

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

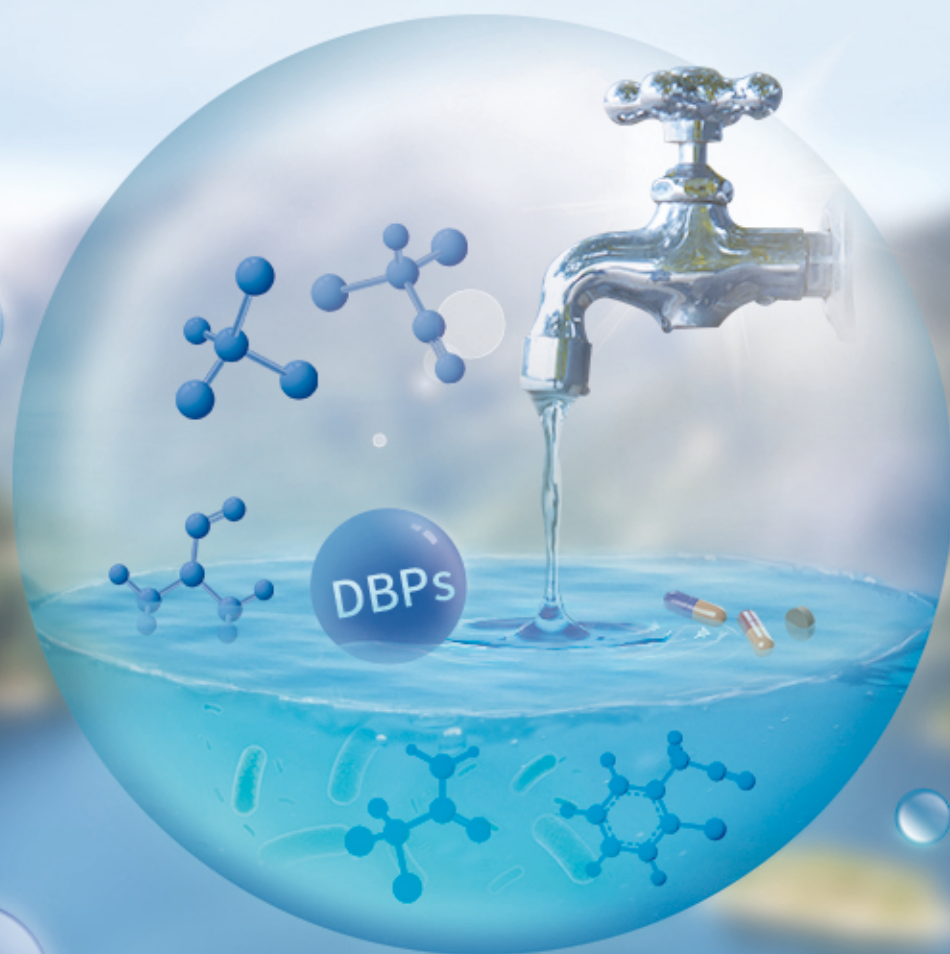
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

饮用水中的消毒副产物及其控制策略

楚文海, 肖融, 丁顺克, 张瑞华



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年11月

第42卷 第11期
Vol.42 No.11

目次

综述与专论

- 饮用水中的消毒副产物及其控制策略 楚文海, 肖融, 丁顺克, 张瑞华 (5059)
生物炭吸附硫化氢机制与影响因素研究进展 徐期勇, 梁铭坤, 许文君, 黄丹丹 (5086)

研究报告

- 1998~2016 中国八大经济区植被覆盖对 $PM_{2.5}$ 浓度时空分布的影响 杨玉莲, 杨昆, 罗毅, 喻臻钰, 孟超, 李岑 (5100)
COVID-19 疫情期间北京市两次重霾污染过程大气污染物演变特征及潜在源区分析 赵德龙, 田平, 周崑, 肖伟, 盛久江, 王飞, 杜远谋, 黄梦宇, 何晖, 丁德平 (5109)
汾渭平原临汾市 2019 年春节期间大气污染特征与来源解析 刘威杰, 胡天鹏, 毛瑶, 许安, 苏业旺, 李星谕, 程铖, 石明明, 梁莉莉, 邢新丽, 张家泉, 祁士华 (5122)
石家庄市大气污染物的季节性时空特征及潜在源区 聂赛赛, 王帅, 崔建升, 刘大喜, 陈静, 田亮, 贺博文, 沈梦宇 (5131)
天津市冬季空气湿度对 $PM_{2.5}$ 和能见度的影响 丁净, 唐颖潇, 郝天依, 姚青, 蔡子颖, 张裕芬, 韩素芹 (5143)
承德市 $PM_{2.5}$ 中碳质组分的季节分布特征及来源解析 贺博文, 聂赛赛, 王帅, 冯亚平, 姚波, 崔建升 (5152)
中国生活源挥发性有机物排放清单 梁小明, 陈来国, 沈国锋, 卢清, 刘明, 陆海涛, 任璐, 孙西勃, 林奎, 梁明易, 叶代启, 陶澍 (5162)
2011~2019 年中国工业源挥发性有机物排放特征 刘锐源, 钟美芳, 赵晓雅, 卢诗文, 田俊泰, 李银松, 侯墨, 梁小明, 黄皓旻, 范丽雅, 叶代启 (5169)
基于 LHS-MC 青岛市工业源 VOCs 排放清单及不确定性 徐琬莹, 付飞, 吕建华, 李瑞凡, 邵蕊, 和慧, 李淑芬, 左华 (5180)
典型橡胶制品业 VOCs 排放特征及对周边环境的影响 王海林, 辛国兴, 朱立敏, 薛松, 聂磊, 郝润 (5193)
沈阳市不同功能区挥发性有机物分布特征及臭氧生成潜势 库盈盈, 任万辉, 苏枫棋, 于兴娜 (5201)
天津城区夏冬季典型污染过程中 BTEX 变化特征及其健康风险评估 韩婷婷, 李颖若, 蒲维维, 姚青, 刘敬乐, 吴进, 张楠楠, 李梓铭, 马志强 (5210)
郑州市大气氨排放清单及驱动力分析 计尧, 王琛, 卢轩, 张欢, 尹沙沙 (5220)
基于 GAMs 模型分析成都市气象因子交互作用对 O_3 浓度变化的影响 张莹, 倪长健, 冯鑫媛, 王式功, 张小玲, 张家熙, 李运超 (5228)
长江干流表层水体悬浮物的空间变化特征及遥感反演 李建鸿, 黄昌春, 查勇, 王川, 尚娜娜, 郝维月 (5239)
河北省夏季降雨溶解性有机物光谱特征的空间分布、来源解析及氮素响应 张紫薇, 周石磊, 陈召莹, 张甜娜, 董宛佳, 甄瑞吟, 张馨童, 姚波, 崔建升 (5250)
城镇与城郊污染河道中 DOM 成分分布与影响因素 朱奔, 陈浩, 丁国平, 孙晓楠, 刘辉, 叶建锋 (5264)
北京城市河流河水和沉积物中微塑料的组成与分布 胡嘉敏, 左剑恶, 李颀, 谢珍雯, 陈磊 (5275)
太湖西岸地表水中极性有机污染物非靶向筛查与生态风险评估 卢昕妍, 王菲, 张丽敏, 任晓鸣, 于南洋, 韦斯 (5284)
河水-地下水交互带沉积物中抗生素和代谢产物提取方法优化及其分布特征 李玉琼, 童蕾, 严涵, 尤悦, 卢钰茜, 刘慧 (5294)
白洋淀清淤示范区沉积物中抗生素和多环芳烃的分布特征与风险评估 王同飞, 张伟军, 李立青, 张美一, 廖桂英, 王东升 (5303)
雄安新区唐河污水库残留污染物对地下水水化学动态的作用机制 张志雄, 王仕琴, 张依章, 冯文钊 (5312)
基于时间序列模型的饮用水源地重金属健康风险分析与预测 姬超, 侯大伟, 谢丽, 孙华, 李发志, 周宇, 邓爱萍, 沈红军, 包广静, 王逸南 (5322)
千河下游水体-沉积物重金属空间分布、风险及影响因素 高煜, 王国兰, 金梓函, 张军, 耿雅妮 (5333)
巢湖流域丰水期可溶态重金属空间分布及污染评价 何苗, 刘桂建, 吴蕾, 齐翠翠 (5346)
洪泽湖围栏养殖对表层沉积物重金属含量影响与生态风险评估 瞿鑫源, 张鸣, 谷孝鸿, 阚可聪, 毛志刚, 陈辉辉, 曾庆飞 (5355)
成都市地表水天然水化学变化特征及影响因素 许秋瑾, 赖承钺, 丁瑶, 王照丽, 程中华, 于涛 (5364)
雷州半岛地下水化学特征及控制因素分析 彭红霞, 侯清芹, 曾敏, 黄长生, 师环环, 皮鹏程, 潘羽杰 (5375)
粤港澳大湾区陆源氮污染来源结构与空间分布 董斯齐, 黄翀 (5384)
红壤丘陵区小流域典型土地利用的面源氮磷输出特征 房志达, 苏静君, 赵洪涛, 胡炼, 李叙勇 (5394)
减氮条件下不同施肥模式对稻田氮素淋溶流失的影响 姜海斌, 张克强, 邹洪涛, 马璇骏, 渠清博, 谷艳茹, 沈仕洲 (5405)
互花米草入侵对胶州湾湿地土壤磷赋存形态的影响 沙梦乔, 柴娜, 赵洪涛, 刘春井, 丁文超, 谢文霞 (5414)
基于 16S rRNA 高通量测序的北运河水体及沉积物微生物群落组成对比分析 彭柯, 董志, 邱琰茗, 郭道宇 (5424)
硅改性花生壳生物炭对水中磷的吸附特性 赵敏, 张小平, 王梁嵘 (5433)
高锰酸钾改性松木生物炭对 Pb(II) 的吸附特性 莫贞林, 曾鸿鹄, 林华, Asfandiyar Shahab, 石清亮, 张华 (5440)
混合金属氧化物/碳复合材料的制备及其对 Pb(II) 的吸附性能 卢予沈, 宗莉, 于惠, 牟斌, 王爱勤 (5450)
负载型钛凝胶的制备及其吸附去除三价砷的性能 孙晔洋, 周畅, 甘永海, 吴兵党, 张淑娟 (5460)
一体式短程硝化-厌氧氨氧化工艺启动过程的亚硝酸盐调控 左富民, 郑蕊, 隋倩雯, 钟慧, 陈彦霖, 魏源送 (5472)
生物炭和秸秆还田对紫色土旱坡地土壤团聚体与有机碳的影响 邓华, 高明, 龙翼, 赖佳鑫, 王莹燕, 王子芳 (5481)
紫色土旱坡地不同坡位土壤有机碳组分含量对施肥管理的响应 徐曼, 余添, 王富华, 王丹, 王莹燕, 杨文娜, 高明, 王子芳 (5491)
南阳盆地东部山区土壤重金属分布特征及生态风险评估 赖书雅, 董秋瑶, 宋超, 杨振京 (5500)
城郊农田土壤多环芳烃污染特征及风险评估 张秀秀, 卢晓丽, 魏宇宸, 朱昌达, 潘剑君 (5510)
我国东部沿海地区蔬菜中重金属累积分布特征及居民膳食暴露评估 孙帅, 耿柠波, 郭崔崔, 张保琴, 卢宪波, 张海军, 陈吉平 (5519)
典型矿区周边农业用地农产品安全风险及影响因素 霍彦慧, 王美娥, 谢天, 姜蓉, 陈卫平 (5526)
稻田土壤 Cd 污染与安全种植分区: 以重庆市某区为例 曹淑珍, 母悦, 崔敬鑫, 刘安迪, 程先, 符远航, 魏世强, 张进忠 (5535)
镉污染大田条件下不同品种水稻镉积累的特征及影响因素 王宇豪, 杨力, 康愉晨, 陈小红, 彭杰, 李佳欣, 陈文清 (5545)
纳米膜覆盖对畜禽粪便好氧堆肥进程及恶臭气体排放的影响 李永双, 孙波, 陈菊红, 彭霞薇, 白志辉, 庄绪亮 (5554)
《环境科学》征订启事 (5108) 《环境科学》征稿简则 (5151) 信息 (5249, 5263, 5283)

