

黄河中游某省地表饮用水水源地重金属时空分布特征与健康风险评估

王璐^{1,2}, 李超¹, 昌盛², 涂响², 王山军², 戴波阳², 杨育博²

(1. 太原理工大学 环境与生态学院, 山西 晋中 030600;

2. 中国环境科学研究院 生态环境部饮用水水源地保护重点实验室, 北京 100012)

摘要:以黄河中游某省 2018—2022 年 17 个地级地表饮用水水源地的月度监测数据为基础,采用克里金插值法、重金属污染指数(HPI)法、内梅罗指数(NI)法和污染程度(CD)法开展重金属指标时空分布特征和污染水平分析,采用相关性分析和主成分分析(PCA)研究重金属的来源,通过蒙特卡罗模拟法对重金属进行口服摄入健康风险评估.研究结果显示,水源地重金属的平均质量浓度排序为 $\rho_{Ba} > \rho_B > \rho_{Fe} > \rho_{Mn} > \rho_{Mo} > \rho_{Ni} > \rho_V > \rho_{Co} > \rho_{Pb} > \rho_{As} > \rho_{Sb} > \rho_{Be}$. Fe、Mn、Pb、Mo、Co、Be、B、Sb 和 V 的数据具有较高变异性(111.66%~330.68%). Fe、Mn、Be、Mo、Co、B 和 Ni 的平均质量浓度在该省北部的水源地(朔州市和大同市)显示出较高的水平,在中部(晋中市)的水源地最低,而 Ba 的平均质量浓度在晋中市的水源地较高,As 的平均质量浓度在全省的 17 个水源地基本一致. 2018—2022 年重金属年平均质量浓度变化幅度较小(18.64%~74.23%). HPI 指数(平均值 2.14)显示,该省重金属处于极低污染水平($HPI < 15$). Pearson 相关性分析结果显示,As 与 Ba、Mo 与 Pb、Co、B、Ni 和 V 之间有强烈的正相关性($p < 0.01$, 0.27~0.63),说明它们有共同或者相似的来源. PCA 结果显示,工农业和交通运输等人类活动是重金属的主要来源(28.5%),其次是地质背景(11.7%)和矿物开采活动(11.4%). 口服摄入的健康风险评价结果表明,重金属没有非致癌风险和致癌风险,但 95%分位值显示,As 对儿童有一定的致癌风险(1.09×10^{-4}). 同时,在极端条件下 As、Co、Mo、Sb 和 V 对成人(0.02%~0.25%)和儿童(0.51%~5.60%)有低水平的致癌风险,需要对 As、Mo、Sb、V、Co 重点关注.

关键词: 饮用水水源地; 重金属; 时空分布; Pearson 相关性分析; 健康风险评估

中图分类号: X8

文献标志码: A

文章编号: 1000-2367(2025)05-0070-11

重金属通过自然过程和人为活动释放到环境中,以不同的形式存在于地球水环境和人类的食物链中^[1],如 Hg 在水环境中的形态有总汞(THg)、活性汞(RHg)、溶解汞(DHg)、甲基汞(TMeHg)等^[2]. 美国国家环境保护局(USEPA)将 As、Cd、Pb、Cr、Cu、Hg 和 Ni 列为主要关注的重金属,主要是因为它们在水环境中的浓度相对较高,而且会对人体健康产生影响^[3]. 饮用水水源地在保障区域生产生活供水,改善和提升区域饮用水质量等方面起到重要作用^[4]. 研究发现,不同地区的饮用水水源地重金属有不同程度的污染,如兰州市西固区饮用水中 Cr 的污染比 As、Pb、Cd 严重,但没有超标情况^[5],陆浑水库饮用水源地的 Al 和 Mo 分别超标 4.35%和 100%^[6].

收稿日期: 2024-11-08; **修回日期:** 2025-01-09.

基金项目: 国家重点研发计划项目(2021YFC3200804-02).

作者简介: 王璐(2001—),女,河南南阳人,太原理工大学硕士研究生,研究方向为污染物环境行为与风险评估, E-mail: wanglubkp1212@163.com.

通信作者: 李超,太原理工大学副研究员,博士, E-mail: lichao45001@163.com; 王山军, E-mail: wangs@cjraes.org.cn.

引用本文: 王璐,李超,昌盛,等.黄河中游某省地表饮用水水源地重金属时空分布特征与健康风险评估[J].河南师范大学学报(自然科学版),2025,53(5):70-80.(Wang Lu, Li Chao, Chang Sheng, et al. Characteristics of spatial and temporal distribution of heavy metals and health risk assessment of surface drinking water sources in a province in the middle reaches of the Yellow River[J]. Journal of Henan Normal University(Natural Science Edition), 2025, 53(5): 70-80. DOI:10.16366/j.cnki.1000-2367.2024.11.08.0001.)

可以通过来源解析和污染状况评价开展饮用水水源地的重金属研究^[7].重金属的主要来源有地质背景等自然因素和采矿、工业生产、城市交通、农业等人类活动因素^[8].相关性分析和主成分分析(PCA)用于识别重金属的来源^[9].相关性分析通过相关系数来确定重金属之间的显著相关性^[10].主成分分析使用一种降维的统计方法,将多个变量信息压缩为少数几个能够反映原问题特征的综合变量,能够最大限度地保留原始信息,并对多项变量进行综合与简化^[11].重金属的污染状况可以用重金属污染指数(*HPI*)法、内梅罗指数(*NI*)法和污染程度(*CD*)法等评价.重金属污染指数法是一种基于加权算术平均值,结合多个参数综合评价水体中各种重金属元素对水污染影响的有效方法^[12].内梅罗污染指数法可用于多种污染源的水污染评价,可以很好考虑到各污染物平均污染水平和最大污染状况^[13].污染程度法用作估算金属污染程度的参考^[14].但单一的方法具有一定的局限性,综合使用 3 种方法可以全面地评价研究区域重金属的污染状况,比如 WEN 等^[15]用这 3 种方法评价莱州湾重金属的污染水平,结果显示 *HPI* 指数评价的污染情况比 *NI* 和 *CD* 指数的评价结果更加严重,考虑到水质最差的情况,采用 *HPI* 指数的评价结果作为最终的评价结果.健康风险评估是表征重金属对人体健康危害程度的评价方法^[16],一般采用 USEPA 推荐的模型进行^[17].

黄河中游某省煤炭储量占全国煤炭总储量的 1/4^[18],煤矿的大量开采导致了水土流失等环境问题,工业污水和农业灌溉的增加也会导致水质恶化,这可能会加重水环境中重金属的污染.研究显示^[19],该省部分地表水重金属有一定的污染,这可能会对地表饮用水水源地中的重金属产生影响.但是,以往有关该省重金属分布、健康风险评估的研究主要集中在土壤领域^[20].因此,从人体健康角度来看,对该省地表饮用水源地中的重金属进行污染水平评价、健康风险评估具有重要意义.

