

目次

基于时间序列分解的京津冀区域PM<sub>2.5</sub>和O<sub>3</sub>空间分布特征 .....姚青,丁净,杨旭,蔡子颖,韩素芹 (2487)

基于随机森林的北京城区臭氧敏感性分析 .....周红,王鸣,柴文轩,赵昕 (2497)

基于随机森林模型的四川盆地臭氧污染预测 .....杨晓彤,康平,王安怡,臧增亮,刘浪 (2507)

海口市臭氧浓度统计预报模型的构建与效果评估 .....符传博,林建兴,唐家翔,丹利 (2516)

京津冀地区2015~2020年臭氧浓度时空分布特征及其健康效益评估 .....高冉,李琴,车飞,张艳平,祖永刚,刘芬 (2525)

2022年北京市城区PM<sub>2.5</sub>水溶性离子含量及其变化特征 .....陈圆圆,崔迪,赵泽熙,常森,景宽,沈秀娥,刘保献 (2537)

郑州市冬春季PM<sub>2.5</sub>中金属元素污染特征、来源及健康风险评估 .....陶杰,闫慧姣,徐艺斐,荆海涛 (2548)

淄博市供暖前后PM<sub>2.5</sub>中多环芳烃及其衍生物污染特征、来源及健康风险 .....孙港立,吴丽萍,徐勃,高玉宗,赵雪艳,姬亚芹,杨文 (2558)

西安市采暖季过渡期高时间分辨率细颗粒物组分特征及来源解析 .....李萌津,张勇,张倩,田杰,李丽,刘卉昆,冉伟康,王启元 (2571)

天津冬季两个典型污染过程高浓度无机气溶胶成因及来源分析 .....卢苗苗,韩素芹,刘可欣,唐晓,孔磊,丁净,樊文雁,王自发 (2581)

基于空间尺度效应的山东省PM<sub>2.5</sub>浓度时空变化及空间分异地理探测 .....徐勇,韦梦新,邹滨,郭振东,李沈鑫 (2596)

我国典型化工行业VOCs排放特征及其对臭氧生成潜势 .....武婷,崔焱文,肖成德,翟增秀,韩萌 (2613)

廊坊秋季大气污染过程中VOCs二次气溶胶生成潜势及来源分析 .....张敬巧,刘铮,丁文文,朱瑶,曹婷,凌德印,王淑兰,王宏亮 (2622)

景观格局对河流水质影响的尺度效应Meta分析 .....王玉仓,杜晶晶,张禹,吴昊,胡敏韵,陈丁江 (2631)

白洋淀夏季汛期入淀河流水体溶解性有机物的光谱特征及来源 .....孟佳靖,婁红,陈哲,周石磊,底怡玲,武辰彬,王晨光,张家丰,崔建升 (2640)

北京市丰台区永定河以东浅层地下水水化学演变规律及成因分析 .....胡昱欣,周瑞静,宋炜,杨全合,王鑫茹 (2651)

庐庐断裂带(安徽段)浅层地下水水化学特征、控制因素及水质评价 .....刘海,魏伟,宋阳,徐洁,管政亭,黄健敏,赵国红 (2665)

农药施用对兴凯湖水中农药残留的影响及其风险评价 .....王蔚青,徐雄,刘权震,林利华,吕婧,王东红 (2678)

黄河兰州段河岸带土壤中微生物与耐药基因的赋存特征 .....韦程宸,魏枫沂,夏慧,黄魁 (2686)

基于多源数据的巢湖蓝藻水华时空分布及驱动因素分析 .....金晓龙,邓学良,戴睿,徐倩倩,吴月,范裕祥 (2694)

再生水构建水环境中沉水植物附着细菌群落特征 .....贺赞,李雪梅,李宏权,魏琳琳,姜春晖,姜大伟,李魁晚 (2707)

水位波动和植被恢复对三峡水库消落带土壤原核微生物群落结构的交互影响 .....梅渝,黄平,王鹏,朱凯 (2715)

银川市典型湖泊沉积物细菌群落结构及其对重金属的响应关系 .....蒙俊杰,刘双羽,邱小琼,周瑞娟 (2727)

热水解时间对污泥厌氧消化系统微生物群落结构影响分析 .....张含,张涵,王佳伟,高金华,文洋,李相昆,任征然 (2741)

市政污水中吗啡来源辨析 .....耶雪婷,赵悦彤,蒋冰,裴伟,李彦莹,谭冬芹,王德高 (2748)

溱沔河流域生态环境动态遥感评价 .....李艳翠,袁金国,刘博涵,郭豪 (2757)

黄河流域生态系统服务价值时空演化及影响因素 .....王奕洪,洪学莹 (2767)

基于贝叶斯网络的生态系统服务权衡协同关系强度及其空间格局优化:以汾河流域为例 .....蔡进,危小建,江平,梁玉琦 (2780)

贵州高原典型喀斯特县域生境质量时空演变及定量归因 .....李月,冯霞,吴路华,罗光杰,罗红芬 (2793)

2000~2021年黄土高原生态分区NEP时空变化及其驱动因子 .....周怡婷,严俊霞,刘菊,王璞 (2806)

基于SSP-RCP情景的黄土高原土地变化模拟及草原碳储量 .....崔霞,董燕,张露尹,王荣耀 (2817)

京津冀城市群建设用地扩张多情景模拟及其对生态系统碳储量的影响 .....武爱彬,陈辅国,赵艳霞,秦彦杰,刘欣,郭小平 (2828)

西南岩溶区土地利用变化对团聚体稳定性及其有机碳的影响 .....江可,贾亚男,杨琰,陈坚淇,禹朴家 (2840)

不同土地利用方式下土壤有机质分子组成变化的整合分析 .....黄世威,赵一锴,朱馨雨,刘贺雷,刘姣姣,陈稍,陈佳永,张阿凤 (2848)

基于改进麻雀搜索算法优化BP神经网络的土壤有机质空间分布预测 .....胡志瑞,赵万伏,宋根先,王芳,林妍敏 (2859)

不同有机物料施用对菜地磷累积和转化的影响 .....孙凯,崔玉涛,李顺晋,魏冰丽,王媛,杨宏博,王孝忠,张伟 (2871)

集约化柑橘种植抑制土壤磷循环微生物活性 .....周连昊,曾全超,梅唐英泽,汪明霞,谭文峰 (2881)

控释掺混肥对麦玉米轮作体系作物产量和温室气体排放的影响 .....高玮,王学霞,谢建治,陈延华,倪小会,王甲辰,董艳芳,李子双,曹兵 (2891)

生物炭对黄绵土中NO<sub>3</sub>-N运移过程影响及模拟 .....白一茹,刘旭,张钰涵,张睿媛,马艳,王幼奇 (2905)

中国农田土壤重金属污染分析与评价 .....杨雳,白宗旭,薄文浩,林静,杨佩佳,陈涛 (2913)

城市土壤和地表灰尘重金属污染研究进展与展望 .....王晓雨,刘恩峰,杨祥梦,王碧莲,林锦阔,颜梦霞,毕世杰 (2926)

场地重金属污染土壤固化及MICP技术研究进展 .....陈玥如,高文艳,陈虹任,薛生国,吴川 (2939)

黄河流域山东段近河道煤矿区土壤重金属污染特征及源解析 .....戴文婷,张晖,吴霞,钟鸣,段桂兰,董霖红,张培培,樊洪明 (2952)

拒马河流域河流沉积物与土壤重金属含量及风险评价 .....韩双宝,袁磊,张秋霞,郑焰,李甫成 (2962)

银川市黄河滩区土壤重金属污染特征、生态风险评估及来源解析 .....于路加,马海军,王翠平 (2971)

基于源导向和蒙特卡罗模型的广东省某城市土壤重金属健康风险评估 .....陈莲,邹子航,张培珍,王雨茜,王振江,林森,唐翠明,罗国庆,钟建武,李智毅,王圆 (2983)

西南典型碳酸盐岩高地地质背景区农田重金属化学形态、影响因素及回归模型 .....唐瑞玲,徐进力,刘彬,杜雪苗,顾雪,于林松,毕婧 (2995)

贵州省水田土壤-水稻Hg含量特征与安全种植区划 .....韦美溜,周浪,黄燕玲,庞瑞,王佛鹏,宋波 (3005)

柠檬酸辅助甜高粱对南方典型母质土壤的镉修复效应 .....刘梦宇,罗绪锋,辜娇峰,易轩韬,周航,曾鹏,廖柏寒 (3016)

改性酒糟生物炭对紫色土壤镉形态及水稻吸收镉的影响 .....肖乃川,王子芳,杨文娜,谢永红,代文才,高明 (3027)

生物炭对四环素和铜复合污染土壤生菜生长及污染物累积的影响 .....郑晨格,裴欢欢,张亚珊,李嘉欣,刘奋武,乔星星,秦俊梅 (3037)

基于Meta分析的蚯蚓堆肥对堆肥质量和重金属的影响效应 .....姜继韶,侯睿,崔慧林,闫广轩,刘栋 (3047)

微塑料对土壤N<sub>2</sub>O排放及氮素转化的影响研究进展 .....刘一戈,杨安琪,陈舒欣,牛奕奕,卢瑛,李博 (3059)

土地利用对洱海罗时江小流域土壤微塑料污染的影响 .....戴柳云,侯磊,王化,符立松,王艳霞,李晓琳,王万宾,梁启斌 (3069)

养殖海湾淤泥质海岸沉积物微塑料污染特征 .....宋可心,贺金成,李昌文,解思琦,刘宝瑛,黄伟,冯志华 (3078)

聚乙烯微塑料对盐渍化土壤微生物群落的影响 .....王志超,李哲,李嘉辰,屈忠义,胡文煊,李卫平 (3088)

鄱阳湖候鸟栖息地微塑料表面细菌群落结构特征与生态风险预测 .....俞锦丽,赵俊凯,罗思琦,景文慧,杨启武,刘淑丽 (3098)