基于时间序列模型的饮用水源地重金属健康风险分析与预测

姬超¹, 侯大伟¹, 谢丽¹, 孙华^{1*}, 李发志¹, 周宇¹, 邓爱萍^{2,3*}, 沈红军^{2,3}, 包广静⁴, 王逸南¹

(1. 南京农业大学公共管理学院, 南京 210095; 2. 江苏省环境监测中心, 南京 210036; 3. 江苏省环境与健康重点实验室, 南京 210036; 4. 云南财经大学城市与环境学院, 昆明 650221)

摘要: 饮用水源地作为高敏感环境风险受体, 重金属健康风险的时间变化特征和预测分析对于饮用水源地的风险管控、水环境治理和生态系统安全保障等具有积极意义。为评价饮用水源地重金属健康风险及掌握健康风险的时间变化特征, 以某饮用水源地为研究对象, 监测并记录了该点位重金属 As、Cd、Cu、Hg、Ni 和 Zn 在 2015 年 1 月至 2018 年 12 月的浓度值, 并以月均值作为研究基础数据, 对饮用水源地重金属健康风险评价, 并进一步利用 Spearman 秩相关系数法和 ARIMA 模型对重金属健康风险时间变化特征进行分析。结果表明, 部分月份的重金属浓度值超过我国地表水环境质量标准 (GB 3838-2002) 规定的Ⅲ类水质的标准限值, 尤其是 Hg, 其浓度最小值超过该标准的 4 倍; 饮用水源地重金属致癌风险和非致癌风险的大小顺序分别为: As > Cd 和 As > Hg > Cd > Zn > Cu > Ni, 儿童健康风险均高于成人健康风险, 在 2015 年 2 月之外的所有月份的成人综合非致癌风险均低于 1, 儿童综合非致癌风险在 2017 年 10 月之后均低于或接近 1, 而儿童综合致癌风险均超过 10^{-4} ; As 的儿童致癌风险、儿童综合非致癌风险和儿童综合致癌风险在数据监测期间总体上具有明显的下降趋势, 其 Spearman 秩相关系数分别为 -0.714 069、-0.773 122 和 -0.622 34, 但是儿童综合致癌风险在 2018 年的 Spearman 秩相关系数为 0.902 098, 均有显著上升趋势, 对应的儿童综合致癌风险均值为 0.000 234; 基于 ARIMA (3, 1, 3) 模型预测的饮用水源地重金属儿童综合致癌风险具有较高的预测效果, 预测结果表明后续两年内的儿童综合致癌风险的范围为 0.000 200 ~ 0.000 302, 需引起关注。

关键词: 饮用水源地; 重金属; 健康风险; Spearman 秩相关系数; ARIMA 模型

中图分类号: X52 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)11-5322-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.202103122

Analysis and Prediction of Health Risk from Heavy Metals in Drinking Water Sources Based on Time Series Model

Ji Chao¹, HOU Da-wei¹, XIE Li¹, SUN Hua^{1*}, LI Fa-zhi¹, ZHOU Yu¹, DENG Ai-ping^{2,3*}, SHEN Hong-jun^{2,3}, BAO Guang-jing⁴, WANG Yi-nan¹

(1. College of Public Administration, Nanjing Agricultural University, Nanjing 210095, China; 2. Jiangsu Environmental Monitoring, Nanjing 210036, China; 3. Jiangsu Key Laboratory of Environment and Health, Nanjing 210036, China; 4. College of Urban and Environment, Yunnan University of Finance and Economics, Kunming 650221, China)

Abstract: Health risk analysis can predict and control the risks posed by heavy metals, especially in drinking water, which is a highly sensitive environmental receptors. In order to evaluate heavy metal pollution in drinking water, the monthly average concentrations of As, Cd, Cu, Hg, Ni, and Zn were used to assess the health risk between January 2015 and December 2018 in a drinking water source. Furthermore, Spearman rank correlation coefficient and the ARIMA model were used to analyze temporal variations. The results showed that the monthly average concentrations of heavy metals exceeded the class III values as specified by Chinese environmental quality standard for surface water (GB 3838-2002), especially Hg with a minimum monthly average four times more than that set by the standard limits. Overall, the order of carcinogenic risk of As and Cd was decreased; the non-carcinogenic risk of Zn, Cu, Ni, Pb, and Hg was increased. Further, the comprehensive non-carcinogenic risk for adults was lower than 1 throughout the study period except February 2015, when the comprehensive non-carcinogenic risk for children was lower than or close to 1 after October 2017, and the comprehensive carcinogenic risk for children was more than 10^{-4} . Meanwhile, the children's health risks are higher than that for adults, with the main health risk characteristic factors of As, Cd, and Hg. The Spearman rank correlation coefficient were -0.714 069, -0.773 122, and -0.622 34, indicating the significant downward trend from 2015 to 2018. However, the children's comprehensive carcinogenic risk, whose average value was 0.000 234 much more than 10^{-4} , had significant upward trend in 2018 with Spearman rank correlation coefficient 0.902 098. The ARIMA (3, 1, 3) model was able to predict the comprehensive carcinogenic risk for children from heavy metals in drinking water, and the result indicated the children comprehensive carcinogenic risk should be monitored to ensure levels between 0.000 200 and 0.000 302. The study has positive significance for risk warning and environmental management compared to the analysis and prediction of health risk from heavy metals in drinking water sources based on time series models.

Key words: drinking water source; heavy metal; health risk; Spearman rank correlation coefficient; ARIMA model

收稿日期: 2021-03-13; 修订日期: 2021-04-25

基金项目: 2018 年度江苏环保科研课题项目 (2018001); 江苏省重金属污染典型区域环境调查及健康风险评估项目 (1625); 流域典型区域农用地环境健康风险研究项目 (1905)

作者简介: 姬超 (1993 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为资源环境评价与规划管理, E-mail: 208860788@qq.com

* 通信作者, E-mail: sh@njau.edu.cn; 108823262@qq.com

经济社会的快速发展所引起的环境污染问题已引起全世界广泛关注,由环境污染而引起的人体健康效应日趋复杂,环境污染与人体健康之间关系的研究已成为全球研究的热点方向^[1~4]. 相关统计数据表明,70%的疾病和40%的死亡人口和环境因素有关,并且与环境污染相关的疾病也呈现显著上升的态势^[5]. 联合国于2015年已将饮用水和环境的可持续管理纳入到新制定的17个全球可持续发展目标之中,而饮用水环境污染与健康之间研究的核心是分析环境污染导致的人体健康危害程度,其有利于降低人群环境健康风险、提升应对环境健康风险的能力和有效制定环境与健康相关的管控策略等,对于落实全球可持续发展目标、保障人体健康和推动环境健康研究等具有积极的意义^[1~3,6~8].

由于工业化、城镇化和农业现代化等的持续推进,重金属已成为水环境污染物的的重要组成部分,而水体中的重金属进一步通过饮食、呼吸和皮肤接触等途径危害人体健康^[6,9]. 饮用水源地的重金属健康风险评价与分析是保证人们饮水健康的重要途径,也是水环境重金属污染防治重要的参考依据,对于维护水源地生态系统安全、保障人体健康安全和落实全球可持续发展目标等具有积极的意义^[9~13]. 随着国内外对于水环境污染监测能力进一步提升,水环境污染健康风险的研究领域、研究内容和研究视角等也随之不断拓展. 然而,饮用水环境重金属健康风险当前的研究内容侧重于在饮用水源地重金属监测结果基础上进行健康风险评估^[10,14]、风险因子来源分析^[15,16]、重金属治理^[17,18]和人群暴露参数^[19~21]等,虽然也有学者对于饮用水源地重金属健康风险的时空特征进行分析. 如 Zhao 等^[22]的研究对比分析了三峡库区水体重金属 As、Cd、Cr 和 Cu 在2015和2016年健康风险水平,但是基于长期连续监测数据的饮用水源地重金属健康风险的时间变化特征与预测分析的研究依然缺乏,同时饮用水源地重金属健康风险的研究视角侧重于环境科学和环境毒理学,统计学、经济学和地理学等其他相关学科也应当或多或少涉及其中^[5,20,23]. 因此,利用统计学和计量经济学模型分析和预测饮用水重金属健康风险也有利于拓展环境与健康的研究视角和丰富环境与健康研究的基础理论.

在时间序列分析方面,Spearman 秩相关系数法作为统计学中常用的分析方法,其本质是通过秩差来分析两组数值的相关性,已被应用于决策分析^[24]、疾病研究^[25,26]和环境变化^[27,28]等方面的研究,是分析研究对象的时间变化趋势是否显著的有效方法,但其在环境与健康研究领域应用得较少. 利

用该方法对饮用水源地重金属健康风险的时间变化属性特征进行研究时,可以分析调查点位重金属健康风险随时间变化的稳定性. 同时,ARIMA 模型充分考虑了预测过程的依赖性以及随机波动的干扰性,对于时间序列数据具有较强的适用性,已被广泛用于预测不同的时间序列数据,对于饮用水源地重金属健康风险的预测也具有较高的适用性和较强的理论可行性^[29~31],然而很少学者尝试将 ARIMA 模型应用于重金属健康风险的预测分析中. 因此,在饮用水源地重金属健康风险评价和 Spearman 秩相关系数分析的基础上,进一步引入 ARIMA 模型,构建饮用水源地重金属健康风险的时间预测模型,进而可以丰富重金属健康风险的研究手段,对于拓展 Spearman 秩相关系数和 ARIMA 模型的应用领域也具有积极的意义.

基于此,本研究在对太湖某饮用水源地重金属健康风险评价的基础上,进一步引入统计学的 Spearman 秩相关系数对重金属健康风险的时间变化特征进行定量分析,并在此基础上构建 ARIMA 预测模型,对未来重金属健康风险进行预测分析,以期对饮用水源地的风险管控和水环境管理提供现实依据、丰富饮用水源地重金属健康风险的研究手段和为其他环境要素的重金属健康风险的时间变化特征分析提供参考借鉴.