本研究选取黄河中游某省为研究区域,统计了 2018—2022 年 17 个地表饮用水水源地的 12 个重金属指标,包括 Fe、Mn、As、Pb、Mo、Co、Be、B、Sb、Ni、Ba 和 V,分析其时空变化特征,使用 *HPI* 法、*NI* 法和 *CD* 法这 3 种方法分析研究区域的重金属指标的污染水平,探究重金属指标之间的 Pearson 相关性,通过主成分分析进行源解析,使用蒙特卡罗模拟法评估重金属对不同年龄段人体的口服摄入健康风险.

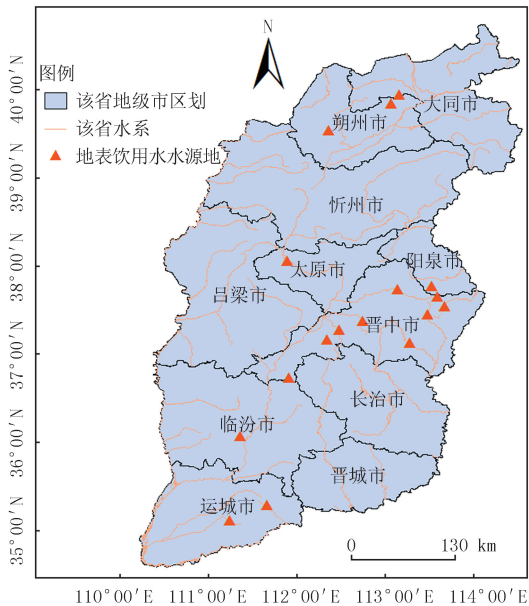
1 材料与方法

1.1 研究区域概况

黄河中游某省位于华北地区的西部,黄土高原东边.全省水资源总量 207.91 亿 m³,地表水占 74.96%^[21].该省是黄河与海河两大流域的分水岭,省内黄河流域面积占全省面积的 62.2%,海河流域占全省面积的 37.8%.该省也是中国重要的农业区,农业实践会导致重金属的富集^[22].本研究选择的 17 个地级城市地表饮用水水源地位置见图 1.

1.2 数据来源

依托黄河中部某省饮用水水源地环境状况年度评估工作,本研究收集了该省 2018—2022 年的 17 个地表饮用水水源地 12 个重金属指标的数据.样品的采集、储存、分析、质量控制和原始数据记录按照 HJ 91.2-2022《地表水环境监测技术规范》^[23]进行,相关水质监测方法、水质数据均符合质量控制要求,由中国环境监测总站提供,数据准确、可靠.因部分城市供水格局调整,部分水源地被撤销或变更,导致饮用水水源地的数量每年有所不同.为详细研究每个水源地 12 个指标的时空趋势,本研究选择 2018 年至 2022 年 17 个固定不变的饮



注:该图基于审图号GS(2019)3333地图制作,底图无修改.

图1 地表饮用水水源地位置示意图

Fig.1 Map of the location of drinking water sources

用水源地,开展数据的统计与分析.

1.3 计算方法

1.3.1 污染水平

采用重金属污染指数(HPI)、内梅罗指数(NI)和污染程度(CD)这 3 种指标评价重金属的污染水平.计算式分别如式(1)、(2)、(3)所示.

$$HPI = \frac{\sum_{i=1}^m (\frac{M_i}{S_i} \times 100) \times \frac{1}{S_i}}{\sum_{i=1}^m \frac{1}{S_i}}, \tag{1}$$

$$NI = \sqrt{\frac{(\frac{M_i}{S_i})_{\text{mean}}^2 + (\frac{M_i}{S_i})_{\text{max}}^2}{2}}, \tag{2}$$

$$CD = \sum_{i=1}^m \frac{M_i}{S_i}, \tag{3}$$

式中, M_i 为重金属 i 质量浓度(mg/L); S_i 为重金属 i 在 GB 3838—2002《地表水环境质量标准》中的Ⅲ类质量浓度阈值(mg/L); m 为重金属的数量. HPI 、 NI 和 CD 的分级标准参考了王亮等^[24]的研究,具体内容见表 1.

表 1 污染水平的分级标准

Tab. 1 Grading criteria for pollution levels

指数	污染水平	分级	数值范围	指数	污染水平	分级	数值范围	指数	污染水平	分级	数值范围
HPI	低污染	I	$HPI < 15$	NI	低污染	I	$NI < 1.0$	CD	低污染	I	$CD < 6$
	中度污染	II	$15 \leq HPI \leq 30$		轻微污染	II	$1.0 \leq NI < 2.5$		中度污染	II	$6 \leq CD < 12$
	中重度污染	III	$30 < HPI \leq 100$		中度污染	III	$2.5 \leq NI < 7.0$		大量污染	III	$12 \leq CD < 24$
	重污染	IV	$HPI > 100$		重污染	IV	$NI \geq 7.0$		非常高的污染	IV	$CD \geq 24$

1.3.2 健康风险评估

地表水中重金属主要通过经口摄入(包括直接饮水和间接饮水)侵害人体健康.本研究地表水重金属经口摄入健康风险评估采用 USEPA 水环境健康风险评估推荐的模型进行,由于生理和行为的差异,将人群分为两组(儿童和成人).

$$HQ_{ij} = \frac{10^{-6} \times MEC_{ij} \times IR}{BW \times RfD_i \times ED}, \tag{4}$$

$$HI = \sum_{i=1}^{m'} \sum_{j=1}^n HQ_{ij}, \tag{5}$$

$$CR = \sum_{i=1}^{m'} \sum_{j=1}^n \frac{1 - \exp(-\frac{IR \times MEC_{ij} \times SF_i}{BW \times ED})}{ED}, \tag{6}$$

式中, HQ_{ij} 为化学物质 i 中非致癌物 j 的健康危害商, MEC_{ij} 为 j 的质量浓度(mg/L), IR 为水的摄入量(L/d), BW 为体质量(kg), ED 为人口的平均预期寿命(a), RfD_i 为 i 的参考剂量[mg/(kg · d)]. HI 为非致癌指数, CR 是年度致癌风险系数(a^{-1}), SF_i 为 i 的致癌强度系数[(kg · d)/mg]. m' 为化学物质数量, n 为非致癌物数量.

阈值范围是根据 USEPA 推荐的进行划分,不可接受的非致癌症风险阈值为 1;癌症风险等级标准为:极低风险($CR \leq 1 \times 10^{-6}$);低风险($1 \times 10^{-6} < CR \leq 1 \times 10^{-4}$);中等风险($1 \times 10^{-4} < CR \leq 1 \times 10^{-3}$);高风险($1 \times 10^{-3} < CR \leq 0.1$);极高风险($CR > 0.1$).

评估过程中参数选择和采样过程具有不确定性,因此采用蒙特卡罗模拟法,使用统计参数模拟危险物质及各自的参数.首先在 Oracle Crystal Ball 检验重金属的分布类型.之后通过 Oracle Crystal Ball 进行模拟.参数与重金属质量浓度的分布见附录表 S1.