粤闽浙沿海重点城市道路交通节能减排路径 .....徐艺诺,翁大维,王硕,胡喜生,王占永,张园园,张兰怡 (3107)

电动重卡替代柴油重卡的全生命周期碳减排效益分析 .....徐圆圆,龚德鸿,黄正光,杨浪 (3119)

## 市政污水中吗啡来源辨析

邵雪婷, 赵悦彤, 蒋冰, 裴伟, 李彦莹, 谭冬芹, 王德高\*

(大连海事大学环境科学与工程学院, 大连 116026)

**摘要:** 采用分析市政污水方法可以辨别吗啡合法或非法使用情况. 由于污水中吗啡来源复杂, 区分不同来源的贡献是吗啡使用调查的关键问题. 选择典型城市, 在 2022 年 10 月至 2023 年 3 月期间采集 61 个代表性污水处理厂的 262 份进水样品, 分析了包括吗啡、可待因、蒂巴因、罂粟碱、那可丁和单乙酰吗啡在内的 6 种生物碱的浓度, 同时结合罂粟壳中生物碱的含量, 应用比值法和正定矩阵因子分解(PMF)模型对污水中的生物碱进行源解析. 污水中共检出 5 种生物碱, 但海洛因的代谢产物单乙酰吗啡未检出. 其中, 吗啡和可待因的浓度明显高于那可丁、罂粟碱和蒂巴因. 通过构建两种比值, 即可待因/(吗啡+可待因)和那可丁/(那可丁+可待因), 能够很好地定性区别罂粟壳使用来源. PMF 的结果表明, 污水中吗啡主要来源于医用吗啡(44.9%)、罂粟壳药物(43.7%)和可待因(9.4%). 污水中吗啡来源具有显著月份变化趋势. 在新冠疫情和甲流暴发期间, 含有罂粟壳和可待因药物使用为主要来源, 而吗啡镇痛药物使用来源相对稳定. 清单分析与 PMF 源解析的结果具有一致性, 表明模型的可靠性, 同时也表明该城市吗啡主要是合法来源, 不存在滥用情况.

**关键词:** 污水; 吗啡; 比值法; 正定矩阵因子分解(PMF)模型; 罂粟壳

中图分类号: X131.2 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2024)05-2748-09 DOI: 10.13227/j.hjkk.202306005

## Source Apportionment of Morphine in Wastewater

SHAO Xue-ting, ZHAO Yue-tong, JIANG Bing, PEI Wei, LI Yan-ying, TAN Dong-qin, WANG De-gao\*

(College of Environmental Sciences and Engineering, Dalian Maritime University, Dalian 116026, China)

**Abstract:** It is a new approach to identify legal or illegal use of morphine through information on municipal wastewater. However, the sources of morphine in wastewater are complex, and distinguishing the contribution of different sources has become a key issue. A total of 262 influent samples from 61 representative wastewater treatment plants in a typical city were collected from October 2022 to March 2023. The concentrations of morphine, codeine, thebaine, papaverine, noscapine, and monoacetylmorphine were analyzed in wastewater and poppy straws. Combined with the proportion of alkaloids in poppy straws, the source analysis of alkaloids in wastewater was analyzed using the ratio method and positive matrix factorization model (PMF). Only five alkaloids were detected in wastewater, and monoacetylmorphine, a metabolite of heroin, was not detected. The concentrations of morphine and codeine were significantly higher than those of noscapine, papaverine, and thebaine. By constructing the ratios of codeine/(morphine + codeine) and noscapine/(noscapine + codeine), the source of poppy straw could be qualitatively distinguished. The PMF results showed that three sources of morphine for medical use, poppy straw, and codeine contributed 44.9%, 43.7%, and 9.4%, respectively. The different sources varied in these months due to the COVID-19 and influenza A outbreaks, in which the use of drugs containing poppy straws and codeine was the main source, whereas the use of morphine analgesics remained relatively stable. Inventory analysis further demonstrated the reliability of the source contributions from the PMF model, and morphine was not abused in this city.

**Key words:** wastewater; morphine; ratio; positive matrix factorization (PMF) model; poppy straw

吗啡是阿片中提炼出来的一种生物碱, 被广泛用于临床疼痛的治疗. 然而, 长期大量使用吗啡可能会导致生理和精神依赖性. 吗啡在我国既是一种麻醉药品, 也被刑法定为毒品, 因此调查我国吗啡使用情况非常重要. 污水流行病学是一种监测药物使用的新方法, 已广泛应用于药物使用和毒品滥用调查<sup>[1-5]</sup>. 通过分析市政污水中吗啡信息, 可以快速、客观和真实地调查区域人群吗啡使用规律. 但是污水中的吗啡来源十分复杂, 包括海洛因、可待因和吗啡这 3 种阿片类药物以及罂粟壳的使用, 都可以通过人体代谢产生吗啡进入到污水中<sup>[6]</sup>. 如何准确定量吗啡的合法和非法使用是污水分析面临的难题.

目前, 环境中源解析技术主要包括清单分析<sup>[7-9]</sup>、扩散模型<sup>[10]</sup>和受体模型<sup>[11]</sup>. 清单分析是通过管理部门调查吗啡以及相关含有吗啡药物使用的主

要数据, 结合区域人口数量, 估算区域人均使用量. 该方法可以从区域整体反映不同来源药物对吗啡数值的影响. 其次是扩散模型. 通过调查吗啡排放的主要单位, 如医院和制药企业的废水, 结合相关区域污水管道数据, 从源头逐级分析污水吗啡负荷, 辨析吗啡主要使用源对污水处理厂吗啡数据的影响, 适合源头明确的调查工作. 受体模型是来源解析中最常用的方法, 主要分为定性方法和定量方法. 定性方法有比值法<sup>[12]</sup>、特征化合物法和指纹谱图等<sup>[13]</sup>. 比值法具有简单易行的优点, 常用于定性分析<sup>[14]</sup>. 定量方法主要包括主成分分析<sup>[15]</sup>、非负约束因子模型<sup>[16]</sup>、化学质量平衡模型<sup>[17]</sup>以及正定矩阵

收稿日期: 2023-06-01; 修订日期: 2023-06-21

基金项目: 国家自然科学基金项目(41076042)

作者简介: 邵雪婷(1993-), 女, 博士研究生, 主要研究方向为污水流行病学, E-mail: xuetingshao@dlmu.edu.cn

\* 通信作者, E-mail: degaowang@dlmu.edu.cn

因子分解模型(PMF)<sup>[18-20]</sup>等。PMF方法不需要测量源成分谱,可利用约束条件解析各类源特征以及贡献率,在源解析中被广泛应用。与扩散模型相比,受体模型无需考虑吗啡在污水管道中传输、扩散、吸附和降解等复杂的化学和物理过程,一般通过源排放和受体浓度的化学成分分析推断各种源的浓度贡献率,是源识别的主流技术方法。

污水中的吗啡主要来源于医用吗啡代谢,可待因药物代谢,海洛因代谢以及罂粟壳药物<sup>[21]</sup>和食品<sup>[22, 23]</sup>非法添加的使用。根据污水中吗啡的潜在来源,选择和分析罂粟壳的生物碱吗啡、可待因、蒂巴因、罂粟碱、那可丁<sup>[24]</sup>以及海洛因的代谢产物单乙酰吗啡,结合比值法和PMF,分析不同源使用对污水中吗啡的贡献,识别并定量主要使用源,以期为制定吗啡科学管制措施提供基础数据。

## 1 材料与方 法

### 1.1 化学试剂

甲醇(HPLC ≥ 99.8%)购买自美国 Merck 公司;甲酸和乙酸购买自百灵威公司; Oasis HLB 固相萃取柱(60 mg, 3 mL)购买自美国 Waters 公司。蒂巴因、罂粟碱及那可丁购自天津阿尔塔公司。吗啡及其内标吗啡-D<sub>3</sub>、可待因及其内标可待因-D<sub>6</sub>、6-单乙酰吗啡及其内标6-单乙酰吗啡-D<sub>3</sub>购自美国 A-ChemTek 公司。可替宁及其内标可替宁-D<sub>3</sub>购买自美国 ChromaDex 和 Cerilliant 公司。

### 1.2 样品采集和前处理

本研究选择一个典型城市 61 个代表性污水处理厂。采样时间 2022 年 10 月至 2023 年 3 月。共采集了 262 份 24 h 混合进水样品。采样后运回实验室立即分析。

污水样品使用固相萃取(SPE)方法进行分析。污

水样品(50 mL)经过离心后用过滤膜去除固体和悬浮颗粒物,加入内标。然后样品加到预先活化的固相萃取柱中,待水样萃取完成后,使用真空泵抽干 5 min,再使用 4 mL 甲醇和 8 mL 的 5% 甲醇氨来洗脱萃取物质并收集洗脱液。用旋转蒸发器将洗脱液蒸至近干。甲醇水溶液(10% 甲醇)复溶至 250 μL,上机分析。

污水样品(40 mL)加入一定量的标准生物碱,充分混合后静置 12 h,样品离心和过滤,分别在水相和颗粒相中加入内标,水相样品使用 SPE 方法进行分析,颗粒相样品使用超声萃取方法进行分析。

罂粟壳样品使用研钵研磨成粉末后精确称量样品粉末 0.10 g 于锥形瓶中<sup>[25]</sup>。加入 20 mL 含 5% 乙酸的 20% 甲醇溶液。超声提取 30 min 后加入离心试管离心 10 min,吸取上清液,上机分析。