1 材料与方法

1.1 研究区域

太湖是中国第三大淡水湖,拥有包括金墅港、渔洋山、沙渚和庙港等多个饮用水源地,为4000万人口的生产和生活提供了水资源,同时无锡、苏州和湖州等太湖周边的城市则是长三角社会经济发展的核心区域^[13]. 20世纪80年代以来,随着城镇化和工业化的持续推进,太湖地区的资源环境约束不断加强,虽然太湖周边的区域已实施了一系列的水环境治理项目,但是太湖流域依然是我国当前水污染防治的主要区域. 国内外学者对于太湖水环境 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni 和 Zn 等重金属污染特征、暴露参数、生态风险和健康风险等进行了一系列的研究^[4,13,32~34],对于太湖水环境重金属的治理、管控和污染防治等具有重要的意义,然而基于连续时间视角的太湖饮用水源地重金属健康风险的分析与预测依然较为缺乏. 基于时间序列模型研究太湖饮用水源地重金属健康风险的连续时间变化特征并预测未来变化情况,可为后续的健康风险管控提供详实的理论依据,对于制定风险防控策略和保障太湖饮用水安全等也具有积极的意义.

1.2 样本采集与处理

根据地表水自动监测技术规范(试行)(HJ/T 91-2002)的具体规定,在相关课题支撑的基础上,采用国际认可的基于阳极溶出伏安法原理的在线快速监测设备,每隔4 h监测一次调查点位的重金属As、Cd、Cu、Hg、Ni和Zn的浓度,该设备可以对地表水重金属离子含量进行自动连续监测,在监测过程中也可以排除地表水有机物的干扰,考虑自动监测的准确度和精度,定期对监测点人工采样,然后在实验室进行分析校正与质量控制,并删除异常点和数据缺失点,最终得到饮用水源地重金属的初始监测数据.为方便研究,将监测数据导入到SPSS 25.0中,并分析As、Cd、Cu、Hg、Ni和Zn在2015~2018年间的连续监测数据的月均值,并将其作为本研究的基础数据.

1.3 健康风险评价

饮用和皮肤接触是饮用水源地重金属健康风险的主要暴露途径,以往的研究表明由皮肤接触带来的健康风险较小^[14~16,35~37].因此,采用已被国内外广泛使用的US EPA重金属健康风险评价模型,分析基于饮用暴露途径下的饮用水源地重金属健康风险,具体评价模型如公式(1)~(3).

$$ADD_i = C_i \times \frac{IR \times EF \times ED}{BW \times AT} \quad (1)$$

$$HI = \sum_{i=1}^n HI_i = \sum_{i=1}^n \frac{ADD_i}{RfD_i} \quad (2)$$

$$CR = \sum_{i=1}^n CR_i = \sum_{i=1}^n ADD_i \times SF_i \quad (3)$$

式中的参数含义见文献[4,33,34],而饮用水源地重金属的 RfD_i 和 SF_i 主要参照美国The Risk Assessment Information System(RAIS)中的相关参数,由于Cd经口的致癌斜率因子在该系统中未查询到,因此本研究依据张清华等^[9]的研究确定该参数.同时,当 $HI_i < 1$ 时,则重金属 i 在饮用暴露途径的非致癌风险可被接受,相反则需引起关注;当致癌风险 $CR_i \leq 10^{-6}$ 、 $10^{-6} < CR_i \leq 10^{-4}$ 和 $CR_i > 10^{-4}$ 时分别表示重金属 i 在饮用暴露途径的致癌风险可以被忽略、处于可接受的风险水平和被认为存在潜在致癌风险.

1.4 Spearman秩相关系数

在饮用水源地重金属健康风险时间特征分析时,将2015~2018年间不同月份重金属健康风险结果进行编码,得到时间序列 M_j (M_j 为1,2,3,...,48)和对应的重金属 i 的健康风险值 V_{ij} (即 $V_{1i}, \dots, V_{48i}$),进而可以分析饮用水源地重金属的时间变化特征^[38,39].Spearman秩相关系数的分析模型如公式

(4)~(5).

$$R_{si} = 1 - \frac{6 \sum_{j=1}^n d_{ij}^2}{N^3 - N} \quad (4)$$

$$d_{ij} = X_{ij} - Y_{ij} \quad (5)$$

式中, R_{si} 为重金属健康风险的秩相关系数, X_{ij} 为 V_{ij} 按降序排列的序号, Y_{ij} 为基于时间排列顺序产生的序号, N 为周期次数.将重金属 i 的健康风险Spearman秩相关系数与对应的临界值 W_p 对比分析,若 $R_{si} > W_p$,则表明重金属 i 的健康风险有显著变化趋势,相反则无显著性变化趋势,在显著性变化趋势的基础上,若 R_{si} 为负值,则表明重金属 i 的健康风险呈现显著性的下降趋势,相反则呈现显著性的上升趋势.当显著水平为0.05时,周期次数为48和12分别对应的 W_p 为0.587和0.285,显著水平为0.01时,相应的 W_p 则分别为0.727和0.370.

1.5 ARIMA模型

ARIMA模型又称差分整合移动平均自回归模型,是在AR模型和MA模型的基础上发展演化而来的,平稳的或者通过平稳化处理的非平稳的时间样本序列数据是ARIMA模型进行预测的前提,其具体模型如文献[29,31].重金属健康风险的预测模型ARIMA的建模主要是在软件SAS 9.4中完成的.步骤如下:首先,依据Spearman秩相关系数的分析结果判断健康风险时间序列的平稳性并对非平稳性时间序列进行差分分析;其次,进行模型定阶,依据ACF图(autocorrelation function)和PACF图(partial autocorrelation function)初步构建ARIMA(p, d, q)模型;最后,对参数估计的显著性检验和残差是否为随机独立的白噪声序列进行分析.

2 结果与分析

2.1 饮用水源地重金属描述性分析

依据处理后的监测数据,利用SPSS 25.0软件中描述分析模块对饮用水源地重金属的月均浓度进行描述性统计分析,结果如表1.根据重金属在地表水环境质量标准(GB 3838-2002)中的Ⅲ类水质的标准限值,可以发现Hg的月均浓度处于0.049 359~0.000 413 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$,其最小值也超过其对应的标准限值的4倍,表明Hg的浓度在数据监测期间一直处于一个相对较高的水平;As和Ni的月均浓度最大值分别为0.097 670 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和0.042 920 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$,均高于标准限值,而其平均值分别为0.011 783 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和0.012 618 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$,均低于该标

准限值,表明在数据监测期间 As 的浓度在部分月份中存在浓度超标的现象; Cd、Cu 和 Zn 的月均浓度的最大值均处于该标准限值以下,均未存在浓度超标的月份,但是由于不同类型重金属的健康风险具有累积效应^[9,10,36], As、Cd、Cu、Hg、Ni 和 Zn 的健康风险需进一步分析.同时,根据变异系数可以看出 Cd 和 Ni 的变异系数低于 1,分别为 0.633 159 和

0.831 597,而 As、Cu、Hg 和 Zn 的变异数均高于 1,在进行变异特征分析时,通常将变异系数 $CV < 0.1$ 、 $0.1 < CV < 1$ 和 $CV > 1$ 分别看作为弱、中等和强变异性程度^[39],因此 Cd 和 Ni 属于中等变异程度, As、Cu、Hg 和 Zn 属于强变异性程度,表明该饮用水源地重金属浓度在数据监测期间的连续时间变化上变异程度较高.

表 1 饮用水源地重金属统计分析

Table 1 Descriptive statistics of heavy metals in a drinking water source

项目	As	Cd	Cu	Hg	Ni	Zn
平均值/ $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	0.011 783	0.000 783	0.002 922	0.003 514	0.012 618	0.017 813
最大值/ $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	0.097 670	0.003 469	0.020 028	0.049 359	0.042 920	0.088 510
最小值/ $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	0.000 661	0.000 309	0.000 300	0.000 413	0.000 300	0.002 574
中位数/ $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	0.003 552	0.000 601	0.001 615	0.001 325	0.007 437	0.018 791
标准差	0.015 642	0.000 496	0.003 172	0.007 423	0.010 493	0.017 817
变异系数(CV)	1.327 516	0.633 159	1.085 622	2.112406	0.831 597	1.000 246
地表水环境质量标准(GB 3838-2002)						
Ⅲ类水质的限值/ $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	0.05	0.005	1.0	0.000 1	0.02	1.000

2.2 健康风险评价结果分析

运用饮用水源地重金属健康风险评价模型及相关参数分析 As、Cd、Cu、Hg、Ni 和 Zn 的非致癌风险(成人、儿童)以及 As 和 Cd 的致癌风险(成人、儿童),饮用水源地重金属成人与儿童的综合致癌风险和非致癌风险则是不同类型重金属对应的健康风险评价结果的累积加和.

饮用水源地重金属非致癌风险评价结果显示,不同类型的重金属成人和儿童非致癌风险总体平均值的排序为: $\text{As} > \text{Hg} > \text{Cd} > \text{Zn} > \text{Cu} > \text{Ni}$,由于重金属非致癌风险的数据量较大,本研究进一步分析该饮用水源地重金属非致癌风险,评价结果如图 1,由于 Cu、Ni 和 Zn 的成人和儿童非致癌风险较小,在图 1 中不明显,但是该柱状图的高低直接表示不同月份的重金属非致癌风险的总体水平,以上 3 种重金属的非致癌风险在分析过程中也不容忽视.对于重金属成人非致癌风险而言,不同类型重金属非致癌风险均处于可接受的风险水平最大限值之内,并且除了 2015 年 2 月的重金属成人综合非致癌风险大于 1 之外,该饮用水源地其他月份的重金属成人综合非致癌风险均低于 1.对于儿童非致癌风险而言,其主要风险特征因子是 As 和 Hg, As 在 2015 年 5 月至 2016 年 11 月的儿童非致癌风险均大于 1, Hg 在 2015 年 1 月、2015 年 2 月和 2017 年 7 月的儿童非致癌风险也大于 1.同时,儿童综合非致癌风险的时间变化特征与成人相似,总体呈减少趋势,季节性变化趋势并不明显,但在连续时间的变化上具有一定的波动.