1.4 统计分析

数据分析采用 SPSS 24.0 版本,用于对 12 个指标的数据进行描述性统计,包括最大值、最小值、平均值、中位值、标准偏差和变异系数.使用 ArcGIS 10.4 软件绘制水源地理位置示意图和克里金浓度插值图.箱线图、热图和主成分分析图的绘制采用 OriginPro 2021.在 Microsoft Excel 2013 中加载 Oracle Crystal Ball® 11.1.2.4,共进行 10 000 次蒙特卡罗模拟,置信水平为 95%.

2 结果与讨论

2.1 重金属的时空变化

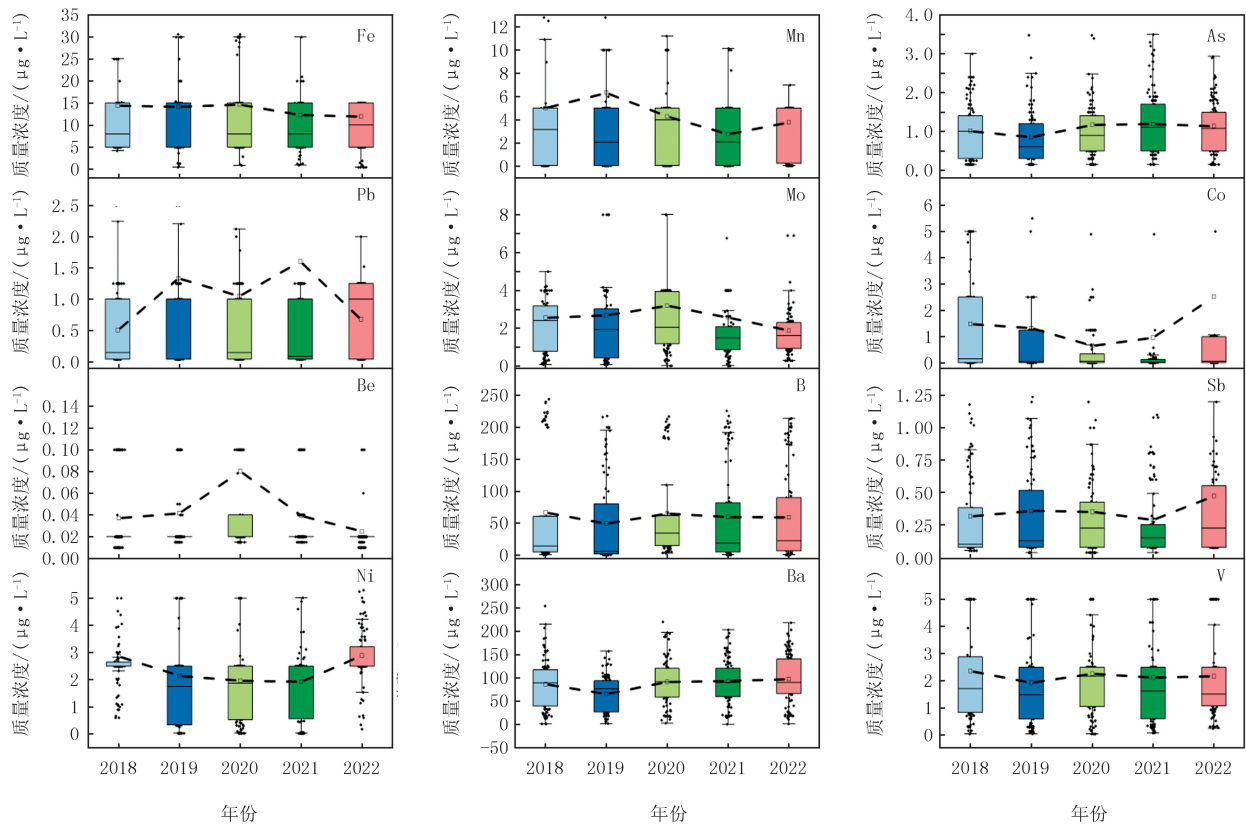
对 2018 至 2022 年 12 个重金属指标的数据进行统计(表 2).重金属检出率介于 45.39%~53.73%,平均质量浓度排序为 ρ_{Ba} (86.95 $\mu\text{g/L}$)> ρ_B (60.26 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{Fe} (13.48 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{Mn} (4.36 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{Mo} (2.59 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{Ni} (2.35 $\mu\text{g/L}$)> ρ_V (2.16 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{Co} (1.41 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{Pb} (1.04 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{As} (1.08 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{Sb} (0.36 $\mu\text{g/L}$)> ρ_{Be} (0.04 $\mu\text{g/L}$).根据《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002)^[26]中的Ⅲ类标准限值,所有重金属指标均未超标.Ba、As 和 Ni 的变异系数分别为 55.91%、86.48%和 88.85%,呈现出较低的变异性,Fe、Mn、Pb、Mo、Co、Be、B、Sb 和 V 的变异系数范围为 111.66%~330.68%,属于高变异,说明人类活动对其空间分布的影响很大.

表 2 2018—2022 年 12 个重金属指标的数据统计结果
Tab. 2 Statistical results for 12 indicators in 2018—2022

指标	平均值/ ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)	中位值/ ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)	最大值/ ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)	最小值/ ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)	标准偏差	变异系数/%	检出率/%	地表水Ⅲ类标准值 ^[26] / ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)
Fe	13.48	8.00	200.00	0.41	2.10×10^{-2}	155.66	51.37	300.00
Mn	4.36	4.00	100.00	0.06	9.22×10^{-3}	211.30	51.18	100.00
As	1.08	0.96	11.40	0.15	9.30×10^{-4}	86.48	53.73	50.00
Pb	1.04	0.15	30.00	0.05	3.45×10^{-3}	330.68	50.69	50.00
Mo	2.59	1.76	50.00	0.03	4.23×10^{-3}	163.11	49.61	70.00
Co	1.41	0.06	60.00	0.01	4.07×10^{-3}	287.95	53.73	100.00
Be	0.04	0.02	1.20	0.01	9.98×10^{-5}	227.08	53.63	2.00
B	60.26	20.00	332.00	0.63	7.65×10^{-2}	126.95	45.39	500.00
Sb	0.36	0.17	3.81	0.04	4.79×10^{-4}	133.68	53.53	5.00
Ni	2.35	2.50	20.00	0.03	2.09×10^{-3}	88.85	49.31	20.00
Ba	86.95	86.50	254.00	0.50	4.86×10^{-2}	55.91	53.63	700.00
V	2.16	1.62	34.60	0.04	2.42×10^{-3}	111.66	53.73	50.00