### 1.3 仪器分析方法

使用超高效液相色谱-三重四级杆串联质谱法(Triple Quad™ 4500, 美国 AB SCIEX 公司)用于样品中生物碱的定量分析。色谱柱温 40 °C;液相色谱流动相的水相 A 为 0.1% 甲酸水溶液,流动相 B 为甲醇;流速 0.4 mL·min<sup>-1</sup>,进样体积 3 μL。色谱柱为 Kinetex XB-C18 (2.1 mm × 100 mm, 2.6 μm)。质谱主要参数设置为电喷雾离子源(ESI+),多离子反应监测(MRM)模式;离子喷射电压(IS)5 500 V,离子源温度(TEM)500 °C;雾化气(GS1)压力(50 × 6.9) kPa,辅助加热气(GS2)压力(55 × 6.9) kPa,气帘气(CUR)(35 × 6.9) kPa,碰撞气(CAD)(9 × 6.9) kPa。具体质谱参数如表 1 所示。生物碱的颗粒相含量、水相浓度、颗粒物-水分配系数(K<sub>d</sub>)、方法检出限(MDL)和回收率如表 2 所示。生物碱在水相中浓度比例在 82%~95%,前处理方法满足分析的要求。

表 1 目标物质的质谱参数<sup>1)</sup>

Table 1 Mass spectra parameters of target compounds

化合物	母离子( <i>m/z</i> )	定性离子( <i>m/z</i> )	定量离子( <i>m/z</i> )	去簇电压/V	定性离子碰撞电压/V	定量离子碰撞电压/V
吗啡	286.1	201	165	135	36	49
可待因	300.2	215	165	140	35	62
蒂巴因	312.3	58	251	55	46	38
罂粟碱	340.2	202	171	108	33	46
那可丁	414.2	220	353	101	30	37
6-单乙酰吗啡	328.2	211	165	120	35	54
可替宁	177.1	98.1	80	80	33	30
可待因-D <sub>6</sub>	306.3	217.9	—	110	41	—
6-单乙酰吗啡-D <sub>3</sub>	331.2	165	—	65	96	—
吗啡-D <sub>3</sub>	289.3	201.2	—	135	34	—
可替宁-D <sub>3</sub>	180.3	80.1	—	100	33	—

1)“—”表示没有相关数据

表2 生物碱的水相浓度、颗粒物相含量、颗粒物-水分配系数( $K_d$ )、回收率和方法检出限(MDL)Table 2 Concentrations in water and solid phase, partition coefficients( $K_d$ ), recovery, and method detection limits of all alkaloids

物质	吗啡	可待因	6-单乙酰吗啡	蒂巴因	罂粟碱	那可丁
水相浓度 / $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	146	144	136	39	37	44
颗粒相含量 / $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	32	19	10	5	2	3
$K_d$ / $\text{L}\cdot\text{kg}^{-1}$	218	133	75	134	65	57
回收率/%	97	83	99	86	82	98
MDL / $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	0.50	0.66	0.42	0.22	0.10	0.14

#### 1.4 PMF模型原理与计算

在市政污水中吗啡等生物碱来源解析中,应用PMF计算是通过市政污水(受体)的生物碱数据进行分析,提取若干因子,利用特征化合物将因子识别为不同的源类,再通过多元线性回归计算不同因子(源类)对污水中吗啡样品的贡献。

PMF模型的基本原理是将浓度数据矩阵( $X$ )分解成因子贡献矩阵( $G$ )、因子成分矩阵( $F$ )和残差矩阵( $E$ ),计算公式如下:

$$X_{n\times m} = G_{n\times p} F_{p\times m} + E_{n\times m} \quad (1)$$

式中,  $n$  为样本个数,  $m$  为特征化合物个数,  $p$  为因子个数(即来源个数)。PMF模型对每个因子的载荷和得分做非负约束,即  $G \geq 0$ ,  $F \geq 0$ 。

PMF模型基于加权最小二乘法进行限定和迭代计算,使得目标函数  $Q$  实现最小化,从而获得最优源解析结果,计算公式如下:

$$Q = \sum_{a=1}^n \sum_{b=1}^m \left[ \frac{x_{ab} - \sum_{c=1}^p g_{ac} f_{cb}}{u_{ab}} \right]^2 \quad (2)$$

式中,  $x_{ab}$ 、 $g_{ac}$  和  $f_{cb}$  分别为  $X$ 、 $G$  和  $F$  矩阵中的因素,  $u_{ab}$  为不确定度。分析生物碱的不确定度决定了其在PMF模型中的权重,不确定度越低则其所占权重就越大。不确定度具体计算公式如下:

$$u_{ab} = \begin{cases} \frac{5}{6} \text{MDL}, & x_{ab} \leq \text{MDL} \\ \sqrt{(\text{EF} \times x_{ab})^2 + (0.5 \times \text{MDL})^2}, & x_{ab} > \text{MDL} \end{cases} \quad (3)$$

式中, EF 为生物碱的误差分数, MDL 为生物碱方法检出限。当生物碱浓度低于或等于其相应 MDL 时,其不确定度取 MDL 的 5/6, 而相应的生物碱浓度则以 1/2 的 MDL 替代。

本文利用美国 EPA 推荐的 PMF5.0 软件对采样期间的污水中生物碱的来源进行解析。源解析的结果既要符合模型计算要求也要符合实际情况。在 PMF 计算过程中,使用 2~7 个因子进行多次优化计算,最终在因子数量为 6 时,能合理解释来源类别并且解析残差均在 -3.0~3.0 之间,5 种生物碱总浓度的模型预测值与实测值很接近,所选择的主因子能

够充分解释原始数据,表明计算结果较为可靠。PMF 解析结果还需要符合实际情况要求,包括经过识别的源谱特征和相对应源贡献具有合理性。本研究通过源谱特征与实测结果进行对比、源贡献变化趋势以及清单分析结果比较 3 种方法用于评价模型结果合理性。

#### 1.5 吗啡使用量计算

根据污水中吗啡浓度,污水厂流量,代谢校正因子和服务人口数量计算人均吗啡使用量。服务人口数量可以使用尼古丁代谢产物可替宁计算。吗啡人均使用量的计算公式如下:

$$m_{\text{MOR}} = \frac{\rho_{\text{MOR}} \times f_{\text{MOR}} \times m_{\text{COT}}}{\rho_{\text{COT}}} \quad (4)$$

式中,  $m_{\text{MOR}}$  为吗啡人均使用量  $\text{mg}\cdot(\text{d}\cdot 1000 \text{人})^{-1}$ ,  $\rho_{\text{MOR}}$  为污水中吗啡浓度 ( $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ );  $\rho_{\text{COT}}$  为污水中可替宁浓度 ( $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ );  $m_{\text{COT}}$  为可替宁人均产生量,取值  $700 \text{mg}\cdot(\text{d}\cdot 1000 \text{人})^{-1}$ [7];  $f_{\text{MOR}}$  为吗啡的校正因子,取值 1.29[26]。

## 2 结果与讨论

### 2.1 污水中生物碱浓度

污水中吗啡、可待因、那可丁、罂粟碱和蒂巴因的检出率分别为 82.4%、72.1%、30.2%、17.6% 和 14.9%。海洛因的代谢产物单乙酰吗啡未检出,说明该地区的污水中吗啡没有来自海洛因的贡献。检出浓度由高到低依次为:吗啡>可待因>那可丁>蒂巴因>罂粟碱,对应的浓度均值分别为 34.4、19.0、0.450、0.440 和 0.330  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。污水中的吗啡和可待因浓度与我国城市污水中浓度水平相当[27-33],但是远低于欧美国家污水中的浓度[9,34,35],也表明了我国吗啡的使用量处于较低水平。

污水中生物碱的浓度随时间变化如图 1 所示。从 2022 年 10 月开始,吗啡浓度逐渐增加,2022 年 12 月达到最高峰,然后开始降低,2023 年 3 月又开始增加。中国疾病预防控制中心对全国哨点医院新冠和流感阳性率统计结果发现,2022 年 12 月和 2023 年 3 月中旬,我国新冠病毒和流感病毒阳性率超过 50%。受到新冠疫情和甲流的影响,2022 年 12 月和

2023年3月含有罂粟壳的药物使用量增加，使生物碱的检出率和浓度显著高于其他月份。

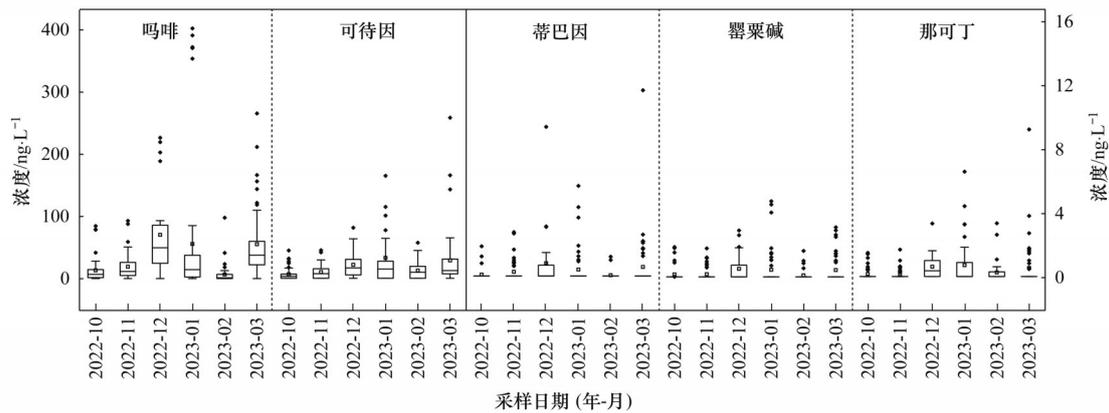


图1 2022年10月至2023年3月污水样品中5种生物碱浓度

Fig. 1 Concentrations of five alkaloids in wastewater collected from October 2022 to March 2023