饮用水源地 As 和 Cd 的成人与儿童的致癌风

险分析结果如表 2 所示,在 2018 年 7 月之外的月份中, Cd 的成人致癌风险均处于可接受水平以下, As 的成人致癌风险在 2015 年 7 月至 2016 年 9 月之外的月份中也处于可接受水平以下,同时在 2017 年 9 月之后, As 和 Cd 的成人致癌风险均低于 0.000 1.与成人致癌风险相比, As 和 Cd 的儿童致癌风险一直处于较高的风险水平,其中 Cd 在 2015 年 8 月、2016 年 8 月、2017 年 11 月和 2017 年 12 月之外的月份的致癌风险均低于 0.000 1,同时以上 4 个月份对应的风险值分别为 0.000 083、0.000 085、0.000 083 和 0.000 093,均接近于可接受水平的最大限值; As 在 2015 年 5 月至 2016 年 6 月的儿童致癌风险均高于 0.005,在 2016 年 2 月达到最大值,为 0.001 558,高于致癌风险的可接受水平限值,然而在 2017 年 7 月至 2018 年 12 月, As 的儿童致癌风险均低于 0.000 1,处于可接受水平限值之内.从时间变化特征来看, As 的儿童致癌风险在 2015 年 1 月至 2017 年 12 月呈现出先增长后下降的趋势,在 2016 年 2 月达到最高值, Cd 的儿童致癌风险呈现出波动的变化特征,其变化趋势并不明显.成人致癌风险变化趋势与儿童的相似,但是 As 和 Cd 的儿童致癌风险明显高于成人,本研究结论也在其他研究中被证实^[8,9,40].

根据健康风险评价结果来看,该饮用水源地的主要健康风险特征因子为 As、Hg 和 Cd,其中, As 和 Cd 儿童致癌风险以及 As 儿童非致癌风险的平均值分别为 0.000 571、0.000 197 和 1.269 516,均高于健康风险可接受水平的临界值.从时间变化总体特征来看,健康风险的总体呈现出降低趋势,虽然在

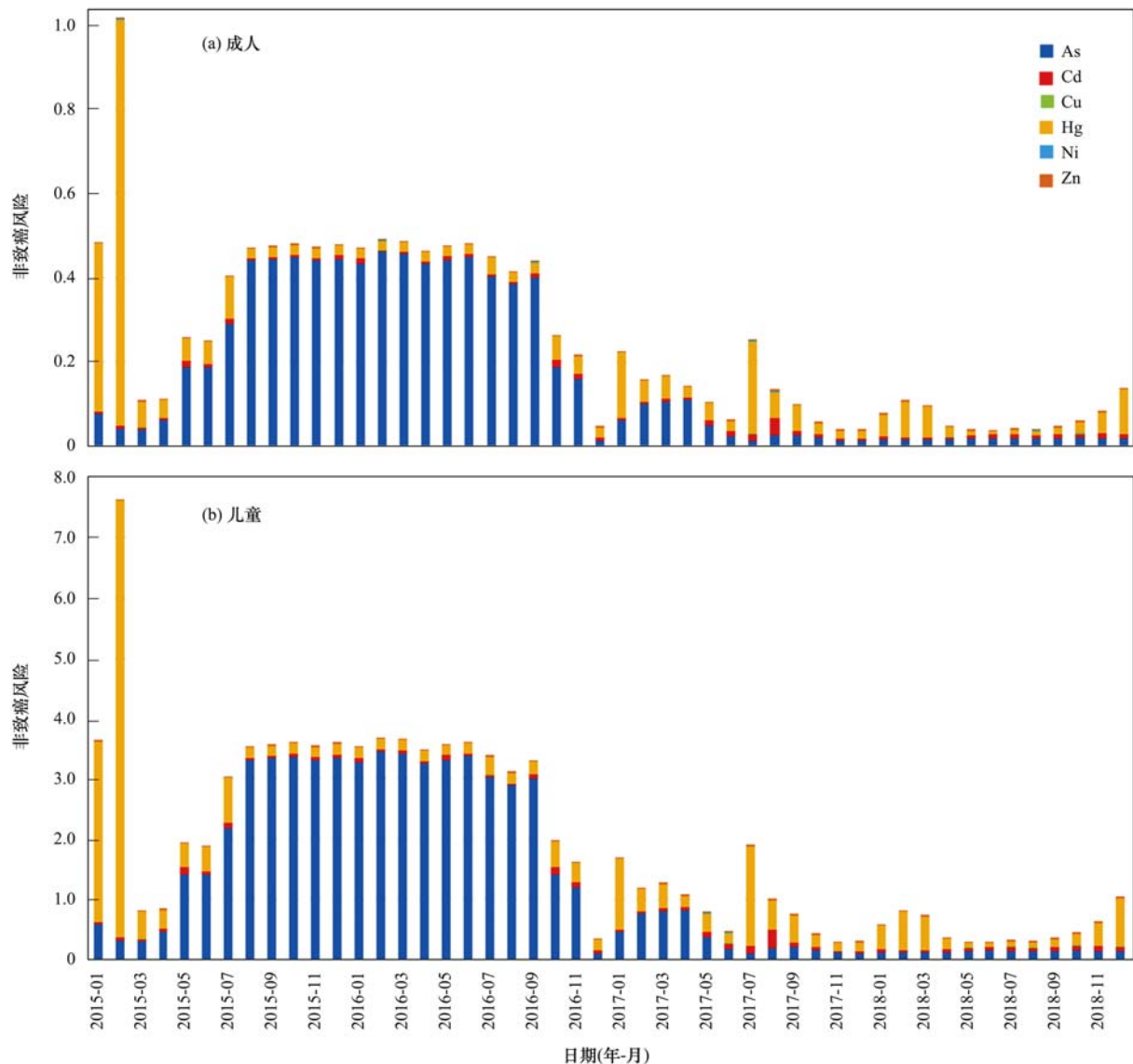


图1 饮用水源地重金属成人和儿童非致癌风险分析

Fig. 1 Analysis of non-carcinogenic risk for adults and children from heavy metals in a drinking water source

不同的时间段也呈现出上下波动的现象,但是该饮用水源地重金属健康风险的周期性变化并不明显,这可能与太湖流域引江济太、水环境综合治理和水资源监控与保护预警系统等项目的实施有关^[13,32,33].因此,基于时间视角的该饮用水源地重金属健康风险的定量分析需进一步实施,而明确饮用水源地重金属健康风险的总体变化特征,为该饮用水源地重金属健康风险的预测和后续管控提供现实依据.

2.3 基于 Spearman 秩相关系数的健康风险时间变化特征分析

根据健康风险评价分析结果,儿童健康风险水平明显高于成人,且 As 和 Cd 的儿童致癌风险在部分月份明显高出致癌风险可接受水平的临界值,需重点关注其时间变化特征.因此,本研究对 As 和 Cd 儿童致癌风险、儿童综合非致癌风险、儿童综合致

癌风险的时间序列变化特征进行定量分析,并将评价结果与 Spearman 秩相关系数界值进行对比分析,结果如表3所示.根据不同年份的儿童健康风险秩相关系数可以看出儿童健康风险的变化趋势在不同的年份内有所差异,As 的儿童致癌风险、儿童综合非致癌风险和儿童综合致癌风险在儿童健康风险相对较高的2015年和2016年均具有明显的下降趋势,在2018年却有显著地上升趋势;根据连续4a的时间特征分析结果,可以看出 As 的儿童致癌风险、儿童综合非致癌风险、儿童综合致癌风险的秩相关系数分别为 $-0.714\ 069$ 、 $-0.773\ 122$ 和 $-0.622\ 340$,均大于在0.01水平下的 W_p ,均具有明显的下降趋势;Cd 的儿童致癌风险的秩相关系数为 $0.208\ 424$,虽有上升趋势,但其秩相关系数小于0.05水平下的 W_p ,上升趋势并不显著.同时,由于儿童综合致癌风险在数据监测期间均大于0.0001,

表 2 饮用水源地重金属致癌健康风险评价结果

Table 2 Analysis of carcinogenic risk of heavy metals in a drinking water source									
日期 (年-月)	成人致癌风险		儿童致癌风险		日期 (年-月)	成人致癌风险		儿童致癌风险	
	As	Cd	As	Cd		As	Cd	As	Cd
2015-01	0.000 035	0.000 015	0.000 260	0.000 116	2017-01	0.000 028	0.000 017	0.000 206	0.000 127
2015-02	0.000 019	0.000 020	0.000 143	0.000 147	2017-02	0.000 046	0.000 014	0.000 343	0.000 106
2015-03	0.000 018	0.000 016	0.000 136	0.000 124	2017-03	0.000 048	0.000 018	0.000 361	0.000 138
2015-04	0.000 028	0.000 018	0.000 209	0.000 134	2017-04	0.000 049	0.000 016	0.000 371	0.000 123
2015-05	0.000 085	0.000 047	0.000 637	0.000 351	2017-05	0.000 022	0.000 038	0.000 165	0.000 284
2015-06	0.000 084	0.000 024	0.000 632	0.000 180	2017-06	0.000 011	0.000 038	0.000 080	0.000 282
2015-07	0.000 131	0.000 041	0.000 979	0.000 309	2017-07	0.000 006	0.000 052	0.000 044	0.000 390
2015-08	0.000 199	0.000 011	0.001 493	0.000 083	2017-08	0.000 012	0.000 124	0.000 087	0.000 932
2015-09	0.000 200	0.000 015	0.001 502	0.000 114	2017-09	0.000 012	0.000 028	0.000 091	0.000 211
2015-10	0.000 202	0.000 020	0.001 515	0.000 149	2017-10	0.000 009	0.000 022	0.000 070	0.000 161
2015-11	0.000 199	0.000 017	0.001 493	0.000 126	2017-11	0.000 007	0.000 011	0.000 050	0.000 083
2015-12	0.000 200	0.000 026	0.001 503	0.000 194	2017-12	0.000 006	0.000 012	0.000 049	0.000 093
2016-01	0.000 196	0.000 032	0.001 469	0.000 240	2018-01	0.000 007	0.000 021	0.000 053	0.000 154
2016-02	0.000 208	0.000 014	0.001 558	0.000 101	2018-02	0.000 007	0.000 015	0.000 054	0.000 113
2016-03	0.000 205	0.000 016	0.001 542	0.000 122	2018-03	0.000 007	0.000 016	0.000 055	0.000 117
2016-04	0.000 195	0.000 015	0.001 465	0.000 113	2018-04	0.000 007	0.000 022	0.000 052	0.000 162
2016-05	0.000 199	0.000 030	0.001 493	0.000 224	2018-05	0.000 008	0.000 024	0.000 062	0.000 182
2016-06	0.000 203	0.000 017	0.001 521	0.000 131	2018-06	0.000 009	0.000 025	0.000 067	0.000 187
2016-07	0.000 182	0.000 015	0.001 364	0.000 112	2018-07	0.000 009	0.000 028	0.000 065	0.000 211
2016-08	0.000 173	0.000 011	0.001 301	0.000 085	2018-08	0.000 008	0.000 024	0.000 061	0.000 479
2016-09	0.000 180	0.000 033	0.001 349	0.000 250	2018-09	0.000 009	0.000 027	0.000 065	0.000 202
2016-10	0.000 085	0.000 053	0.000 635	0.000 398	2018-10	0.000 009	0.000 029	0.000 069	0.000 220
2016-11	0.000 072	0.000 039	0.000 536	0.000 291	2018-11	0.000 008	0.000 039	0.000 059	0.000 294
2016-12	0.000 006	0.000 022	0.000 045	0.000 169	2018-12	0.000 009	0.000 030	0.000 064	0.000 223

