论

人体健康风险评价是污染场地修复的重要基础工作，为了使得评价结果更加真实可信，通常需要建立污染物的运移模型。本次研究评价了暴露于 DNAPL 的人体健康风险，并使用患癌风险指标 ELCR 量化评价结果。基于室内砂箱实验，通过贝叶斯参数不确定性分析方法，对比研究了 PCE 运移模型的参数不确定性对健康风险评价结果的影响。结果表明，用确定的模型参数值得到的人体健康风险评价结果是不可靠的，而基于贝叶斯不确定性分

析得到的风险评价结果可以为决策者提供更多的信息，具有更高的可信度。

致谢

感谢评审专家对论文提出宝贵修改意见。本研究受到中央高校基本科研业务费资助（0206-14380040）。

References

- J. Chen, H. Qian, H. Wu, et al, Assessment of arsenic and fluoride pollution in groundwater in Dawukou area, Northwest China, and the associated health risk for inhabitants. *Environ. Earth Sci.*, 76(8)(2017):314-328.
- M. L. Brewster, A. P. Annan, J. P. Greenhouse, et al, Observed Migration of a Controlled DNAPL Release by Geophysical Methods. *Groundwater*, 33(6)(1995):977-987.
- U. S. EPA, Risk Assessment Guidance for Superfund Volume I: Human Health Evaluation Manual (Part F, Supplemental Guidance for Inhalation Risk Assessment). In: U.S. EPA (Editor), Washington DC, 2009.
- U. S. EPA, Risk Assessment Guidance for Superfund (RAGS) Part A. In: U.S. EPA (Editor), Rep. EPA, WashingtonDC, 1989.
- H. Mishra, V. Yadav, S. Karmakar, et al, Quantification of Human Health Risk to MSW Landfill Leachate Contamination for Major Indian Cities, International Conference on Solid Waste Technology and Management. (2017).
- R. A. Fallahzadeh, M. Miri, M. Taghavi, A. Gholizadeh, et al, Spatial variation and probabilistic risk assessment of exposure to fluoride in drinking water. *Food Chem. Toxicol.*, 113(2018):314-321.
- M. Wu, Z. Cheng, J. F. Wu, Quantifying representative elementary volume of connectivity for translucent granular materials by light transmission microtomography. *J. Hydrol.*, 545(2017):12-27.
- 施小清, 吴吉春, 刘德朋等. 饱和介质中重非水相液体运移的数值模拟及敏感性分析, *南京大学学报(自然科学)*47(3)(2011)299-307.
- X. Q. Shi, J. C. Wu, D. P. Liu, et al, Numerical simulation of transportation of dense nonaqueous phase liquids in the subsurface environment. *J. Nanjing Univ.*, 47(3)(2011): 299-307.