## 2.2 比值法定性分析

比值法是环境污染源识别中简单有效的方法。污水中5种生物碱检出率和浓度有所差异，其中吗啡、可待因和那可丁检出率和浓度相对较高，因此围绕3种生物碱构建比值判据。

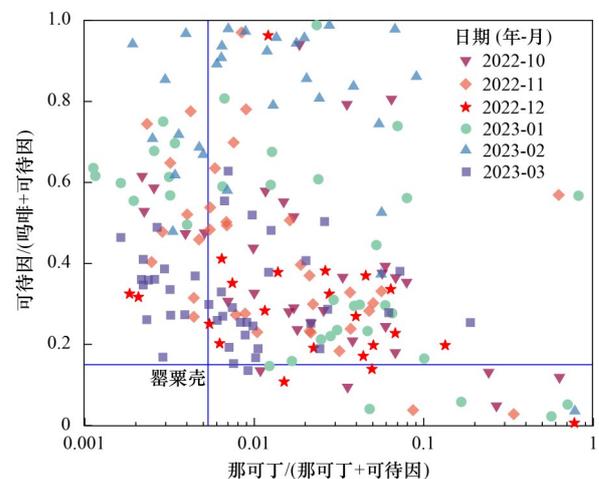
### 2.2.1 罂粟壳中生物碱浓度和比值

从污水中生物碱的时间变化趋势可以发现，含有罂粟壳药物使用是影响污水中吗啡浓度的重要因素。为了得到罂粟壳中相应的比值数据，对罂粟壳中的5种生物碱进行了分析。结果表明，罂粟壳中5种生物碱全部检出，其检出含量由高到低依次为：吗啡>可待因>蒂巴因>罂粟碱>那可丁，对应的含量均值分别为3.06、0.535、0.019 5、0.019 3和0.016 7  $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 。吗啡和可待因含量最高<sup>[25]</sup>，所占质量分数分别为84%和15%，而那可丁、罂粟碱和蒂巴因含量都小于1%。罂粟壳中可待因/(吗啡+可待因)值为0.15，那可丁/(那可丁+可待因)值为0.03，这些值可以作为判断罂粟壳来源的参考数值。

### 2.2.2 污水中生物碱比值

2022年10月至2023年3月污水中两种比值如图2所示。新冠疫情暴发期开始前2022年10月和11月点分布比较相似，既有来自镇痛药物单独使用，也有来自含有罂粟壳止咳药的使用。2022年12月新冠疫情和2023年3月甲流暴发期主要围绕在罂粟壳指纹比值附近，表明此期间污水中3种物质主要来源于含有罂粟壳药物使用。2023年1月样品可以分为两部分，一部分围绕罂粟壳指纹区域，说明疫情影响仍在继续，另一部分样品则远离罂粟壳指纹区域，说明部分人群已经康复。2023年2月的大部分样品都远离罂粟壳指纹区域，表明新冠疫情放缓，止咳药物使用减少。通过污水中指纹比值的时间变化趋势可以发现，含有罂粟壳的药物使用对污水中吗啡的影响较大。

啡的影响较大。



横竖线交叉点区域为罂粟壳指纹区

图2 2022年10月至2023年3月污水样品中可待因/(吗啡+可待因)和那可丁/(那可丁+可待因)值分布

Fig. 2 Values of codeine/(morphine + codeine) and noscapine/(noscapine + codeine) in poppy straw and wastewater collected from October 2022 to March 2023

## 2.3 PMF定量分析

### 2.3.1 因子载荷和浓度贡献

图3表示不同生物碱对6类因子浓度贡献和贡献率。根据每个因子的特征组成，对6类因子进行来源识别。因子1中全部生物碱都有贡献，这5种生物碱是罂粟壳的特征成分<sup>[21,36]</sup>，可以归为罂粟壳使用源。因子2中以可待因为主，吗啡也有一定贡献。这两种物质都是可待因的主要代谢产物，可以归为可待因药物使用源。可待因药物是强效中枢性镇咳药<sup>[37]</sup>。因子3以吗啡为主，可以归为吗啡药物使用源。吗啡药物主要用于中重度疼痛镇痛，如手术、严重创伤、烧伤和晚期癌症。因子4以罂粟碱为主。罂粟碱作为一种非特异性的平滑肌松弛药，主要用于治疗脑血栓、肺栓塞、肢端

动脉痉挛症及动脉栓塞性疼痛.因此,因子4可以归为罂粟碱药物使用源.因子5以那可丁为主,可以归为那可丁药物使用源.那可丁主要作为镇咳和平喘药在临床中广泛使用<sup>[38]</sup>.因子6以蒂巴因为主,可以归为蒂巴因源.与那可丁和罂粟碱不同,由于蒂巴因具有强烈的惊厥毒性而未被应用于临床,没有单独的药物使用来源,主要作为合成多种阿片药物的中间体使用,因此市政污水中蒂巴因可能来源制药企业生产排放或者含有罂粟壳药物使用<sup>[39]</sup>.

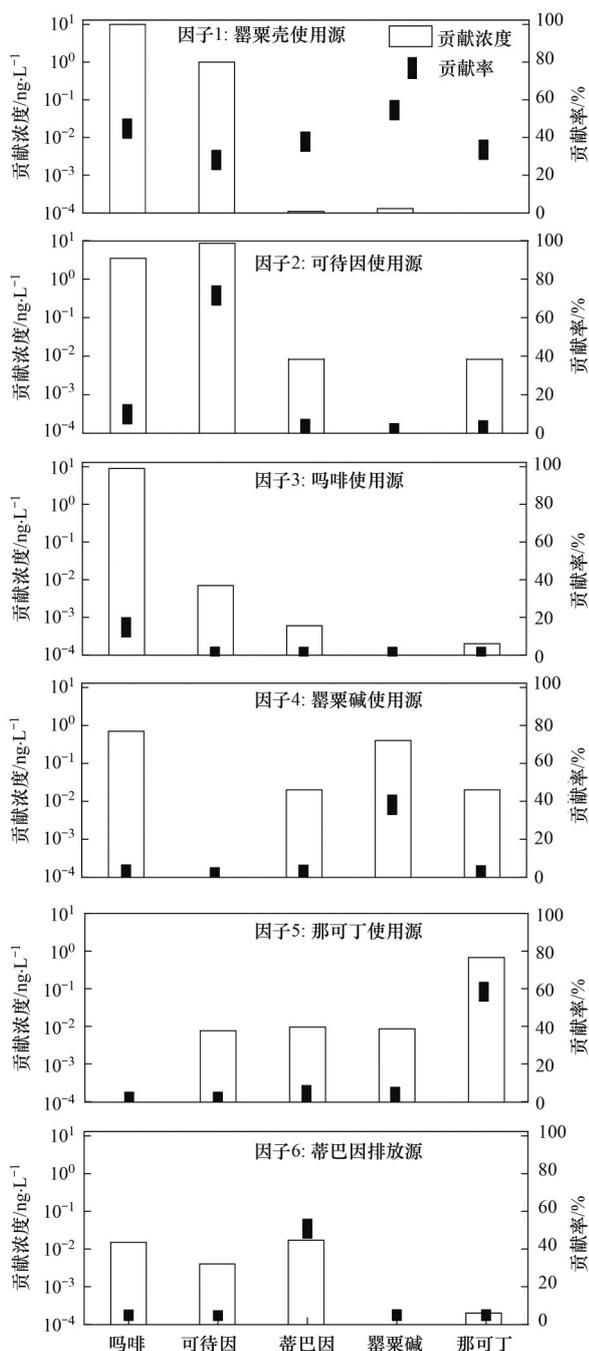


图3 5种生物碱对6个因子贡献浓度和贡献率

Fig. 3 Percent of five alkaloids load on six factors and contribution to the concentrations in wastewater

### 2.3.2 源贡献时间变化趋势

PMF得到的6个源对每种生物碱的贡献率如图4所示.污水中吗啡主要有3个来源,最主要来源是吗啡药物(44.9%)和罂粟壳(43.7%)的使用,而可待因的贡献率较低(9.4%).可待因的主要来源是本身可待因的使用(71.5%),罂粟壳贡献率较低(27.5%).另外浓度较低的3种生物碱主要来源于罂粟壳和本身药物的使用或者排放,罂粟壳贡献率在27.5%~53.3%波动.总体上,污水中的5种生物碱主要来源于罂粟壳的使用(38.6%),其次是吗啡(32.1%)和可待因(22.1%)使用,其余3种物质贡献率低于4%.

污水中吗啡来源贡献具有显著月份变化趋势,如图5所示.2022年12月新冠疫情和2023年3月甲型流感暴发时间段内,罂粟壳和可待因镇咳药物为主要来源,吗啡药物使用贡献率最低为25%和27%.而未集中发生疫情的时间,医用吗啡贡献率相对较高在31%~45%之间波动.特别是2022年10月,疫情暴发前贡献率最高.定性和定量的源解析结构都表明,罂粟壳使用是市政污水中吗啡的重要来源.

### 2.3.3 污水中不同来源吗啡浓度变化趋势

污水中3个主要来源的吗啡浓度变化时间趋势如图6所示.罂粟壳来源的吗啡在污水中浓度呈现出先增加后减少然后增加的趋势.受到新冠疫情和甲流的影响,2022年12月和2023年3月罂粟壳来源吗啡浓度均值分别为 $43.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $29.4 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ ,显著高于其他月份.可待因来源吗啡也表现出类似的规律,主要原因是在此期间罂粟壳和可待因作为治疗咳嗽的药物<sup>[40]</sup>被大量使用.而来自镇痛药物吗啡的使用表现出较稳定的趋势,12月和3月浓度与其他月份之间不存在显著差异性( $P > 0.05$ ),说明吗啡作为镇痛药物使用不受新冠和甲流影响.污水中不同来源吗啡的浓度时间变化趋势进一步证明模型计算的合理性.

### 2.3.4 吗啡主要来源使用量变化趋势

根据PMF解析的3个主要来源计算人均使用量结果如图7所示.罂粟壳使用源吗啡整体呈现先增高后降低再增高的趋势.2022年10月和11月均值为 $3.05 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ 和 $4.50 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ ,新冠疫情发生的2022年12月和2023年1月显著增加到 $27.7 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ 和 $9.08 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ ,新冠疫情逐渐消退,2023年2月均值降为 $0.240 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ .甲流暴发的3月又增加为 $11.4 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ .

可待因使用来源的吗啡也呈现出罂粟壳来源类类似的波动趋势.2022年10月和11月均值为 $0.86 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ 和 $1.26 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ ,新冠疫

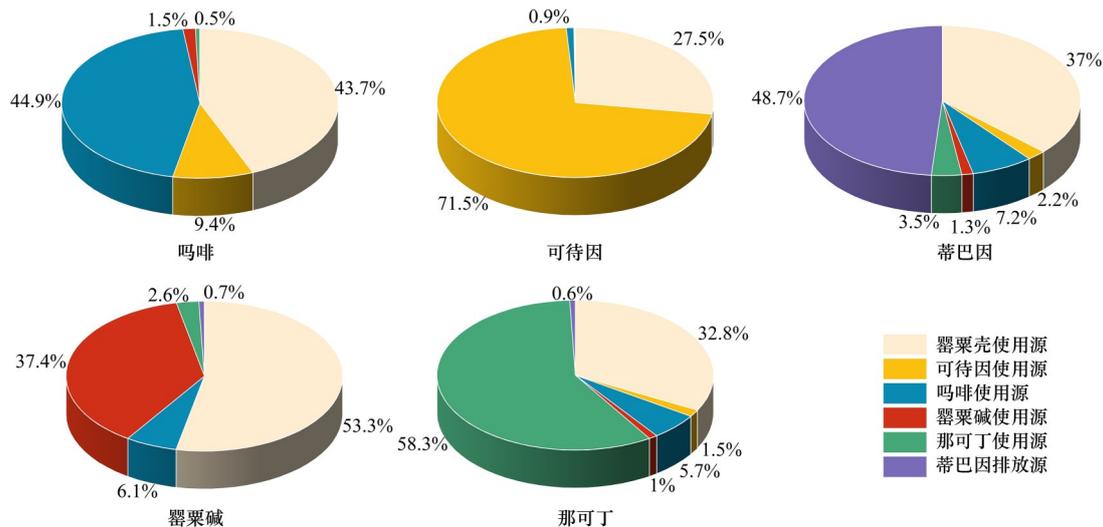


图 4 污水中不同来源对 5 种生物碱贡献率  
Fig. 4 Source contribution on five alkaloids in wastewater

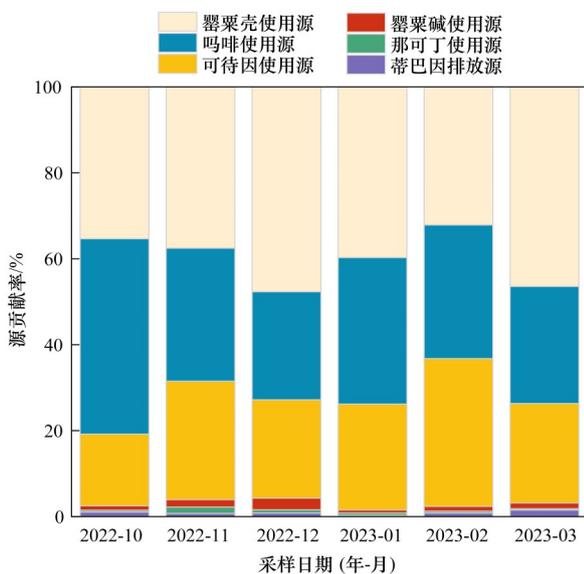


图 5 污水中 6 种来源贡献的时间变化趋势  
Fig. 5 Trend of relative contribution from six sources

情发生的 2022 年 12 月和 2023 年 1 月增加到  $2.21 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$  和  $2.26 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ , 2023 年 2 月均值降为  $1.71 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ , 3 月又升高为  $1.74 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ . 两种来源的吗啡波动规律主要原因为罂粟壳和可待因主要作为镇咳药物在疫情发生期间被大量使用.

医学镇痛吗啡的人均使用量在采样期间保持稳定, 没有统计学意义上的显著差异 ( $P > 0.05$ ), 人均使用量中位数范围为  $1.65 \sim 4.35 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ , 总体上中位数为  $3.15 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ .

总体来看, 3 种来源的吗啡的使用量还是低于世界平均使用水平 [ $384.9 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ ]<sup>[41]</sup>. 国外污水中吗啡主要来自医用吗啡的使用和海洛因的滥用<sup>[42,43]</sup>, 可待因来源贡献率较低<sup>[44]</sup>. 因为添加罂粟壳

的中成药的普遍使用<sup>[45]</sup>, 我国吗啡来源与国外吗啡来源存在差异.

### 2.3.5 吗啡使用清单分析

为了进一步验证 PMF 识别不同来源吗啡的可靠性, 对 3 种主要来源的吗啡进行清单分析. 2021 年国际麻醉药管制委员会 (INCB) 报告<sup>[46]</sup> 中国医用吗啡年使用总量为 2 003 kg, 根据 14 亿人口估算, 医用吗啡人均使用量为  $3.92 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ . 该计算结果与污水中医用吗啡使用量  $3.15 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$  基本一致.

2021 年全国可待因使用量 4 971 kg, 按照可待因 6% 代谢为吗啡计算<sup>[26]</sup>, 可待因来源吗啡使用量为  $0.584 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ , 也与疫情前两个月可待因来源吗啡使用量  $0.86 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$  和  $1.26 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$  相当.

2021 年我国合法种植罂粟壳折算吗啡当量为 8 402 kg, 用于生产可待因等生物碱的量为 5 525 kg<sup>[46]</sup>, 剩余吗啡 2 877 kg 用于生产镇咳药物, 由此计算来自罂粟壳源的吗啡人均使用量约为  $5.63 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$ , 与疫情前两个月罂粟壳来源吗啡使用量  $3.05 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$  和  $4.50 \text{ mg} \cdot (\text{d} \cdot 1000 \text{ 人})^{-1}$  接近. 因此, 根据清单分析可以发现, 吗啡 3 个来源使用量与污水解析结果基本一致, 再次证明了源解析结果的可靠性, 同时也表明该城市吗啡来源清晰, 不存在滥用现象.

## 3 结论

(1) 通过分析污水和罂粟壳中的吗啡类生物碱, 构建可待因/(吗啡+可待因)和那可丁/(那可丁+可待因)值, 能够定性区分污水中吗啡来源趋势变化

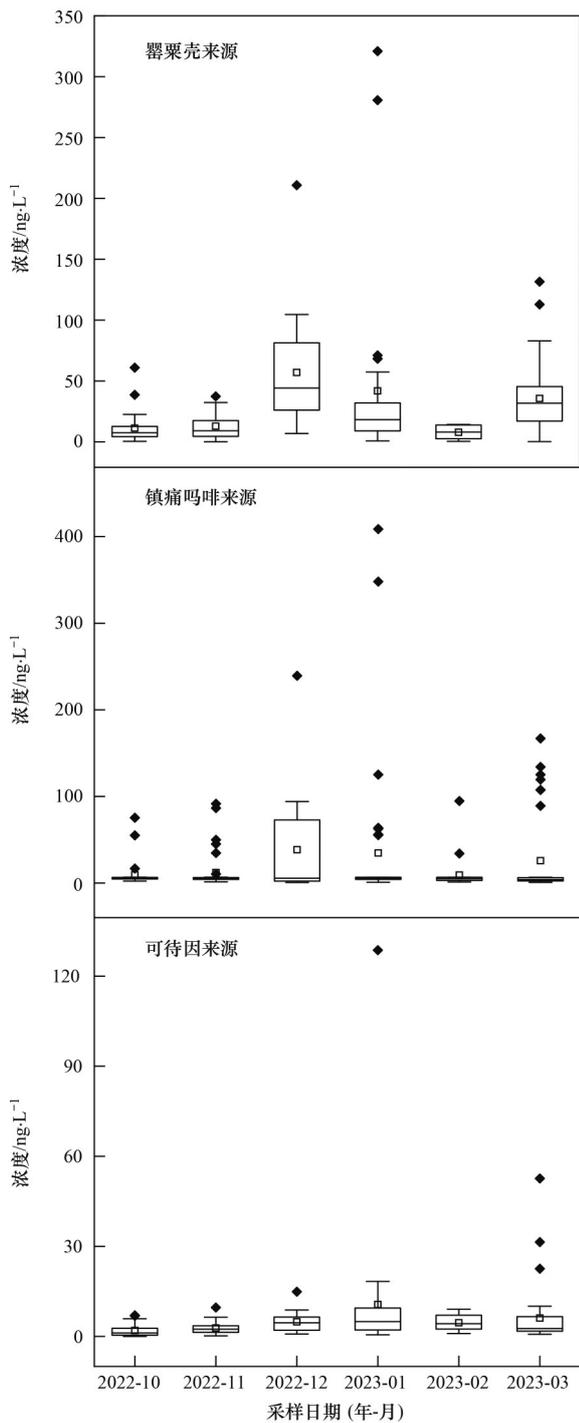


图 6 污水中罂粟壳、镇痛吗啡和可待因来源的吗啡在污水中浓度变化趋势

Fig. 6 Trend of morphine concentrations from pappy straw, morphine analgesics, and codeine sources

规律.

(2) PMF 定量分析结果表明, 城市污水中吗啡主要来源为吗啡处方药和罂粟壳, 可待因代谢贡献较低. 污水中吗啡浓度有明显时间变化趋势, 新冠疫情和甲流暴发期, 含有罂粟壳和可待因镇咳药物使用导致污水中吗啡浓度增加, 而作为镇痛药物使用的吗啡则不受疫情影响, 在污水中保持相对稳定.