从水源地的克里金平均质量浓度插值图中可以看出(附录图 S1),Fe、Mn、Co 和 B 在朔州市、大同市、临汾市和运城市的 6 个水源地中的平均质量浓度远高于晋中市、太原市和阳泉市的 11 个水源地,晋中市的水源地平均质量浓度最低.与此相反的是,Ba 的平均质量浓度在晋中市、太原市和阳泉市的水源地最高,而在临汾市和运城市的最低.Be、Mo、Pb 和 Ni 在朔州市和大同市的 3 个水源地平均质量浓度高于其他水源地,晋中市的水源地平均质量浓度较低.Sb 的平均质量浓度在朔州市、大同市、太原市和 2 个晋中市的水源地显示出较高的水平.V 的平均质量浓度在晋中市东部的 4 个水源地最低.17 个水源地的 As 平均质量浓度整体保持一致,平均质量浓度为 0.27~1.53 $\mu\text{g/L}$.2018—2022 年重金属的年度平均质量浓度变化显示(图 2),As 的平均质量浓度较为稳定,保持在 1 $\mu\text{g/L}$ 的水平.Be 和 Mo 的平均质量浓度都在 2020 年达到峰值.Fe 的平均质量浓度整体呈下降趋势.Ni 的平均质量浓度在 2021 年降至最低,在 2022 年升至最高.B 的平均质量浓度在 2020 年至 2022 年呈现出下降趋势,下降幅度为 9.08%.Ba 的平均质量浓度在此期间反而呈现出上升趋势.Sb 的平均质量浓度在 2022 年上升至峰值(0.47 $\mu\text{g/L}$).整体而言,Fe、Mn、Be、Mo、Co、B 和 Ni 的平均质量浓度在该省北部(朔州市、大同市)的水源地显示出较高水平,在该省中部(晋中市)的水源地最低,而 Ba

的平均质量浓度在晋中市的水源地最高,As 的平均质量浓度在全省的水源地基本一致.5 年来,重金属的年平均质量浓度变化幅度在 18.64%~74.23%,变化较小.



注:箱体数据范围为25%~75%,须线为1.5IQR范围,“□”表示平均值,“—”表示中位数,虚线表示平均值连接线.

图2 Fe、Mn、As、Pb、Mo、Co、Be、B、Sb、Ni、Ba和V的年度变化特征
Fig.2 Characterization of annual changes in Fe,Mn,As,Pb,Mo,Co,Be,B,Sb,Ni,Ba and V

2.2 重金属的污染水平

在对该省 12 种重金属进行统计分析的基础上,计算了重金属的 *HPI*、*CD* 和 *NI* 指数,评价重金属的污染水平.*HPI* 指数范围为 0.17~41.31,平均值为 2.14,98.63%的数据处于低污染范围,1.08%、0.29%的数据分别处于中度和中重度污染范围.*CD* 指数范围为 0.09~3.17,平均值为 0.35,100.00%的数据处于低污染水平.*NI* 指数的范围为 0.01~0.73,平均值为 0.09,所有的数据均处于低污染范围.由此可见,该省重金属数据 98%以上显示出低污染水平,少数呈现出中度和中重度污染水平.呈现出中度和中重度污染水平的水源地集中在该省北部区域(朔州市和大同市).*CD* 和 *NI* 指数的评价结果远低于 *HPI* 指数,考虑到水质最坏的情况,选择 *HPI* 指数作为评价结果,这与 SHENG 等^[27]的研究结果一致.*HPI* 指数的平均值远低于阈值 (100),因此该省重金属处于极低污染水平.

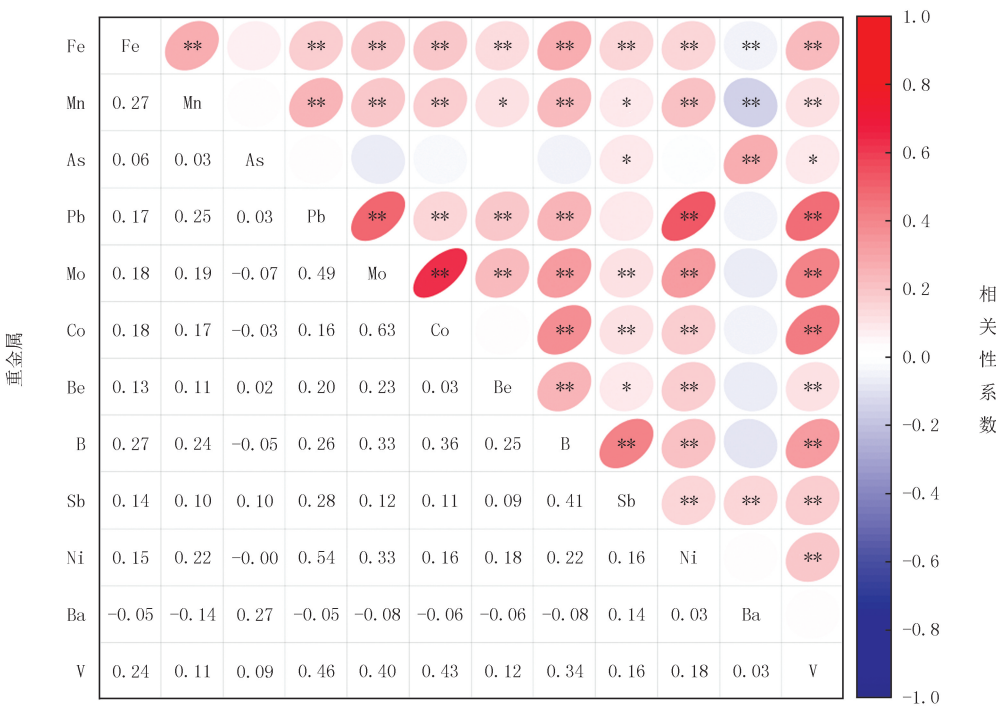
2.3 重金属的相关性分析

通过 Pearson 相关性分析确定重金属指标之间的相关性,结果显示(图 3),Fe 与 Mn,Mn 与 Pb、B 和 Ni,As 与 Ba,Pb 与 Ni,Mo 与 Pb、Co、B、Ni 和 V,Co 与 B、V,B 与 Sb 之间均有强烈的正相关性.研究发现 Ni 和 Pb 之间高度相关的潜在原因之一可能是相似的污染水平^[28].As 和 Ba($p<0.01,0.27$),Mo 与 Pb、Co、B、Ni 和 V($p<0.01,0.33\sim0.63$)之间强烈的正相关性,说明它们有共同或者相似的来源.