表 3 儿童健康风险秩相关系数分析结果¹⁾

Table 3 Spearman rank correlation coefficient of children's health risk				
年份	儿童致癌风险		儿童综合非致癌风险	儿童综合致癌风险
	As	Cd		
2015	0.909 091 **	0.125 874	0.118 881	0.937 063 **
2016	-0.881 119 **	0.398 601	-0.881 119 **	-0.853 147 **
2017	-0.783 217 **	-0.055 944	-0.783 217 **	-0.601 399 *
2018	0.629 371 *	0.916 084 **	0.020 979	0.902 098 **
2015 ~ 2018	-0.714 069 **	0.208 424	-0.773 122 **	-0.622 340 **

1) * 表示在 0.05 水平下具有显著变化趋势, ** 表示在 0.01 水平下具有显著意义

并且其在 2018 年具有明显的上升趋势,其秩相关系数为0.902 098,其未来的变化情况需进一步分析。

2.4 基于 ARIMA 模型的儿童综合致癌风险的预测

根据健康风险评价和 Spearman 秩相关系数分析结果,选择该饮用水源地重金属儿童综合致癌风险作为 ARIMA 模型的预测对象,由于数据监测期间的重金属儿童综合致癌风险的秩相关系数为 0.902 098,具有显著的下降趋势,该时间序列为非平稳时间序列,需进行平稳化处理^[30]。因此,对饮用水源地重金属儿童综合致癌风险的时间序列数据进行一阶差分转换,并对转换后的数据 $d(1)$ 进行 ACF 图和 PACF 图分析(图 2),其中阴影部分表示对应的 95% 的置信区间,图 2(a)中的时间序列 Spearman 秩相关系数分析中的 M_j ,差分后偏自相关

系数均收缩在两倍标准差内,在滞后三阶便迅速收缩到 0,而自相关系数也是在 3 阶后收缩到 0,因此可以初步确定模型为 ARIMA(3,1,3)。随后,采用最大似然估计对该模型参数进行分析,分析结果如表 4,其中 P 值表示 t 检验中双侧检验,除常数项以外其余参数的估计值对应的 P 值均小于 0.05,说明该模型是有统计学意义的。

在上述分析的基础上,进一步诊断检验模型的适应性,即对 ARIMA(3,1,3)模型的残差序列实施白噪声分析,若该序列不是白噪声则表明仍有信息未提取,需对模型进行调整。因此,对饮用水源地重金属儿童综合致癌风险采用拟合模型 ARIMA(3,1,3)分析残差序列分布特征、ACF 图以及 Q-Q 图,结果如图 3。残差序列的自相关表明除了滞后一阶的自相关系数外,其余均在 95% 的置信区间中,残差

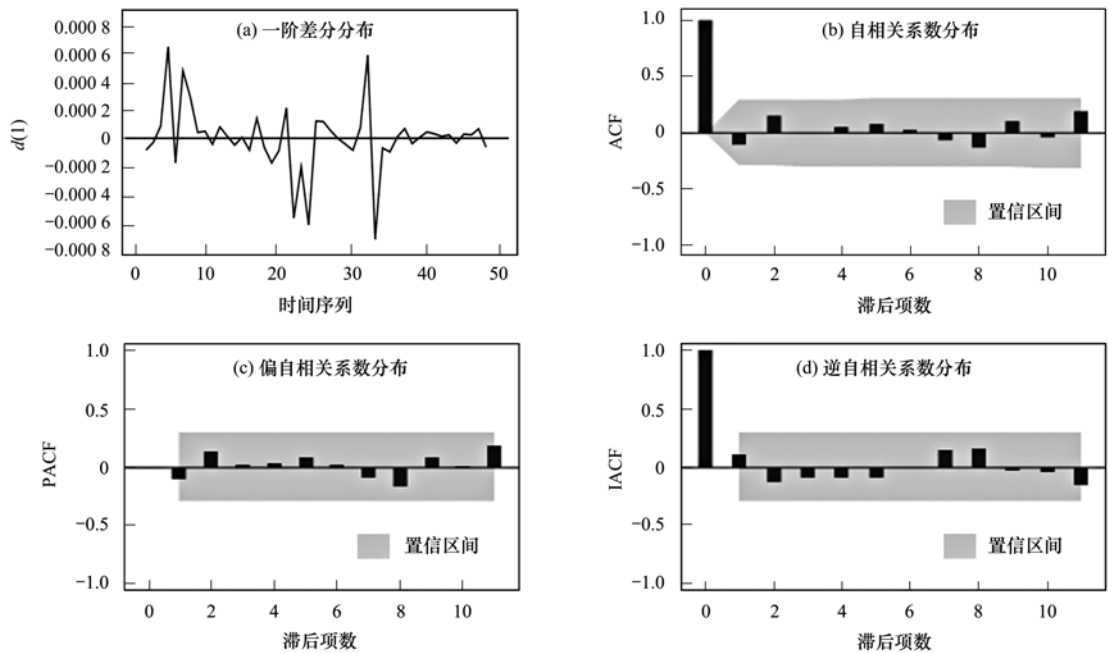


图 2 一阶差分转换后的饮用水源地重金属儿童综合致癌风险的变化趋势及相关性分析

Fig. 2 Trend, ACF and PACF of comprehensive carcinogenic risk for children of heavy metals in drinking water source after first-order differential transformation

表 4 基于最大似然估计的 ARIMA(3,1,3) 的参数估计结果

Table 4 Parameter estimation results of ARIMA(3,1,3) according to maximum likelihood estimation

参数	估计	标准误差	t 值	近似 P 值	滞后阶数
C	5.31687×10^{-7}	0.00004	0.01	0.9895	0
MA(1, 1)	-1.05352	0.18958	-5.56	<0.0001	1
MA(1, 2)	0.52633	0.19575	2.69	0.0072	2
MA(1, 3)	0.81494	0	正无	<0.0001	3
AR(1, 1)	-1.02548	0.09769	-10.50	<0.0001	1
AR(1, 2)	0.60520	0.14192	4.26	<0.0001	2
AR(1, 3)	0.84969	0.07268	11.69	<0.0001	3

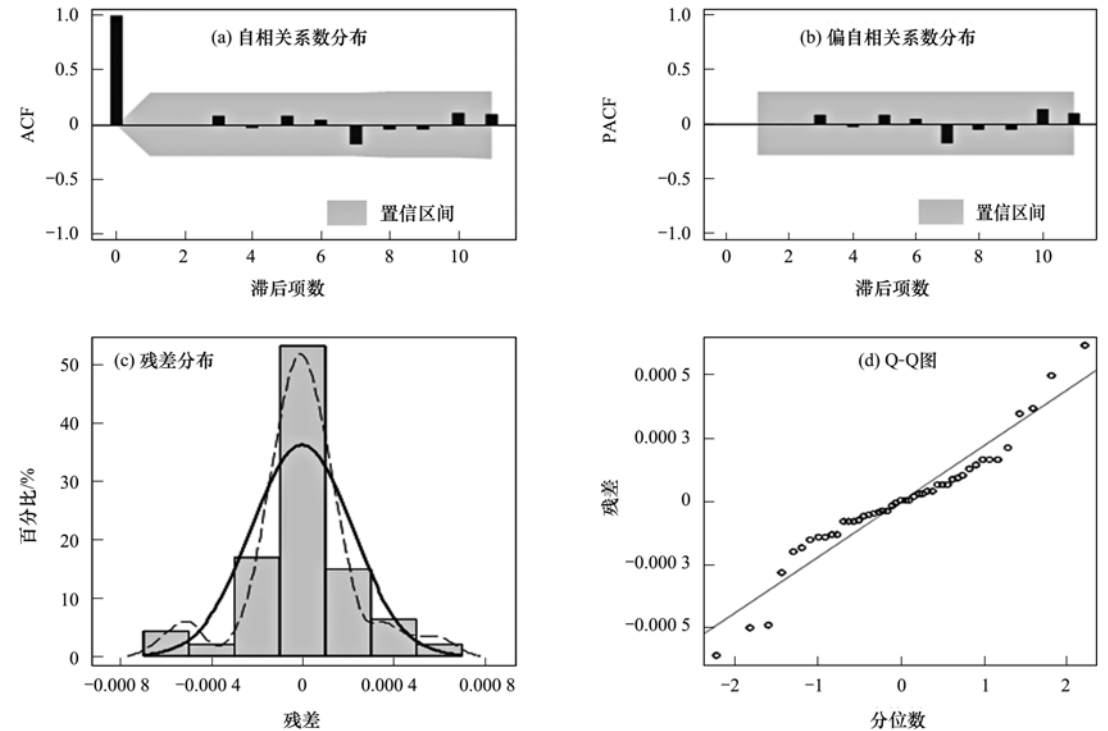


图 3 饮用水源地重金属儿童综合致癌风险序列残差分析

Fig. 3 Residual analysis of comprehensive carcinogenic risk of heavy metals in drinking water sources

序列属于平稳序列,同时残差的 Q-Q 图也显示较好的拟合效果,分布基本接近正态分布,表明残差序列基本不存在相关性,可以看作白噪声序列,具有较高的可靠性^[29,41]. 因此, ARIMA(3,1,3) 模型可以用于预测该饮用水源地重金属儿童综合致癌风险水平.

基于 ARIMA(3,1,3)模型预测的饮用水源地重金属儿童综合致癌风险水平结果如表 5 所示,根据预测结果可以发现饮用水源地重金属儿童综合致癌

风险在后续 2 a 的变化范围为 0.000 200 ~ 0.000 0302,平均值为0.000 250,超过了儿童致癌风险的最大可接受值0.000 1. 同时,由于本研究是针对饮用水源地的源头水进行采样分析的,并未对末梢水进行采样分析,而水源地的水往往会经水厂处理,可能会导致评价结果高于真实值,但是按照最大可能损失或者最大预期损失的健康风险管控原则,在未来重金属风险管控或水环境治理过程中,该饮用水源地重金属儿童综合致癌风险需重点关注.