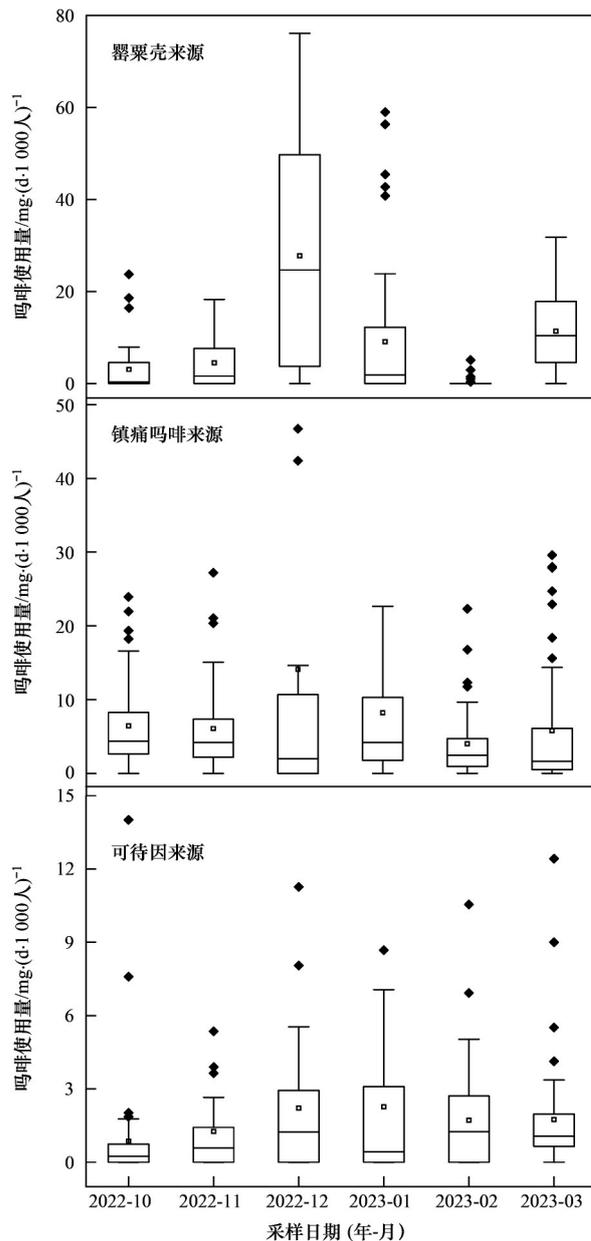


图 7 污水中罂粟壳、镇痛吗啡和可待因来源的吗啡使用量变化趋势

Fig. 7 Trend of morphine consumption from pappy straw, morphine analgesics, and codeine sources

(3) 清单分析结果与 PMF 分析基本保持一致, 进一步证明了源解析结果的可靠性, 也表明该地区吗啡主要为合法使用, 不存在非法滥用现象.

致谢: 感谢山东省济宁市公安局刑事技术科学研究所杨崇俊警官对本研究的支持.

参考文献:

[ 1 ] Wang D G, Dong Q Q, Du J, *et al.* Using Monte Carlo simulation to assess variability and uncertainty of tobacco consumption in a city by sewage epidemiology[J]. *BMJ Open*, 2016, 6(2), doi: 10.1136/bmjopen-2015-010583.

[ 2 ] Zheng Q D, Lin J G, Pei W, *et al.* Estimating nicotine consumption in eight cities using sewage epidemiology based on ammonia nitrogen equivalent population [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 590-591: 226-232.

- [ 3 ] Xiao Y, Shao X T, Tan D Q, *et al.* Assessing the trend of diabetes mellitus by analyzing metformin as a biomarker in wastewater [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **688**: 281-287.
- [ 4 ] Shao X T, Liu Y S, Tan D Q, *et al.* Methamphetamine use in typical Chinese cities evaluated by wastewater-based epidemiology [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2020, **27** (8): 8157-8165.
- [ 5 ] Shao X T, Zhao Y T, Jiang B, *et al.* Evaluation of three chronic diseases by selected biomarkers in wastewater [J]. *ACS ES&T Water*, 2023, **3**(4): 943-953.
- [ 6 ] Liu S Y, Yu W J, Wang Y R, *et al.* Tracing consumption patterns of stimulants, opioids, and ketamine in China by wastewater-based epidemiology [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2021, **28**(13): 16754-16766.
- [ 7 ] 刘晓, 胡京南, 王红梅, 等. 基于多源数据融合的河南省建材行业排放清单[J]. *环境科学*, 2023, **44**(4): 1924-1932.  
Liu X, Hu J N, Wang H M, *et al.* Emission inventory of building material industry in Henan Province based on multi-source data integration [J]. *Environmental Science*, 2023, **44**(4): 1924-1932.
- [ 8 ] 徐小凡, 王宝庆, 吴俊成, 等. 港口自有移动源大气污染物排放清单[J]. *环境科学*, 2023, **44**(3): 1357-1367.  
Xu X F, Wang B Q, Wu J C, *et al.* Port-owned mobile source air pollutant emission inventory [J]. *Environmental Science*, 2023, **44** (3): 1357-1367.
- [ 9 ] Rice J, Kannan A M, Castrignanò E, *et al.* Wastewater-based epidemiology combined with local prescription analysis as a tool for temporal monitoring of drugs trends-A UK perspective [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **735**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.139433.
- [ 10 ] 任秀龙, 胡伟, 吴春苗, 等. 华北南部重污染城市周边区域二次气溶胶的化学特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2022, **43** (3): 1159-1169.  
Ren X L, Hu W, Wu C M, *et al.* Chemical characteristics and sources of atmospheric aerosols in the surrounding district of a heavily polluted city in the southern part of north China [J]. *Environmental Science*, 2022, **43**(3): 1159-1169.
- [ 11 ] Chen H Y, Teng Y G, Li J, *et al.* Source apportionment of trace metals in river sediments: a comparison of three methods [J]. *Environmental Pollution*, 2016, **211**: 28-37.
- [ 12 ] 王鸣, 陈文泰, 陆思华, 等. 我国典型城市环境大气挥发性有机物特征比值[J]. *环境科学*, 2018, **39**(10): 4393-4399.  
Wang M, Chen W T, Lu S H, *et al.* Ratios of volatile organic compounds in ambient air of various cities of China [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(10): 4393-4399.
- [ 13 ] 田福林, 陈景文, 敖江婷. 受体模型应用于典型持久性有毒物质的来源解析研究进展[J]. *环境化学*, 2009, **28**(3): 319-327.  
Tian F L, Chen J W, Ao J T. Research progress on source apportionment of typical persistent toxic substances based on receptor models [J]. *Environmental Science*, 2009, **28** (3) : 319-327.
- [ 14 ] 王德高, 杨萌, 贾宏亮, 等. 原油及油制品中多环芳烃化学指纹的分布规律研究[J]. *环境污染与防治*, 2008, **30** (11): 62-65.  
Wang D G, Yang M, Jia H L, *et al.* Chemical fingerprinting of polycyclic aromatic hydrocarbons in crude oil and petroleum product samples [J]. *Environmental Pollution and Control*, 2018, **30**(11): 62-65.
- [ 15 ] 曹渺, 郭昌胜, 张恒, 等. 黄河流域入海口典型区域有机磷酸酯分布特征和风险评估[J]. *环境科学*, 2023, **44**(3): 1378-1386.  
Cao M, Guo C S, Zhang H, *et al.* Occurrence distribution and risk assessment of organophosphate esters in a typical area of the estuary in the Yellow River basin [J]. *Environmental Science*, 2023, **44** (3): 1378-1386.
- [ 16 ] Tian F L, Chen J W, Qiao X L, *et al.* Sources and seasonal variation of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in Dalian, China: factor analysis with non-negative constraints combined with local source fingerprints [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(17): 2747-2753.
- [ 17 ] 周敏. 上海大气PM<sub>2.5</sub>来源解析对比: 基于在线数据运用3种受体模型[J]. *环境科学*, 2020, **41**(5): 1997-2005.  
Zhou M. Comparison of three receptor models for source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Shanghai: using hourly resolved PM<sub>2.5</sub> chemical composition data [J]. *Environmental Science*, 2020, **41** (5): 1997-2005.
- [ 18 ] 陈明, 王琳玲, 曹柳, 等. 基于PMF模型的某铅锌冶炼城市降尘重金属污染评价及来源解析[J]. *环境科学*, 2023, **44**(6): 3450-3462.  
Chen M, Wang L L, Cao L, *et al.* pollution assessment and source analysis of heavy metals in atmospheric deposition in a lead-zinc smelting city based on PMF model [J]. *Environmental Science*, 2023, **44**(6): 3450-3462.
- [ 19 ] 高越, 吕童, 张蕴凯, 等. PMF和RF模型联用的土壤重金属污染源解析与污染评价: 以西北某典型工业园区为例[J]. *环境科学*, 2023, **44**(6): 3488-3499.  
Gao Y, Lü T, Zhang Y K, *et al.* Source apportionment and pollution assessment of soil heavy metal pollution using PMF and RF model: a case study of a typical industrial park in northwest China [J]. *Environmental Science*, 2023, **44**(6): 3488-3499.
- [ 20 ] Wang D G, Tian F L, Yang M, *et al.* Application of positive matrix factorization to identify potential sources of PAHs in soil of Dalian, China [J]. *Environmental Pollution*, 2009, **157**(5): 1559-1564.
- [ 21 ] 庞晓星, 麻风华, 王清华, 等. UPLC法测定强力枇杷露中吗啡、可待因和罂粟碱的含量[J]. *中医药信息*, 2011, **28**(1): 35-38.
- [ 22 ] 刘敏敏, 谢小霞, 陈俏, 等. 液相色谱-质谱联用法(HPLC-MS/MS)快速测定凉茶中的5种罂粟壳类生物碱[J]. *食品工业科技*, 2021, **42**(23): 266-272.  
Liu M M, Xie X X, Chen Q, *et al.* Rapid determination of five alkaloids in poppy shell in Herbal tea by HPLC-MS/MS [J]. *Science and Technology of Food Industry*, 2021, **42** (23) : 266-272.
- [ 23 ] 李兴根, 乔勇升, 陈伟, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法快速测定火锅底料中的5种罂粟壳生物碱残留[J]. *分析测试学报*, 2018, **37**(4): 446-451.  
Li X G, Qiao Y S, Chen W, *et al.* Rapid determination of five alkaloids of poppy husk in hot pot soup by ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Journal of Instrumental Analysis*, 2018, **37**(4): 446-451.
- [ 24 ] Gümüřçü A, Arslan N, Sarihan E O. Evaluation of selected poppy (*Papaver somniferum* L.) lines by their morphine and other alkaloids contents [J]. *European Food Research and Technology*, 2008, **226**(5): 1213-1220.
- [ 25 ] 张晓萍, 石晓峰, 张虹艳, 等. 罂粟壳的HPLC指纹图谱建立及其5个成分的含量测定[J]. *中国药房*, 2021, **32**(22): 2755-2760.  
Zhang X P, Shi X F, Zhang H Y, *et al.* Establishment of HPLC fingerprint and content determination of 5 components in papaveris pericarpium [J]. *China Pharmacy*, 2021, **32**(22): 2755-2760.
- [ 26 ] Khan U, Nicell J A. Refined sewer epidemiology mass balances