2.4 重金属的主成分(PCA)分析

首先将重金属浓度数据进行 *KMO* 和 Bartlett 检验($KMO=0.658>0.6, p<0.001$),表明数据可以进行主成分分析,保留特征值>1 的 3 个主成分.由表 3 和图 4 可以看出,3 个主成分的累计贡献率为 51.6%,其贡献率分别为 28.5%、11.7%和 11.4%.第一主成分表明,相关性较强的重金属有 Pb(0.393)、Mo(0.388)、

Co(0.346)、B(0.331)、V(0.321)、Mn(0.317)、Ni(0.314),其正载荷水平接近,变异系数较高,表明这些重金属可能有相似的人为污染源.黄宏伟等^[29]研究发现,Mn 和 Co 的来源与化肥和农药的施用有密切关系.Pb 主要与交通运输污染有关,汽车排放尾气及轮胎磨损污染物中含有 Pb 和 Ni 等污染物^[30].Mo 一般来源于含 Mo 废水的排放、矿渣和农田土壤降雨淋滤,V 来源于冶炼废水^[31].因此,主成分一表示工农业和交通运输等人类活动污染.第二主成分相关性较强的是 As(0.560)和 Ba(0.675).研究表明,Ba 主要是由硅酸盐和碳酸盐风化的天然来源贡献的^[32].相关性分析和 PCA 分析均显示 As 和 Ba 有显著的正相关性,表明 As 可能主要来自地质背景.地下水与地表水相互作用的自然过程可能会对 As 的浓度产生影响.研究发现,该省大同盆地地表水和地下水相互作用时砷的迁移可以通过羟基氧化铁、硫酸盐、硝酸盐和砷酸盐的还原溶解以及响应地球化学条件变化而发生的表面吸附/解吸来解释^[33].因此,主成分二表示地质背景.第三主成分主要与 Fe (0.397)和 Sb(0.499)有关.Fe 和 Sb 的变异系数均高于 100%,说明人类活动对其影响较大.该省煤层中含有大量的黄铁矿.据报道,煤矿开采会使地下相对封闭的环境与空气接触形成氧化环境,煤层矿物被氧化并溶解进入水环境中,这加剧了 Fe 对水环境的污染^[34].Sb 的来源主要是采矿冶炼^[35].因此,主成分三的重金属与人类煤矿开采活动密切相关.总之,该省重金属主要的污染来源是工农业和交通运输等人类活动,其次是地质背景和矿物开采活动.



注:*表示 $p<0.05$,**表示 $p<0.01$;色柱深浅表示相关性系数大小;正斜方向的椭圆表示正相关,负斜方向的椭圆表示负相关;椭圆越扁,表示相关性越强;椭圆越圆,表示相关性越弱.

图3 重金属指标之间的Pearson相关性

Fig.3 Pearson correlation between heavy metal indicators

2.5 基于蒙特卡罗模拟的健康风险评估

2.5.1 健康风险

本文对重金属的口服摄入风险进行评估.95%分位数的风险暴露表示最坏的情况.基于蒙特卡罗模拟的健康风险结果显示(图 5(a-g)),12 个重金属指标的成人和儿童非致癌风险指数(HI)平均值和 95%分位值均在阈值(1)以内,表明其没有非致癌风险.成人的总致癌风险指数(TCR)平均值(3.63×10^{-6})和 95%分位值(8.61×10^{-6})均低于 1×10^{-4} ,表明其没有致癌风险,儿童的总致癌指数(TCR)平均值(1.26×10^{-4})和 95%分位值(2.02×10^{-4})均大于 1×10^{-4} ,说明其具有中等风险.12 个重金属的致癌风险指数(CR)平均值都在 1×10^{-4} 范围以内,As 的儿童致癌风险指数(CR)95%分位值(1.09×10^{-4})高于 1×10^{-4} ,其他重金属的

致癌风险指数 95%分位值均在阈值范围内,这表明研究区域的 As 元素会对儿童存在一定的致癌健康风险. 同时在极端条件下(10 000 次蒙特卡罗模拟),As 对 0.25%成人和 5.60%儿童、Co 对 0.02%成人和 0.51%儿童、Mo 对 0.07%成人和 2.41%儿童、Sb 对 0.05%成人和 0.98%儿童和 V 对 0.02%成人和 0.92%儿童的致癌风险值超过可接受阈值(1×10^{-4}),达到中等风险,需要重点关注.此外,儿童的非致癌和致癌风险平均值和 95%分位值均高出成人 1~2 个数量级,这表明重金属更容易对儿童的健康构成威胁.

表 3 主成分总方差解释

Tab. 3 Explanation of total variance of principal components

成分	初始特征值			提取载荷平方和		
	总计	方差/%	累积方差/%	总计	方差/%	累积方差/%
1	3.425	28.541	28.541	3.425	28.541	28.541
2	1.407	11.723	40.264	1.407	11.723	40.264
3	1.366	11.383	51.646	1.366	11.383	51.646
4	1.073	8.939	60.586			
5	0.932	7.769	68.354			
6	0.874	7.281	75.635			
7	0.802	6.682	82.317			
8	0.573	4.771	87.088			
9	0.546	4.551	91.639			
10	0.446	3.716	95.355			
11	0.335	2.792	98.147			
12	0.222	1.853	100.00			

注:提取方法为主成分分析.