表 5 基于 ARIMA(3,1,3)模型饮用水源地重金属儿童综合致癌风险预测结果
Table 5 Prediction results of the comprehensive carcinogenic risk of heavy metals for children
in drinking water sources based on ARIMA(3,1,3) model

日期 (年-月)	预测值	标准误差	95% 置信区间	实际值	残差	日期 (年-月)	预测值	标准误差	95% 置信区间	实际值	残差
2015-01	—	—	—	0.000 376	—	2018-01	0.000 105	0.000 241	-0.000 367 ~ 0.000 577	0.000 208	0.000 102
2015-02	0.000 376	0.000 253	-0.000 120 ~ 0.000 873	0.000 290	-0.000 086	2018-02	0.000 176	0.000 241	-0.000 296 ~ 0.000 648	0.000 168	-0.000 009
2015-03	0.000 298	0.000 252	-0.000 196 ~ 0.000 793	0.000 259	-0.000 039	2018-03	0.000 228	0.000 241	-0.000 244 ~ 0.000 700	0.000 171	-0.000 057
2015-04	0.000 250	0.000 250 0	-0.000 240 ~ 0.000 740	0.000 343	0.000 093	2018-04	0.000 067	0.000 241	-0.000 405 ~ 0.000 538	0.000 214	0.000 147
2015-05	0.000 337	0.000 250	-0.000 153 ~ 0.000 827	0.000 988	0.000 651	2018-05	0.000 326	0.000 241	-0.000 146 ~ 0.000 797	0.000 243	-0.000 082
2015-06	0.000 951	0.000 250	0.000 462 ~ 0.001 440	0.000 812	-0.000 138	2018-06	0.000 124	0.000 241	-0.000 348 ~ 0.000 596	0.000 254	0.000 130
2015-07	0.000 901	0.000 249	0.000 412 ~ 0.001 390	0.001 288	0.000 387	2018-07	0.000 359	0.000 241	-0.000 113 ~ 0.000 830	0.000 276	-0.000 083
2015-08	0.001 212	0.000 249	0.000 723 ~ 0.001 700	0.001 576	0.000 365	2018-08	0.000 197	0.000 241	-0.000 275 ~ 0.000 668	0.000 240	0.000 044
2015-09	0.001 657	0.000 248	0.001 171 ~ 0.002 144	0.001 616	-0.000 042	2018-09	0.000 286	0.000 240	-0.000 185 ~ 0.000 757	0.000 268	-0.000 018
2015-10	0.001 631	0.000 248	0.001 146 ~ 0.002 117	0.001 663	0.000 032	2018-10	0.000 259	0.000 240	-0.000 211 ~ 0.000 730	0.000 289	0.000 030
2015-11	0.001 670	0.000 246	0.001 187 ~ 0.002 153	0.001 619	-0.000 052	2018-11	0.000 260	0.000 240	-0.000 211 ~ 0.000 730	0.000 353	0.000 094
2015-12	0.001 690	0.000 246	0.001 209 ~ 0.002 172	0.001 697	0.000 007	2018-12	0.000 419	0.000 240	-0.000 052 ~ 0.000 889	0.000 288	-0.000 131
2016-01	0.001 642	0.000 245	0.001 161 ~ 0.002 122	0.001 709	0.000 067	2019-01	0.000 205	0.000 236	-0.000 258 ~ 0.000 668		
2016-02	0.001 807	0.000 245	0.001 327 ~ 0.002 288	0.001 659	-0.000 148	2019-02	0.000 301	0.000 339	-0.000 363 ~ 0.000 965		
2016-03	0.001 597	0.000 245	0.001 116 ~ 0.002 077	0.001 664	0.000 067	2019-02	0.000 200	0.000 424	-0.000 631 ~ 0.001 031		
2016-04	0.001 735	0.000 245	0.001 255 ~ 0.002 215	0.001 578	-0.000 157	2019-04	0.000 292	0.000 495	-0.000 678 ~ 0.001 261		
2016-05	0.001 548	0.000 245	0.001 068 ~ 0.002 028	0.001 717	0.000 169	2019-05	0.000 219	0.000 562	-0.000 883 ~ 0.001 321		
2016-06	0.001 728	0.000 244	0.001 249 ~ 0.002 207	0.001 652	-0.000 077	2019-06	0.000 263	0.000 622	-0.000 955 ~ 0.001 481		
2016-07	0.001 682	0.000 244	0.001 204 ~ 0.002 160	0.001 476	-0.000 206	2019-07	0.000 252	0.000 680	-0.001 081 ~ 0.001 584		
2016-08	0.001 443	0.000 244	0.000 965 ~ 0.001 920	0.001 386	-0.000 056	2019-08	0.000 229	0.000 733	-0.001 207 ~ 0.001 665		
2016-09	0.001 430	0.000 243	0.000 953 ~ 0.001 906	0.001 599	0.000 169	2019-09	0.000 283	0.000 784	-0.001 254 ~ 0.001 820		
2016-10	0.001 535	0.000 243	0.001 059 ~ 0.002 011	0.001 033	-0.000 502	2019-10	0.000 204	0.000 833	-0.001 428 ~ 0.001 837		
2016-11	0.001 115	0.000 243	0.000 639 ~ 0.001 591	0.000 828	-0.000 287	2019-11	0.000 299	0.000 879	-0.001 424 ~ 0.002 023		
2016-12	0.000 729	0.000 243	0.000 253 ~ 0.001 205	0.000 214	-0.000 515	2019-12	0.000 201	0.000 925	-0.001 612 ~ 0.002 014		
2017-01	0.000 264	0.000 243	-0.000 211 ~ 0.000 740	0.000 333	0.000 069	2020-01	0.000 292	0.000 967	-0.001 603 ~ 0.002 188		
2017-02	0.000 233	0.000 243	-0.000 243 ~ 0.000 709	0.000 449	0.000 216	2020-02	0.000 219	0.001 010	-0.001 760 ~ 0.002 199		
2017-03	0.000 458	0.000 242	-0.000 017 ~ 0.000 933	0.000 499	0.000 041	2020-03	0.000 266	0.001 050	-0.001 791 ~ 0.002 323		
2017-04	0.000 491	0.000 242	0.000 016 ~ 0.000 965	0.000 494	0.000 003	2020-04	0.000 252	0.001 090	-0.001 883 ~ 0.002 388		
2017-05	0.000 442	0.000 242	-0.000 032 ~ 0.000 916	0.000 449	0.000 007	2020-05	0.000 233	0.001 127	-0.001 976 ~ 0.002 442		
2017-06	0.000 508	0.000 242	0.000 035 ~ 0.000 982	0.000 362	-0.000 146	2020-06	0.000 285	0.001 164	-0.001 997 ~ 0.002 567		
2017-07	0.000 266	0.000 242	-0.000 207 ~ 0.000 739	0.000 433	0.000 167	2020-07	0.000 209	0.001 200	-0.002 144 ~ 0.002 561		
2017-08	0.000 513	0.000 242	0.000 039 ~ 0.000 986	0.001 018	0.000 506	2020-08	0.000 302	0.001 235	-0.002 119 ~ 0.002 722		
2017-09	0.000 924	0.000 242	0.000 451 ~ 0.001 398	0.000 302	-0.000 622	2020-09	0.000 205	0.001 270	-0.002 284 ~ 0.002 693		
2017-10	0.000 420	0.000 242	-0.000 053 ~ 0.000 893	0.000 231	-0.000 189	2020-10	0.000 296	0.001 302	-0.002 256 ~ 0.002 849		
2017-11	0.000 115	0.000 241	-0.000 358 ~ 0.000 588	0.000 133	0.000 018	2020-11	0.000 223	0.001 336	-0.002 395 ~ 0.002 841		
2017-12	0.000 187	0.000 241	-0.000 286 ~ 0.000 659	0.000 141	-0.000 045	2020-12	0.000 271	0.001 367	-0.002 407 ~ 0.002 950		

3 讨论

环境健康不佳不仅会造成人力资本的破坏,也会对社会生产力、私人或者公共资源利用效率等产

生一定的负面影响,良好的环境质量不仅有助于改善公共健康,而且对于缓解不平等、减少贫穷和社会冲突等也具有积极的意义^[5,16]. 饮用水源地作为高敏感环境风险受体,其重金属健康风险评价与分

析对于保护饮用水源地安全、践行水污染防治行动计划和推进“健康中国2030”国家战略等具有重要的意义^[9,12,13]。首先,受数据可获得性限制,本文仅分析了某水源地在2015~2017年间的重金属As、Cd、Cu、Hg、Ni和Zn健康风险时间变化特征,未能分析饮用水源地Cr、Pb和Mn等其他重金属健康风险,而环境污染物的健康风险具有累积效应^[4,6],后续可进一步增加其他重金属^[42]、有机污染物^[43]和激素^[44]等最近年份污染物的监测与分析,进而全面揭示饮用水源地污染物的健康风险水平以及时间变化特征;其次,本研究仅探索分析了ARIMA模型在饮用水源地重金属健康风险时间特征分析中的应用,虽然研究结果对于健康风险的管控具有一定的指导意义,但是关于时间特征研究的思路和方法众多,未来可以进一步尝试结合多项式函数^[45]、最小二乘支持向量机^[46]、灰色系统预测模型^[47]和神经网络预测模型^[48]等对饮用水源地重金属健康风险进行预测分析,进而进一步丰富其研究手段,也可可为其他环境要素的评价与分析提供更为全面的参考借鉴。最后,本文旨在构建基于时间序列的重金属健康风险分析体系,而基于地理学、管理学和医学等视角分析的饮用水源地环境健康风险分析也值得资源环境评价与管理者进一步思考,如饮用水源地重金属健康风险的情景模拟、不同时期饮用水环境暴露参数调查分析和风险特征因子治理效益分析等的相关研究^[5,21,23,49]。

4 结论

(1)在2015年1月至2018年12月期间,除Hg之外,该饮用水源地重金属Cd、Cu、As、Ni和Zn的平均浓度均低于地表水环境质量标准(GB 3838-2002)中的Ⅲ类水质的标准限值。同时,重金属浓度在监测期间也呈现出中、强变异程度,其变异系数均高于0.6,也表明重金属浓度在时间序列上存在一定程度的变化。

(2)该饮用水源地重金属的健康风险水平总体呈减少趋势,但是在连续时间的变化上具有一定的波动,2015年和2016年风险水平相对较高,As、Hg和Cd是该饮用水源地健康风险特征因子,同时与饮用水源地重金属非致癌风险相比,致癌风险需要重点关注,尤其是对于更容易受到重金属威胁的儿童,其综合致癌风险在数据监测期间一直高于0.0001。

(3)在数据监测期间,饮用水源地重金属As儿童致癌风险、综合致癌风险以及综合非致风险的总体时间变化特征表现出显著下降趋势,但是根据不

同年份的秩相关系数来看,2018年的As和Cd儿童致癌风险、综合致癌风险值均具有显著的增长趋势,尤其是儿童综合致癌风险,其Spearman秩相关系数为0.902098。

(4)ARIMA(3,1,3)模型可适用于预测饮用水源地重金属儿童综合致癌风险水平,预测结果表明,在对重金属没有继续进行监测的2019~2020年的饮用水源地重金属儿童综合致癌风险水平范围为0.000200~0.000302,平均值为0.000250,未来在重金属风险管控、水环境治理和规划方案制定等过程中需要重点关注。

参考文献:

- [1] Van Bruggen A H C, He M M, Shin K, *et al.* Environmental and health effects of the herbicide glyphosate[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **616-617**: 255-268.
- [2] Johnson-Thompson M C, Guthrie M P A J. Ongoing research to identify environmental risk factors in breast carcinoma [J]. *Cancer*, 2000, **88**(S5): 1224-1229.
- [3] 吕忠梅, 杨诗鸣. 控制环境与健康风险: 美国环境标准制度功能借鉴[J]. *中国环境管理*, 2017, **9**(1): 52-58.
Lv Z M, Yang S M. Controlling environmental and public health risk: lessons from environmental standard-making of the United States[J]. *Environmental Conformity Assessment*, 2017, **9**(1): 52-58.
- [4] Chen L, Zhou S L, Shi Y X, *et al.* Heavy metals in food crops, soil, and water in the Lihe River Watershed of the Taihu Region and their potential health risks when ingested[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **615**: 141-149.
- [5] 宋茂勇, 江桂斌. 加强环境与健康研究助力美丽中国建设[J]. *中国科学院院刊*, 2020, **35**(11): 1317-1320.
Song M Y, Jiang G B. Strengthen environmental and health research capacity to build a beautiful China[J]. *Bulletin of the Chinese Academy of Sciences*, 2020, **35**(11): 1317-1320.
- [6] Wongsasuluk P, Chotpantarat S, Siri Wong W, *et al.* Heavy metal contamination and human health risk assessment in drinking water from shallow groundwater wells in an agricultural area in Ubon Ratchathani province, Thailand [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2014, **36**(1): 169-182.
- [7] Smith K R, Ezzati M. How environmental health risks change with development: the epidemiologic and environmental risk transitions revisited [J]. *Annual Review of Environment and Resources*, 2005, **30**: 291-333.
- [8] Saha N, Rahman M S, Ahmed M B, *et al.* Industrial metal pollution in water and probabilistic assessment of human health risk[J]. *Journal of Environmental Management*, 2017, **185**: 70-78.
- [9] 张清华, 韦永著, 曹建华, 等. 柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价[J]. *环境科学*, 2018, **39**(4): 1598-1607.
Zhang Q H, Wei Y Z, Cao J H, *et al.* Heavy metal pollution of the drinking water sources in the Liujiang river basin, and related health risk assessments[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(4): 1598-1607.
- [10] Belkhiri L, Mouni L, Narany T S, *et al.* Evaluation of potential health risk of heavy metals in groundwater using the integration of indicator kriging and multivariate statistical methods [J]. *Groundwater for Sustainable Development*, 2017, **4**: 12-22.

- [11] Wen X H, Lu J, Wu J, *et al.* Influence of coastal groundwater salinization on the distribution and risks of heavy metals [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **652**: 267-277.
- [12] Gao J L, Liu Q L, Song L Z, *et al.* Risk assessment of heavy metals in pipe scales and loose deposits formed in drinking water distribution systems [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **652**: 1387-1395.
- [13] Niu Y, Jiang X, Wang K, *et al.* Meta analysis of heavy metal pollution and sources in surface sediments of Lake Taihu, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **700**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.134509.
- [14] 陈月芳, 孙善伟, 段小丽, 等. 兰州市西固区儿童饮用水重金属暴露及健康风险精细化评估[J]. *环境科学*, 2020, **41**(1): 262-272.
- Chen Y F, Sun S W, Duan X L, *et al.* Refined assessment of exposure and health risks of heavy metals in water for the children in Xigu District, Lanzhou [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(1): 262-272.
- [15] Ding H J, Ji H B, Tang L, *et al.* Heavy metals in the gold mine soil of the upstream area of a metropolitan drinking water source [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(3): 2831-2847.
- [16] Muhammad S, Shah M T, Khan S. Health risk assessment of heavy metals and their source apportionment in drinking water of Kohistan region, northern Pakistan [J]. *Microchemical Journal*, 2011, **98**(2): 334-343.
- [17] Hernández M C, Barletta L, Dogliotti M B, *et al.* Heavy metal removal by means of electrocoagulation using aluminum electrodes for drinking water purification [J]. *Journal of Applied Electrochemistry*, 2012, **42**(9): 809-817.
- [18] Barnaby R, Liefeld A, Jackson B P, *et al.* Effectiveness of table top water pitcher filters to remove arsenic from drinking water [J]. *Environmental Research*, 2017, **158**: 610-615.
- [19] 邓玉, 倪福全, 向璐, 等. 四川盆地西缘农村居民饮用水健康风险暴露参数的研究[J]. *农业环境科学学报*, 2013, **32**(2): 244-250.
- Deng Y, Ni F Q, Xiang L, *et al.* Research on the health risk assessment exposure factors of rural residents' drinking water in the western edge of the Sichuan Basin, China [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2013, **32**(2): 244-250.
- [20] 郑德凤, 苏琳, 李红英, 等. 随机模拟暴露参数的地下饮用水中污染物健康风险评估[J]. *地下水*, 2015, **37**(6): 87-90.
- Zheng D F, Su L, Li H Y, *et al.* Health risk assessment of the pollutants in the underground drinking water based on the stochastic simulated exposure parameters [J]. *Underground Water*, 2015, **37**(6): 87-90.
- [21] Rehman K, Fatima F, Waheed I, *et al.* Prevalence of exposure of heavy metals and their impact on health consequences [J]. *Journal of Cellular Biochemistry*, 2018, **119**(1): 157-184.
- [22] Zhao L Y, Gong D D, Zhao W H, *et al.* Spatial-temporal distribution characteristics and health risk assessment of heavy metals in surface water of the Three Gorges Reservoir, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **704**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.134883.
- [23] 姬超, 侯大伟, 李发志, 等. 耕地土壤重金属健康风险空间分布特征[J]. *环境科学*, 2020, **41**(3): 1440-1448.
- Ji C, Hou D W, Li F Z, *et al.* Assessment and spatial characteristics analysis of human health risk of heavy metals in cultivated soil [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(3): 1440-1448.
- [24] Kumar J A, Abirami S. Aspect-based opinion ranking framework for product reviews using a spearman's rank correlation coefficient method [J]. *Information Sciences*, 2018, **460-461**: 23-41.
- [25] Wang Q, Dong W, Yang K, *et al.* Temporal and spatial analysis of COVID-19 transmission in China and its influencing factors [J]. *International Journal of Infectious Diseases*, 2021, **105**: 675-685.
- [26] Leiva-Salinas C, Quigg M, Elias W J, *et al.* Earlier seizure onset and longer epilepsy duration correlate with the degree of temporal hypometabolism in patients with mesial temporal lobe sclerosis [J]. *Epilepsy Research*, 2017, **138**: 105-109.
- [27] Blasch G, Spengler D, Hohmann C, *et al.* Multitemporal soil pattern analysis with multispectral remote sensing data at the field-scale [J]. *Computers and Electronics in Agriculture*, 2015, **113**: 1-13.
- [28] Bio A, Vieira N, Costa M J, *et al.* Assessment of habitat and water quality of the Portuguese Febras River and one of its tributaries [J]. *Limnetica*, 2011, **30**(1): 103-116.
- [29] Shadab A, Ahmad S, Said S. Spatial forecasting of solar radiation using ARIMA model [J]. *Remote Sensing Applications: Society and Environment*, 2020, **20**, doi: 10.1016/j.rsase.2020.100427.
- [30] Salman A G, Kanigoro B. Visibility forecasting using autoregressive integrated moving average (ARIMA) models [J]. *Procedia Computer Science*, 2021, **179**: 252-259.
- [31] Ramos P, Santos N, Rebelo R. Performance of state space and ARIMA models for consumer retail sales forecasting [J]. *Robotics and Computer-Integrated Manufacturing*, 2015, **34**: 151-163.
- [32] 张杰, 郭西亚, 曾野, 等. 太湖流域河流沉积物重金属分布及污染评估[J]. *环境科学*, 2019, **40**(5): 2202-2210.
- Zhang J, Guo X Y, Zeng Y, *et al.* Spatial distribution and pollution assessment of heavy metals in river sediments from Lake Taihu Basin [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(5): 2202-2210.
- [33] Li Y Z, Chen H Y, Teng Y G. Source apportionment and source-oriented risk assessment of heavy metals in the sediments of an urban river-lake system [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **737**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140310.
- [34] 向明灯, 于云江, 李琴, 等. 太湖饮用水源地附近居民暴露参数[J]. *环境科学研究*, 2012, **25**(2): 179-185.
- Xiang M D, Yu Y J, Li Q, *et al.* Exposure factors of residents around Taihu Lake drinking water source site [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2012, **25**(2): 179-185.
- [35] Chai N P, Yi X, Xiao J, *et al.* Spatiotemporal variations, sources, water quality and health risk assessment of trace elements in the Fen River [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **757**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.143882.
- [36] Bhowmik A K, Alamdar A, Katsoyiannis I, *et al.* Mapping human health risks from exposure to trace metal contamination of drinking water sources in Pakistan [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **538**: 306-316.
- [37] 师环环, 潘羽杰, 曾敏, 等. 雷州半岛地下水重金属来源解析及健康风险评估[J]. *环境科学*, 2021, **42**(9): 4246-4256.
- Shi H H, Pan Y J, Zeng M, *et al.* Source analysis and health risk assessment of heavy metals in groundwater of Leizhou Peninsulay [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(9): 4246-4256.
- [38] Gautheir T D. Detecting trends using spearman's rank correlation coefficient [J]. *Environmental Forensics*, 2001, **2**(4): 359-362.
- [39] 高凤杰, 马泉来, 韩文文, 等. 黑土丘陵区小流域土壤有机

- 质空间变异及分布格局[J]. 环境科学, 2016, **37**(5): 1915-1922.
- Gao F J, Ma Q L, Han W W, *et al.* Spatial variability and distribution pattern of soil organic matter in a mollisol watershed of China[J]. Environmental Science, 2016, **37**(5): 1915-1922.
- [40] 陈月芳, 许锦荣, 段小丽, 等. 某焦化企业周边儿童重金属经口综合暴露健康风险[J]. 中国环境科学, 2019, **39**(11): 4865-4874.
- Chen Y F, Xu J R, Duan X L, *et al.* Health risks of cumulative oral exposure to heavy metals for children living around a coking enterprise[J]. China Environmental Science, 2019, **39**(11): 4865-4874.
- [41] Hikichi S E, Salgado E G, Beijo L A. Forecasting number of ISO 14001 certifications in the Americas using ARIMA models[J]. Journal of Cleaner Production, 2017, **147**: 242-253.
- [42] Chan M W H, Hasan K A, Balthazar-Silva D, *et al.* Evaluation of heavy metal pollutants in salt and seawater under the influence of the Lyari River and potential health risk assessment[J]. Marine Pollution Bulletin, 2021, **166**, doi: 10.1016/j.marpolbul.2021.112215.
- [43] Li Z K, Chang F Y, Shi P, *et al.* Occurrence and potential human health risks of semi-volatile organic compounds in drinking water from cities along the Chinese coastland of the Yellow Sea [J]. Chemosphere, 2018, **206**: 655-662.
- [44] Yu N Y, Wang X X, Zhang B B, *et al.* Distribution of perfluorooctane sulfonate isomers and predicted risk of thyroid hormonal perturbation in drinking water[J]. Water Research, 2015, **76**: 171-180.
- [45] Hernandez-Matamoros A, Fujita H, Hayashi T, *et al.* Forecasting of COVID19 per regions using ARIMA models and polynomial functions[J]. Applied Soft Computing, 2020, **96**, doi: 10.1016/j.asoc.2020.106610.
- [46] Singh S, Parmar K S, Makkhan S J S, *et al.* Study of ARIMA and least square support vector machine(LS-SVM) models for the prediction of SARS-CoV-2 confirmed cases in the most affected countries[J]. Chaos, Solitons & Fractals, 2020, **139**, doi: 10.1016/j.chaos.2020.110086.
- [47] Wang Q, Li S Y, Li R R, *et al.* Forecasting U. S. shale gas monthly production using a hybrid ARIMA and metabolic nonlinear grey model[J]. Energy, 2018, **160**: 378-387.
- [48] Matyjaszek M, Fernández P R, Krzemień A, *et al.* Forecasting coking coal prices by means of ARIMA models and neural networks, considering the transgenic time series theory [J]. Resources Policy, 2019, **61**: 283-292.
- [49] Shi P, Zhou S C, Xiao H X, *et al.* Toxicological and chemical insights into representative source and drinking water in eastern China[J]. Environmental Pollution, 2018, **233**: 35-44.