- and their application to heroin, cocaine and ecstasy [J]. *Environment International*, 2011, **37**(7): 1236-1252.
- [27] Du P, Zhou Z L, Bai Y, *et al.* Estimating heroin abuse in major Chinese cities through wastewater-based epidemiology [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **605-606**: 158-165.
- [28] Zhao J, Lu J J, Zhao H J, *et al.* Illicit drugs and their metabolites in urban wastewater: Analysis, occurrence and consumption in Xinjiang, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, **852**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2022.158457.
- [29] Zhao J, Lu J J, Zhao H J, *et al.* Analysis, occurrence, and consumption of substances with abuse potential in Xinjiang, China, from 2021 to 2022 [J]. *Science of the Total Environment*, 2023, **889**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2023.164310.
- [30] Wang J Y, Qi L K, Hou C Z, *et al.* Automatic analytical approach for the determination of 12 illicit drugs and nicotine metabolites in wastewater using on-line SPE-UHPLC-MS/MS [J]. *Journal of Pharmaceutical Analysis*, 2021, **11**(6): 739-745.
- [31] Du P, Thai P K, Bai Y, *et al.* Monitoring consumption of methadone and heroin in major Chinese cities by wastewater-based epidemiology [J]. *Drug and Alcohol Dependence*, 2019, **205**, doi: 10.1016/j.drugalcdep.2019.06.034.
- [32] Jin H B, Yang D, Hao Y B, *et al.* Estimation of the psychoactive substances consumption within 12 wastewater treatment plants service areas in a certain city of Guangxi, China applying wastewater-based epidemiology [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **778**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.146370.
- [33] Wang H B, Xu B Y, Yang L, *et al.* Consumption of common illicit drugs in twenty-one cities in southwest China through wastewater analysis [J]. *Science of the Total Environment*, 2022, **851**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2022.158105.
- [34] Bishop N, Jones-Lepp T, Margets M, *et al.* Wastewater-based epidemiology pilot study to examine drug use in the Western United States [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **745**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140697.
- [35] Gushgari A J, Venkatesan A K, Chen J, *et al.* Long-term tracking of opioid consumption in two United States cities using wastewater-based epidemiology approach [J]. *Water Research*, 2019, **161**: 171-180.
- [36] 张明童, 刘东升, 李冬华, 等. 罂粟壳与蜜罂粟壳水煎液中5个生物碱类成分的对比研究 [J]. *中药材*, 2021, **44**(9): 2079-2084.
- Zhang M T, Liu D S, Li D H, *et al.* Comparative study of five alkaloids contents between the water decoction of papaveris pericarpium and honey-stir-baked papaveris pericarpium [J]. *Journal of Chinese Medicinal Materials*, 2021, **44**(9): 2079-2084.
- [37] 刘文炜, 高玉琼, 刘建华, 等. RP-HPLC法同时测定哮喘片中吗啡、盐酸麻黄碱、磷酸可待因的含量 [J]. *药物分析杂志*, 2009, **29**(5): 731-734.
- Liu W W, Gao Y Q, Liu J H, *et al.* RP- HPLC simultaneous determination of morphine, ephedrine hydrochloride and codeine phosphate in Xiaochuan tablets [J]. *Chinese Journal of Pharmaceutical Analysis*, 2009, **29**(5): 731-734.
- [38] 孙素杰. 那可丁片含量均匀度测定方法的研究 [J]. *药物分析杂志*, 1997, **17**(2): 96-97.
- Sun S J. A study on the determination content uniformity of noscapine tablets [J]. *Chinese Journal of Pharmaceutical Analysis*, 1997, **17**(2): 96-97.
- [39] 左文松, 杨凯歌, 刘继华. 液相色谱-质谱联用法测定复方甘草片中可待因和蒂巴因的含量 [J]. *中国处方药*, 2022, **20**(3): 38-39.
- Zuo W S, Yang K G, Liu J H. Determination of codeine and thebaine in compound licoricetablen by LC-MS/MS [J]. *Journal of China Prescription Drug*, 2022, **20**(3): 38-39.
- [40] 卢森华, 黎强, 梁爽, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法同时测定强力枇杷露中5种罂粟壳生物碱含量 [J]. *中国中医药信息杂志*, 2019, **26**(12): 62-66.
- Lu S H, Li Q, Liang S, *et al.* Simultaneous determination of five alkaloids from opium poppy shell in Qiangli Pipa Syrup by UPLC-MS/MS [J]. *Chinese Journal of Information on Traditional Chinese Medicine*, 2019, **26**(12): 62-66.
- [41] Zarei S, Salimi Y, Repo E, *et al.* A global systematic review and meta-analysis on illicit drug consumption rate through wastewater-based epidemiology [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2020, **27**(29): 36037-36051.
- [42] Gushgari A J, Driver E M, Steele J C, *et al.* Tracking narcotics consumption at a Southwestern U. S. university campus by wastewater-based epidemiology [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, **359**: 437-444.
- [43] Bijlsma L, Botero-Coy A M, Rincón R J, *et al.* Estimation of illicit drug use in the main cities of Colombia by means of urban wastewater analysis [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **565**: 984-993.
- [44] Asimakopoulos A G, Kannan K. Neuropsychiatric pharmaceuticals and illicit drugs in wastewater treatment plants: a review [J]. *Environmental Chemistry*, 2016, **13**(4): 541-576.
- [45] 陈楠. 服用含罂粟壳药物尿液中阿片类物质的检测 [J]. *中国药物依赖性杂志*, 2003, **12**(4): 313, 320.
- Chen N. To test morphine component in urine from the opium poppy species of medicine [J]. *Chinese Journal of Drug Dependence*, 2003, **12**(4): 313, 320.
- [46] INCB, Report of the international narcotics control board for 2022 [R]. Vienna: United Nations, 2022.