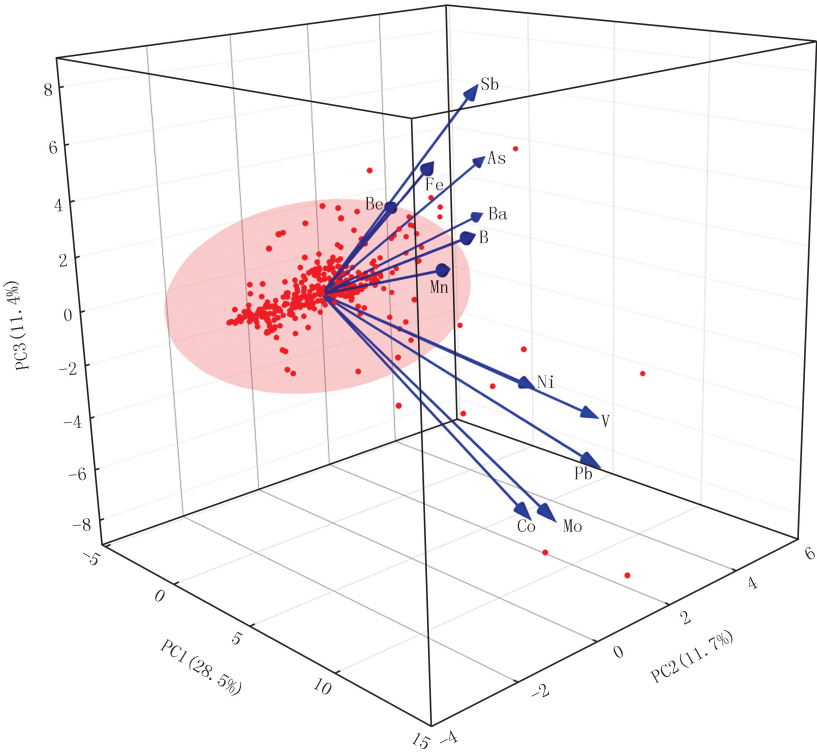


图4 主成分分析结果
Fig.4 Result of principal component analysis

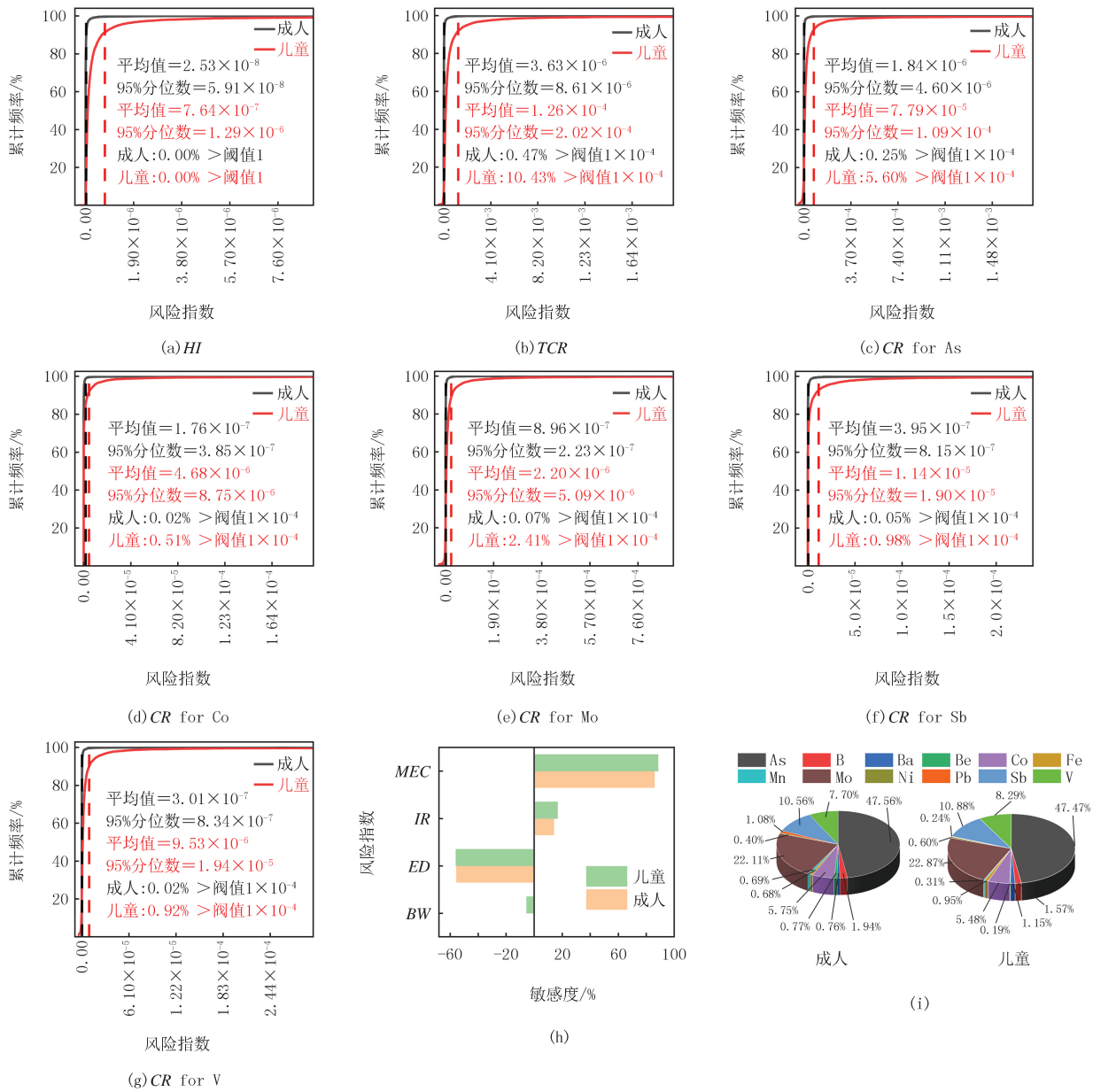


图5 (a-g)CR值超过阈值和HI的重金属累积概率曲线(虚线表示平均值);(h)4个参数对成人和儿童致癌健康风险的敏感度;(i)12种重金属对成人和儿童致癌健康风险的贡献率

Fig.5 (a-g)Heavy metal accumulation probability curves for CR values above threshold and HI;(h)Sensitivity of four parameters to health risks in adults and children;(i)Contribution of 12 heavy metals to health risks

2.5.2 敏感性分析

从图 5(h)可以看出,重金属浓度(MEC)是成人和儿童致癌健康风险的主要影响因素,对成人和儿童的致癌健康风险贡献率分别为 85.86%和 88.45%.其次是人口的平均预期寿命(ED),与致癌健康风险呈负相关,对成人和儿童的贡献率分别为 -55.48%和 -55.84%.水的摄入率(IR)对致癌健康风险呈正相关,对成人和儿童的贡献率分别为 14.04%和 16.75%.体质量(BW)对致癌健康风险的贡献很低,对成人和儿童的贡献率分别为 0.48%和 -5.36%.总之,4 个参数对致癌健康风险的影响排序由大到小依次为 MEC,ED,IR,BW.

由图 5(i)可知,重金属对成人和儿童致癌风险的贡献率 η 排序分别为 η_{As} (47.56%)> η_{Mo} (22.11%)> η_{Sb} (10.56%)> η_{V} (7.70%)> η_{Co} (5.75%)> η_{B} (1.94%)> η_{Pb} (1.08%)> η_{Be} (0.77%)> η_{Ba} (0.76%)> η_{Mn} (0.69%)> η_{Fe} (0.68%)> η_{Ni} (0.40%)和 η_{As} (47.47%)> η_{Mo} (22.87%)> η_{Sb} (10.88%)> η_{V} (8.29%)> η_{Co} (5.48%)> η_{B} (1.57%)> η_{Ba} (1.15%)> η_{Fe} (0.95%)> η_{Ni} (0.60%)> η_{Mn} (0.31%)> η_{Pb} (0.24%)>

η_{Be} (0.19%).由此可见,需要对 As、Mo、Sb、V、Co 重点关注.

3 结 论

2018 至 2022 年 12 种重金属的平均质量浓度排序为 $\rho_{Ba} > \rho_B > \rho_{Fe} > \rho_{Mn} > \rho_{Mo} > \rho_{Ni} > \rho_V > \rho_{Co} > \rho_{Pb} > \rho_{As} > \rho_{Sb} > \rho_{Be}$. Fe、Mn、Be、Mo、Co、B 和 Ni 的平均质量浓度在北部的水源地显示出较高的水平,在中部的水源地最低,而 Ba 的平均质量浓度在中部的水源地较高,As 的平均质量浓度在全省的 17 个水源地基本一致.从时间上来说,重金属的年平均质量浓度变化幅度在 18.64%~74.23%,时间变化不明显.重金属 *HPI* 指数平均值远低于阈值,该省地表饮用水水源地重金属处于极低污染水平.Pearson 相关性分析结果显示,As 和 Ba、Mo 与 Pb、Co、B、Ni 和 V 之间有强烈的正相关性,说明它们有共同或者相似的来源.PCA 分析结果显示,该省重金属主要的污染来源是工农业和交通运输等人类活动(28.5%),其次是地质背景(11.7%)和矿物开采活动(11.4%).蒙特卡罗模拟结果显示,12 种重金属均没有非致癌风险和致癌风险.但 95%分位值显示,As 对儿童有一定的致癌风险.同时在极端条件下(10 000 次蒙特卡罗模拟),As、Co、Mo、Sb 和 V 对成人和儿童的致癌风险值有超过阈值的情况.因此,需要对 As、Mo、Sb、V、Co 重点关注.