CONTENTS

Disinfection By-products in Drinking Water and Their Control Strategies: A Review	CHU Wen-hai, XIAO Rong, DING Shun-ke, <i>et al.</i> (5059)
Advances in Mechanism and Influencing Factors Affecting Hydrogen Sulfide Adsorption by Biochar	XU Qi-yong, LIANG Ming-shen, XU Wen-jun, <i>et al.</i> (5086)
Effect of Vegetation Coverage on the Temporal and Spatial Distribution of PM _{2.5} Concentration in China's Eight Major Economic Regions from 1998 to 2016	YANG Yu-lian, YANG Kun, LUO Yi, <i>et al.</i> (5100)
Evolution and Potential Source Apportionment of Atmospheric Pollutants of Two Heavy Haze Episodes During the COVID-19 Lockdown in Beijing, China	ZHAO De-long, TIAN Ping, ZHOW Wei, <i>et al.</i> (5109)
Characteristics and Origin Analysis of Air Pollution During the Spring Festival in Linfen, Fenwei Plain	LIU Wei-jie, HU Tian-peng, MAO Yao, <i>et al.</i> (5122)
Spatio-Temporal Characteristics and Potential Source Areas of Seasonal Atmospheric Pollution in Shijiazhuang	NIE Sai-sai, WANG Shuai, CUI Jian-sheng, <i>et al.</i> (5131)
Impact of Air Humidity on PM _{2.5} Mass Concentration and Visibility During Winter in Tianjin	DING Jing, TANG Ying-xiao, HAO Tian-yi, <i>et al.</i> (5143)
Seasonal Variation and Source Apportionment of Carbonaceous Species in PM _{2.5} in Chengde	HE Bo-wen, NIE Sai-sai, WANG Shuai, <i>et al.</i> (5152)
Volatile Organic Compounds (VOCs) Emission Inventory from Domestic Sources in China	LIANG Xiao-ming, CHEN Lai-guo, SHEN Guo-feng, <i>et al.</i> (5162)
Characteristics of Industrial Volatile Organic Compounds (VOCs) Emission in China from 2011 to 2019	LIU Rui-yuan, ZHONG Mei-fang, ZHAO Xiao-ya, <i>et al.</i> (5169)
VOCs Emission Inventory and Uncertainty Analysis of Industry in Qingdao Based on Latin Hypercube Sampling and Monte Carlo Method	XU Wan-ying, FU Fei, LÜ Jian-hua, <i>et al.</i> (5180)
Emission Characteristics and Environment Impacts of VOCs from Typical Rubber Manufacture	WANG Hai-lin, XIN Guo-xing, ZHU Li-min, <i>et al.</i> (5193)
Pollution Characteristics and Ozone Formation Potential of Ambient VOCs in Different Functional Zones of Shenyang, China	KU Ying-ying, REN Wan-hui, SU Cong-cong, <i>et al.</i> (5201)
Characteristics of BTEX and Health Risk Assessment During Typical Pollution Episodes in Summer and Winter in Tianjin Urban Area	HAN Ting-ting, LI Ying-ruo, PU Wei-wei, <i>et al.</i> (5210)
Atmospheric NH ₃ Emission Inventory and Analysis of the Driving Force in Zhengzhou City	JI Yao, WANG Chen, LU Xuan, <i>et al.</i> (5220)
Interactive Effects of the Influencing Factors on the Changes of O ₃ Concentrations Based on GAMs Model in Chengdu	ZHANG Ying, NI Chang-jian, FENG Xin-yuan, <i>et al.</i> (5228)
Spatial Variation Characteristics and Remote Sensing Retrieval of Total Suspended Matter in Surface Water of the Yangtze River	LI Jian-hong, HUANG Chang-chun, ZHA Yong, <i>et al.</i> (5239)
Spatial Distribution Characteristics of the Spectrum, Source Analysis, and Nitrogen Response of Dissolved Organic Matter in Summer Rainfall in the Hebei Province	ZHANG Zi-wei, ZHOU Shi-lei, CHEN Zhao-ying, <i>et al.</i> (5250)
Distribution and Influencing Factors of DOM Components in Urban and Suburban Polluted Rivers	ZHU Yi, CHEN Hao, DING Guo-ping, <i>et al.</i> (5264)
Composition and Distribution of Microplastics in the Water and Sediments of Urban Rivers in Beijing	HU Jia-min, ZUO Jian-e, LI Di, <i>et al.</i> (5275)
Nontarget Screening and Ecological Risk Assessment of Polar Organic Pollutants in Surface Water on the West Bank of Taihu Lake	LU Xin-yan, WANG Fei, ZHANG Li-min, <i>et al.</i> (5284)
Optimization of Extraction Methods and Distribution Characteristics of Antibiotics and Metabolites in Sediments of a River Water-Groundwater Interaction Zone	LI Yu-qiong, TONG Lei, YAN Han, <i>et al.</i> (5294)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Sediments of Desilting Demonstration Area in Baiyangdian Lake	WANG Tong-fei, ZHANG Wei-jun, LI Li-qing, <i>et al.</i> (5303)
Dynamic Mechanisms of Groundwater Quality by Residual Contaminants of the Tanghe Wastewater Reservoir in Xiong'an New Area	ZHANG Zhi-xiong, WANG Shi-qin, ZHANG Yi-zhang, <i>et al.</i> (5312)
Analysis and Prediction of Health Risk from Heavy Metals in Drinking Water Sources Based on Time Series Model	JI Chao, HOU Da-wei, XIE Li, <i>et al.</i> (5322)
Spatial Distribution, Risk, and Influencing Factors of River Water-Sediment Heavy Metals in the Lower Reaches of the Qianhe River	GAO Yu, WANG Guo-lan, JIN Zi-han, <i>et al.</i> (5333)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of Dissolved Heavy Metals in Chaohu Lake Basin During the Wet Season	HE Miao, LIU Gui-jian, WU Lei, <i>et al.</i> (5346)
Impact of Enclosure Culture on Heavy Metal Content in Surface Sediments of Hongze Lake and Ecological Risk Assessment	ZI Xin-yuan, ZHANG Ming, GU Xiao-hong, <i>et al.</i> (5355)
Natural Water Chemistry Change in the Surface Water of Chengdu and Impact Factors	XU Qiu-jin, LAI Cheng-yue, DING Yao, <i>et al.</i> (5364)
Hydrochemical Characteristics and Controlling Factors of Groundwater in the Leizhou Peninsula	PENG Hong-xia, HOU Qing-qin, ZENG Min, <i>et al.</i> (5375)
Land-based Nitrogen Pollution Source Structure and Spatial Distribution in Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area	DONG Si-qi, HUANG Chong, <i>et al.</i> (5384)
Output Characteristics of Nitrogen and Phosphorus from Non-Point Source Pollution of Typical Land Use in A Micro-Watershed in Hilly Red Soil Region	FANG Zhi-da, SU Jing-jun, ZHAO Hong-tao, <i>et al.</i> (5394)
Effects of Different Fertilization Patterns on Nitrogen Leaching Loss from Paddy Fields Under Reduced Nitrogen	JIANG Hai-bin, ZHANG Ke-qiang, ZOU Hong-tao, <i>et al.</i> (5405)
Effects of <i>Spartina alterniflora</i> Invasion on Soil Phosphorus Forms in the Jiaozhou Bay Wetland	SHA Meng-qiao, CHAI Na, ZHAO Hong-tao, <i>et al.</i> (5414)
Contrasting Analysis of Microbial Community Composition in the Water and Sediments of the North Canal Based on 16S rRNA High-Throughput Sequencing	PENG Ke, DONG Zhi, DI Yan-ming, <i>et al.</i> (5424)
Characteristics of Phosphorus Adsorption in Aqueous Solution by Si-modified Peanut Shell Biochar	ZHAO Min, ZHANG Xiao-ping, WANG Liang-rong, <i>et al.</i> (5433)
Adsorption Characteristics of Pb(II) on Eucalyptus Biochar Modified by Potassium Permanganate	MO Zhen-lin, ZENG Hong-hu, LIN Hua, <i>et al.</i> (5440)
Preparation of Mixed Metal Oxide/Carbon Composites and Its Adsorption Performance for Pb(II)	LU Yu-shen, ZONG Li, YU Hui, <i>et al.</i> (5450)
Fabrication of Supported Titanium Xerogel Adsorbent and Performance Evaluation for Arsenite Removal	SUN Ye-yang, ZHOU Chang, GAN Yong-hai, <i>et al.</i> (5460)
Nitrite Regulation During Start-up of Combined Partial Nitrification and ANAMMOX Process	ZUO Fu-min, ZHENG Rui, SUI Qian-wen, <i>et al.</i> (5472)
Effects of Biochar and Straw Return on Soil Aggregate and Organic Carbon on Purple Soil Dry Slope Land	DENG Hua, GAO Ming, LONG Yi, <i>et al.</i> (5481)
Response of Soil Organic Carbon Content in Different Slope Positions to Fertilization Management in Purple Soil Sloping Fields	XU Man, YU Luo, WANG Fu-hua, <i>et al.</i> (5491)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals in the Eastern Mountainous Area of the Nanyang Basin	LAI Shu-ya, DONG Qiu-yao, SONG Chao, <i>et al.</i> (5500)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Suburban Farmland Soil	ZHANG Xiu-xiu, LU Xiao-li, WEI Yu-chen, <i>et al.</i> (5510)
Accumulation Characteristics and Dietary Exposure Estimation of Heavy Metals in Vegetables from the Eastern Coastal Region of China	SUN Shuai, GENG Ning-bo, GUO Cui-cui, <i>et al.</i> (5519)
Security Risk and Influencing Factors of Agro-Products in Farmland Soil Around a Typical Mining Smelter	HUO Yan-hui, WANG Mei-e, XIE Tian, <i>et al.</i> (5526)
Cd Pollution and Safe Planting Zoning in Paddy Soils: A Case Study in a District of Chongqing	CAO Shu-zhen, MU Yue, CUI Jing-xin, <i>et al.</i> (5535)
Characteristics and Influencing Factors of Cadmium Accumulation in Different Rice Varieties Under Cadmium Contaminated Field Conditions	WANG Yu-hao, YANG Li, KANG Yu-chen, <i>et al.</i> (5545)
Effects of Nano-membrane on Aerobic Composting Process and Odor Emission of Livestock Manure	LI Yong-shuang, SUN Bo, CHEN Ju-hong, <i>et al.</i> (5554)