## CONTENTS

Spatial Distribution Characteristics of PM <sub>2.5</sub> and O <sub>3</sub> in Beijing-Tianjin-Hebei Region Based on Time Series Decomposition	YAO Qing, DING Jing, YANG Xu, <i>et al.</i> (2487)
Ozone Sensitivity Analysis in Urban Beijing Based on Random Forest	ZHOU Hong, WANG Ming, CHAI Wen-xuan, <i>et al.</i> (2497)
Prediction of Ozone Pollution in Sichuan Basin Based on Random Forest Model	YANG Xiao-tong, KANG Ping, WANG An-yi, <i>et al.</i> (2507)
Establishment and Effective Evaluation of Haikou Ozone Concentration Statistical Prediction Model	FU Chuan-bo, LIN Jian-xing, TANG Jia-xiang, <i>et al.</i> (2516)
Spatial and Temporal Distribution Characteristics of Ozone Concentration and Health Benefit Assessment in the Beijing-Tianjin-Hebei Region from 2015 to 2020	GAO Ran, LI Qin, CHE Fei, <i>et al.</i> (2525)
Water-soluble Inorganic Ion Content of PM <sub>2.5</sub> and Its Change Characteristics in Urban Area of Beijing in 2022	CHEN Yuan-yuan, CUI Di, ZHAO Ze-xi, <i>et al.</i> (2537)
Pollution Characteristics, Source, and Health Risk Assessment of Metal Elements in PM <sub>2.5</sub> Between Winter and Spring in Zhengzhou	TAO Jie, YAN Hui-jiao, XU Yi-fei, <i>et al.</i> (2548)
Characteristics, Sources Apportionment, and Health Risks of PM <sub>2.5</sub> -bound PAHs and Their Derivatives Before and After Heating in Zibo City	SUN Gang-li, WU Li-ping, XU Bo, <i>et al.</i> (2558)
Components Characteristic and Source Apportionment of Fine Particulate Matter in Transition Period of Heating Season in Xi'an with High Time Resolution	LI Meng-jin, ZHANG Yong, ZHANG Qian, <i>et al.</i> (2571)
Source and Cause Analysis of High Concentration of Inorganic Aerosol During Two Typical Pollution Processes in Winter over Tianjin	LU Miao-miao, HAN Su-qin, LIU Ke-xin, <i>et al.</i> (2581)
Spatial-temporal Variation and Spatial Differentiation Geographic Detection of PM <sub>2.5</sub> Concentration in the Shandong Province Based on Spatial Scale Effect	XU Yong, WEI Meng-xin, ZOU Bin, <i>et al.</i> (2596)
Characteristics of VOCs Emissions and Ozone Formation Potential for Typical Chemicals Industry Sources in China	WU Ting, CUI Huan-wen, XIAO Xian-de, <i>et al.</i> (2613)
Formation Potential of Secondary Organic Aerosols and Sources of Volatile Organic Compounds During an Air Pollution Episode in Autumn, Langfang	ZHANG Jing-qiao, LIU Zheng, DING Wen-wen, <i>et al.</i> (2622)
Scale Effects of Landscape Pattern on Impacts of River Water Quality: A Meta-analysis	WANG Yu-cang, DU Jing-jing, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (2631)
Spectral Characteristics and Sources of Dissolved Organic Matter in Inflow Rivers of Baiyangdian Lake Water in Summer Flood Season	MENG Jia-jing, DOU Hong, CHEN Zhe, <i>et al.</i> (2640)
Analysis on Hydrochemical Evolution of Shallow Groundwater East of Yongding River in Fengtai District, Beijing	HU Yu-xin, ZHOU Rui-jing, SONG Wei, <i>et al.</i> (2651)
Hydrochemical Characteristics, Controlling Factors and Water Quality Evaluation of Shallow Groundwater in Tan-Lu Fault Zone (Anhui Section)	LIU Hai, WEI Wei, SONG Yang, <i>et al.</i> (2665)
Effects of Pesticides Use on Pesticides Residues and Its Environmental Risk Assessment in Xingkai Lake (China)	WANG Wei-qing, XU Xiong, LIU Quan-zhen, <i>et al.</i> (2678)
Characteristics of Microorganisms and Antibiotic Resistance Genes of the Riparian Soil in the Lanzhou Section of the Yellow River	WEI Cheng-chen, WEI Feng-yi, XIA Hui, <i>et al.</i> (2686)
Analysis of the Spatiotemporal Distribution of Algal Blooms and Its Driving Factors in Chaohu Lake Based on Multi-source Datasets	JIN Xiao-long, DENG Xue-liang, DAI Rui, <i>et al.</i> (2694)
Characteristics of Epiphytic Bacterial Community on Submerged Macrophytes in Water Environment Supplemented with Reclaimed Water	HE Yun, LI Xue-mei, LI Hong-quan, <i>et al.</i> (2707)
Effects of Water Level Fluctuations and Vegetation Restoration on Soil Prokaryotic Microbial Community Structure in the Riparian Zone of the Three Gorges Reservoir	MEI Yu, HUANG Ping, WANG Peng, <i>et al.</i> (2715)
Bacterial Community Structure of Typical Lake Sediments in Yinchuan City and Its Response to Heavy Metals	MENG Jun-jie, LIU Shuang-yu, QIU Xiao-cong, <i>et al.</i> (2727)
Effect of Thermal Hydrolysis Pretreatment Time on Microbial Community Structure in Sludge Anaerobic Digestion System	ZHANG Han, ZHANG Han, WANG Jia-wei, <i>et al.</i> (2741)
Source Apportionment of Morphine in Wastewater	SHAO Xue-ting, ZHAO Yue-tong, JIANG Bing, <i>et al.</i> (2748)
Ecological Environment Dynamical Evaluation of Hutuo River Basin Using Remote Sensing	LI Yan-cui, YUAN Jin-guo, LIU Bo-han, <i>et al.</i> (2757)
Spatiotemporal Evolution and Influencing Factors of Ecosystem Service Value in the Yellow River Basin	WANG Yi-qi, SUN Xue-ying (2767)
Ecosystem Service Trade-off Synergy Strength and Spatial Pattern Optimization Based on Bayesian Network: A Case Study of the Fenhe River Basin	CAI Jin, WEI Xiao-jian, JIANG Ping, <i>et al.</i> (2780)
Spatial-temporal Evolution and Quantitative Attribution of Habitat Quality in Typical Karst Counties of Guizhou Plateau	LI Yue, FENG Xia, WU Lu-hua, <i>et al.</i> (2793)
Spatial-temporal Variation in NEP in Ecological Zoning on the Loess Plateau and Its Driving Factors from 2000 to 2021	ZHOU Yi-ting, YAN Jun-xia, LIU Ju, <i>et al.</i> (2806)
Land Change Simulation and Grassland Carbon Storage in the Loess Plateau Based on SSP-RCP Scenarios	CUI Xie, DONG Yan, ZHANG Lu-yin, <i>et al.</i> (2817)
Multi-scenario Simulation of Construction Land Expansion and Its Impact on Ecosystem Carbon Storage in Beijing-Tianjin-Hebei Urban Agglomeration	WU Ai-bin, CHEN Fu-guo, ZHAO Yan-xia, <i>et al.</i> (2828)
Effects of Land Use Change on Soil Aggregate Stability and Soil Aggregate Organic Carbon in Karst Area of Southwest China	JIANG Ke, JIA Ya-nan, YANG Yan, <i>et al.</i> (2840)
Integrated Analysis of Soil Organic Matter Molecular Composition Changes Under Different Land Uses	HUANG Shi-wei, ZHAO Yi-kai, ZHU Xin-yu, <i>et al.</i> (2848)
Prediction Spatial Distribution of Soil Organic Matter Based on Improved BP Neural Network with Optimized Sparrow Search Algorithm	HU Zhi-ru, ZHAO Wan-fu, SONG Yin-xian, <i>et al.</i> (2859)
Effects of Application of Different Organic Materials on Phosphorus Accumulation and Transformation in Vegetable Fields	SUN Kai, CUI Yu-tao, LI Shun-jin, <i>et al.</i> (2871)
Intensive Citrus Cultivation Suppresses Soil Phosphorus Cycling Microbial Activity	ZHOU Lian-hao, ZENG Quan-chao, MEI Tang-ying-ze, <i>et al.</i> (2881)
Effects of Controlled-release Blended Fertilizer on Crop Yield and Greenhouse Gas Emissions in Wheat-maize Rotation System	GAO Wei, WANG Xue-xia, XIE Jian-zhi, <i>et al.</i> (2891)
Effect of Biochar on NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N Transport in Loessial Soil and Its Simulation	BAI Yi-ru, LIU Xu, ZHANG Yu-han, <i>et al.</i> (2905)
Analysis and Evaluation of Heavy Metal Pollution in Farmland Soil in China: A Meta-analysis	YANG Li, BAI Zong-xu, BO Wen-hao, <i>et al.</i> (2913)
Critical Review on Heavy Metal Contamination in Urban Soil and Surface Dust	WANG Xiao-yu, LIU En-feng, YANG Xiang-meng, <i>et al.</i> (2926)
Research Progress on Solidification and MICP Remediation of Soils in Heavy Metal Contaminated Site	CHEN Yue-ru, GAO Wen-yan, CHEN Hong-ren, <i>et al.</i> (2939)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Soil Heavy Metal in Coal Mine Area near the Yellow River in Shandong	DAI Wen-ting, ZHANG Hui, WU Xia, <i>et al.</i> (2952)
Heavy Metal Content and Risk Assessment of Sediments and Soils in the Juma River Basin	HAN Shuang-bao, YUAN Lei, ZHANG Qiu-xia, <i>et al.</i> (2962)
Characteristics, Ecological Risk Assessment, and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in the Yellow River Floodplain of Yinchuan City	YU Lu-jia, MA Hai-jun, WANG Cui-ping (2971)
Health Risk Assessment of Heavy Metals in Soils of a City in Guangdong Province Based on Source Oriented and Monte Carlo Models	CHEN Lian, ZOU Zi-hang, ZHANG Pei-zhen, <i>et al.</i> (2983)
Chemical Speciation, Influencing Factors, and Regression Model of Heavy Metals in Farmland of Typical Carbonate Area with High Geological Background, Southwest China	TANG Rui-ling, XU Jin-li, LIU Bin, <i>et al.</i> (2995)
Hg Content Characteristics and Safe Planting Zoning of Paddy Soil and Rice in Guizhou Province	WEI Mei-liu, ZHOU Lang, HUANG Yan-ling, <i>et al.</i> (3005)
Cadmium Phytoremediation Effect of Sweet Sorghum Assisted with Citric Acid on Typical Parent Soil in Southern China	LIU Meng-yu, LUO Xu-feng, GU Jiao-feng, <i>et al.</i> (3016)
Effects of Modified Distillers' Grains Biochar on Cadmium Forms in Purple Soil and Cadmium Uptake by Rice	XIAO Nai-chuan, WANG Zi-fang, YANG Wen-na, <i>et al.</i> (3027)
Effects of Biochar on Growth and Pollutant Accumulation of Lettuce in Soil Co-contaminated with Tetracycline and Copper	ZHENG Chen-ge, PEI Huan-huan, ZHANG Ya-shan, <i>et al.</i> (3037)
Effects of Vermicomposting on Compost Quality and Heavy Metals: A Meta-analysis	JIANG Ji-shao, HOU Rui, CUI Hui-lin, <i>et al.</i> (3047)
Advances in the Effects of Microplastics on Soil N <sub>2</sub> O Emissions and Nitrogen Transformation	LIU Yi-ge, YANG An-qi, CHEN Shu-xin, <i>et al.</i> (3059)
Effects of Land Use Patterns on Soil Microplastic Pollution in the Luoshijiang Sub-watershed of Erhai Lake Basin	DAI Liu-yun, HOU Lei, WANG Hua, <i>et al.</i> (3069)
Characteristics of Microplastic Pollution in Sediment of Silty Coast in Culture Bay	SONG Ke-xin, HE Jin-cheng, LI Chang-hua, <i>et al.</i> (3078)
Effect of Polyethylene Microplastics on the Microbial Community of Saline Soils	WANG Zhi-chao, LI Zhe, LI Jia-chen, <i>et al.</i> (3088)
Characterization of Microplastic Surface Bacterial Community Structure and Prediction of Ecological Risk in Poyang Lake, China	YU Jin-li, ZHAO Jun-kai, LUO Si-qi, <i>et al.</i> (3098)
Energy-saving and Emission Reduction Path for Road Traffic in Key Coastal Cities of Guangdong, Fujian and Zhejiang	XU Yi-nuo, WENG Da-wei, WANG Shuo, <i>et al.</i> (3107)
Life Cycle Carbon Reduction Benefits of Electric Heavy-duty Truck to Replace Diesel Heavy-duty Truck	XU Yuan-yuan, GONG De-hong, HUANG Zheng-guang, <i>et al.</i> (3119)