附录见电子版(DOI:10.16366/j.cnki.1000-2367.2024.11.08.0001).

参 考 文 献

[1] ARORA R. Adsorption of heavy metals-a review[J]. *Materials Today: Proceedings*, 2019, 18: 4745-4750.

[2] HE T R, FENG X B, GUO Y N, et al. The impact of eutrophication on the biogeochemical cycling of mercury species in a reservoir: a case study from Hongfeng Reservoir, Guizhou, China[J]. *Environmental Pollution*, 2008, 154(1): 56-67.

[3] 刘洋, 张毅杰, 章延, 等. 饮用水处理中藻类混凝消除技术的现状与趋势: 基于 CiteSpace 的可视化分析[J]. *广西师范大学学报(自然科学版)*, 2024, 42(6): 53-66.

LIU Y, ZHANG Y J, ZHANG Y, et al. Current status and trends of algal coagulation elimination technology in drinking water treatment: a visual analysis based on CiteSpace[J]. *Journal of Guangxi Normal University (Natural Science Edition)*, 2024, 42(6): 53-66.

[4] 王梓尹, 赵玲玲, 宋小燕, 等. 珠三角重要水库型饮用水源地土地利用变化对水质的联动影响[J]. *热带地理*, 2024, 44(9): 1602-1614.

WANG Z Y, ZHAO L L, SONG X Y, et al. Correlating land use changes with drinking water source quality in Pearl River Delta Reservoirs[J]. *Tropical Geography*, 2024, 44(9): 1602-1614.

[5] 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.

[6] 余葱葱, 赵委托, 高小峰, 等. 陆浑水库饮用水源地水体中金属元素分布特征及健康风险评价[J]. *环境科学*, 2018, 39(1): 89-98.

YU C C, ZHAO W T, GAO X F, et al. Distribution characteristics and health risk assessment of metals in drinking water sources from the luhun reservoir[J]. *Environmental Science*, 2018, 39(1): 89-98.

[7] 王祎曼, 葛勤, 危超, 等. 南方某尾矿区地下水金属元素来源解析及健康风险评价 [J/OL]. *环境科学*: 1-22. [2025-01-06]. <https://doi.org/10.13227/j.hjxx.202405145>.

WANG H M, GE Q, WEI C, et al. Source and health risk assessment of groundwater metal elements of a tailings mining area in Southern China[J/OL]. *Environmental Science*: 1-22. [2025-01-06]. <https://doi.org/10.13227/j.hjxx.202405145>.

[8] ANH N N. Attribution of sources to heavy metal accumulation in the anthropogenically impacted Bach Dang River Estuary, Vietnam[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2023, 193: 115244.

[9] 廖红为, 蒋忠诚, 周宏, 等. 铅锌矿周边岩溶流域重金属污染及健康风险评价[J]. *环境科学*, 2023, 44(11): 6085-6094.

LIAO H W, JIANG Z C, ZHOU H, et al. Heavy metal pollution and health risk assessment in Karst basin around a lead-zinc mine[J]. *Environmental Science*, 2023, 44(11): 6085-6094.

[10] ZHANG Z Y, ABUDUWAILI J, JIANG F Q. Heavy metal contamination, sources, and pollution assessment of surface water in the Tianshan Mountains of China[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2015, 187(2): 33.

[11] 王娟娟, 张素青, 王宝峰, 等. 基于主成分分析法在于桥水库水质评价中的应用[J]. *天津农林科技*, 2023(2): 1-3.

WANG J J, ZHANG S Q, WANG B F, et al. Principal component analysis of water quality in Yuqiao Reservoir[J]. *Science and Technology of Tianjin Agriculture and Forestry*, 2023(2): 1-3.

[12] 徐慧韬, 徐秀丽, 王丽平. 温州主要入海河流 6 种重金属的空间分布及风险评估[J]. *水生态学杂志*, 2021, 42(1): 42-48.

- XU H T, XU X L, WANG L P. Spatial distribution and risk assessment of six heavy metals in rivers flowing into sea at Wenzhou, Zhejiang Province[J]. *Journal of Hydroecology*, 2021, 42(1): 42-48.
- [13] 汤玉强, 李清伟, 左婉璐, 等. 内梅罗指数法在北戴河国家湿地公园水质评价中的适用性分析[J]. *环境工程*, 2019, 37(8): 195-199.
TANG Y Q, LI Q W, ZUO W L, et al. Analysis of applicability of nemerow index method in evaluation of water quality of Beidaihe national wetland park[J]. *Environmental Engineering*, 2019, 37(8): 195-199.
- [14] 杨碧莹, 杨金香, 杨阳, 等. 巢湖水体中重金属污染特征及评价[J]. *安徽理工大学学报(自然科学版)*, 2020, 40(5): 64-69.
YANG B Y, YANG J X, YANG Y, et al. The characteristics and assessment of heavy metals pollution in the water of Chaohu Lake[J]. *Journal of Anhui University of Science and Technology (Natural Science)*, 2020, 40(5): 64-69.
- [15] 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.
- [16] 汤建, 李永辉, 李云, 等. 光谷科学岛地下水水质及健康风险评价[J]. *资源环境与工程*, 2024, 38(6): 691-697.
TANG J, LI Y H, LI Y, et al. Groundwater quality and health risk assessment in Optics Valley Science Island[J]. *Resources Environment & Engineering*, 2024, 38(6): 691-697.
- [17] 王兴伟, 王玉云, 赵妮. 雅安市地表水重金属时空分布及健康风险评价研究[J]. *环境科学导刊*, 2024, 43(2): 74-80.
WANG X W, WANG Y Y, ZHAO N. Study on the spatiotemporal distribution and health risk assessment of heavy metals in the surface water of Ya'an City[J]. *Environmental Science Survey*, 2024, 43(2): 74-80.
- [18] 邵嘉豪, 李晶, 闫星光, 等. 基于地理探测器的山西省 2000—2020 年 NPP 时空变化特征及驱动力分析[J]. *环境科学*, 2023, 44(1): 312-322.
SHAO J H, LI J, YAN X G, et al. Analysis of spatiotemporal variation characteristics and driving forces of NPP in Shanxi Province from 2000 to 2020 based on geodetector[J]. *Environmental Science*, 2023, 44(1): 312-322.
- [19] LI H X, LI Y, GUO G H, et al. Distribution, site-specific water quality criteria, and ecological risk assessment of heavy metals in surface water in Fen River, China[J]. *Toxics*, 2023, 11(8): 704.
- [20] SUN Q F, ZHENG J L, SUN Z A, et al. Study and risk assessment of heavy metals and risk element pollution in shallow soil in Shanxi province, China[J]. *Polish Journal of Environmental Studies*, 2022, 31(4): 3819-3831.
- [21] 向扬, 李治军. 基于改进 TOPSIS 模型的山西省水资源承载力与协调发展分析[J]. *水利水电技术(中英文)*, 2024, 55(4): 48-58.
XIANG Y, LI Z J. Evaluation and coordinated development of water resources carrying capacity in Shanxi Province based on the improved TOPSIS model[J]. *Water Resources and Hydropower Engineering*, 2024, 55(4): 48-58.
- [22] PAN L B, MA J, WANG X L, et al. Heavy metals in soils from a typical county in Shanxi Province, China: Levels, sources and spatial distribution[J]. *Chemosphere*, 2016, 148: 248-254.
- [23] 中华人民共和国生态环境部. 地表水环境质量监测技术规范: HJ 91.2-2022[S]. 北京: 中国环境出版集团, 2022.
- [24] 王亮, 邓雪娇, 王潇磊, 等. 黄河小浪底水库地表水中重金属的时空变化与概率健康风险[J]. *环境科学*, 2024, 45(4): 2054-2066.
WANG L, DENG X J, WANG X L, et al. Spatio-temporal variation and probability health risk of heavy metals in surface water of Xiaolangdi Reservoir in the Yellow River[J]. *Environmental Science*, 2024, 45(4): 2054-2066.
- [25] BOTLE A, SALGAONKAR S, TIWARI R, et al. Brief status of contamination in surface water of rivers of India by heavy metals: a review with pollution indices and health risk assessment[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2023, 45(6): 2779-2801.
- [26] 国家环境保护总局, 国家质量监督检验检疫总局. 地表水环境质量标准: GB 3838—2002[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [27] SHENG D R, WU J, WEN X H, et al. Contamination and ecological health risks of heavy metals in groundwater of a typical agricultural area in NW China[J]. *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis*, 2020, 20(4): 440-450.
- [28] ZHAO Y W, GAO L M, ZHA F G, et al. Research on heavy metal level and co-occurrence network in typical ecological fragile area[J]. *Journal of Environmental Health Science & Engineering*, 2021, 19(1): 531-540.
- [29] 黄宏伟, 肖河, 王敦球, 等. 漓江流域水体中重金属污染特征及健康风险评价[J]. *环境科学*, 2021, 42(4): 1714-1723.
HUANG H W, XIAO H, WANG D Q, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals in the water of Lijiang River Basin[J]. *Environmental Science*, 2021, 42(4): 1714-1723.
- [30] 徐美娟, 杨佳, 任晓景, 等. 宁波市地表水重金属时空分布特性和健康风险评价[J]. *环境科学*, 2023, 44(3): 1407-1415.
XU M J, YANG J, REN X J, et al. Temporal-spatial distribution and health risk assessment of heavy metals in the surface water of Ningbo[J]. *Environmental Science*, 2023, 44(3): 1407-1415.
- [31] 章艳红, 唐玉红, 陈俊华, 等. 萍水河地表水重金属污染特征及健康风险评价[J]. *有色金属(冶炼部分)*, 2021(7): 116-125.
ZHANG Y H, TANG Y H, CHEN J H, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals in surface water of ping-shui river[J]. *Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy)*, 2021(7): 116-125.
- [32] LI J, LI F D, LIU Q, et al. Spatial distribution and sources of dissolved trace metals in surface water of the Wei River, China[J]. *Water Science and Technology*, 2013, 67(4): 817-823.
- [33] YU Q, WANG Y X, XIE X J, et al. Reactive transport model for predicting arsenic transport in groundwater system in Datong Basin[J].

Journal of Geochemical Exploration, 2018, 190: 245-252.

[34] 谢浩, 梁永平, 李军, 等. 龙子祠泉域地下水金属元素分布特征及健康风险评价[J]. 环境科学, 2021, 42(9): 4257-4266.

XIE H, LIANG Y P, LI J, et al. Distribution characteristics and health risk assessment of metal elements in groundwater of longzici spring area[J]. Environmental Science, 2021, 42(9): 4257-4266.

[35] ZHU S N, DONG Z C, YANG B H, et al. Spatial distribution, source identification, and potential ecological risk assessment of heavy metal in surface sediments from river-reservoir system in the Feiyun River Basin, China[J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2022, 19(22): 14944.

Characteristics of spatial and temporal distribution of heavy metals and health risk assessment of surface drinking water sources in a province in the middle reaches of the Yellow River

Wang Lu^{1,2}, Li Chao¹, Chang Sheng², Tu Xiang², Wang Shanjun², Dai Boyang², Yang Yubo²

(1. College of Environmental Science and Engineering, Taiyuan University of Technology, Jinzhong 030600, China; 2.State Environmental Protection Key Laboratory of Drinking Water Source Protection, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: Based on the monthly monitoring data of 17 prefecture-level surface drinking water sources in one province in the middle reaches of the Yellow River from 2018 to 2022, the Kriging interpolation, heavy metal pollution index(*HPI*), Nemero index(*NI*), and degree of pollution(*CD*) were used to carry out the analysis of the spatial and temporal distribution characteristics of the heavy metal indicators and the pollution level, and the correlation analysis and principal component analysis(*PCA*) were used to study the heavy metal sources, and oral intake health risk assessment of heavy metals by Monte Carlo simulation. The results showed that the average concentrations of heavy metals in the water sources were ranked as $\rho_{Ba} > \rho_B > \rho_{Fe} > \rho_{Mn} > \rho_{Mo} > \rho_{Ni} > \rho_V > \rho_{Co} > \rho_{Pb} > \rho_{As} > \rho_{Sb} > \rho_{Be}$. The data of Fe, Mn, Pb, Mo, Co, Be, B, Sb, and V had high variability (111.66%-330.68%). The mean concentrations of Fe, Mn, Be, Mo, Co, B and Ni showed higher levels in the water sources in the northern part of the province(Shuozhou City and Datong City) and the lowest in the water sources in the central part of the province(Jinzhong City), whereas the mean concentration of Ba was higher in the water sources in Jinzhong City, and As was basically the same for all the 17 water sources in the province. The average concentration of heavy metals in the province from 2018 to 2022, the annual average concentrations of heavy metals changed in a small range(18.64%—74.23%). The *HPI* index(mean value 2.14) showed that heavy metals in the province were at a very low pollution level(*HPI* < 15). The results of Pearson correlation analyses showed a strong positive correlation between As and Ba, and between Mo and Pb, Co, B, Ni, and V($p < 0.01$, and 0.27—0.63), indicating that they have common or similar sources. *PCA* results showed that human activities such as industry, agriculture and transport were the main sources of heavy metals(28.5%), followed by geological background (11.7%) and mineral extraction activities(11.4%). The results of the health risk evaluation of oral intake showed that there was no non-carcinogenic and carcinogenic risk of heavy metals, but the 95% quantile showed that As had some carcinogenic risk for children(1.09×10^{-4}). Meanwhile, As, Co, Mo, Sb and V had low level carcinogenic risks for adults(0.02%—0.25%) and children(0.51%—5.60%) under extreme conditions, which need to be focused on As, Mo, Sb, V and Co.

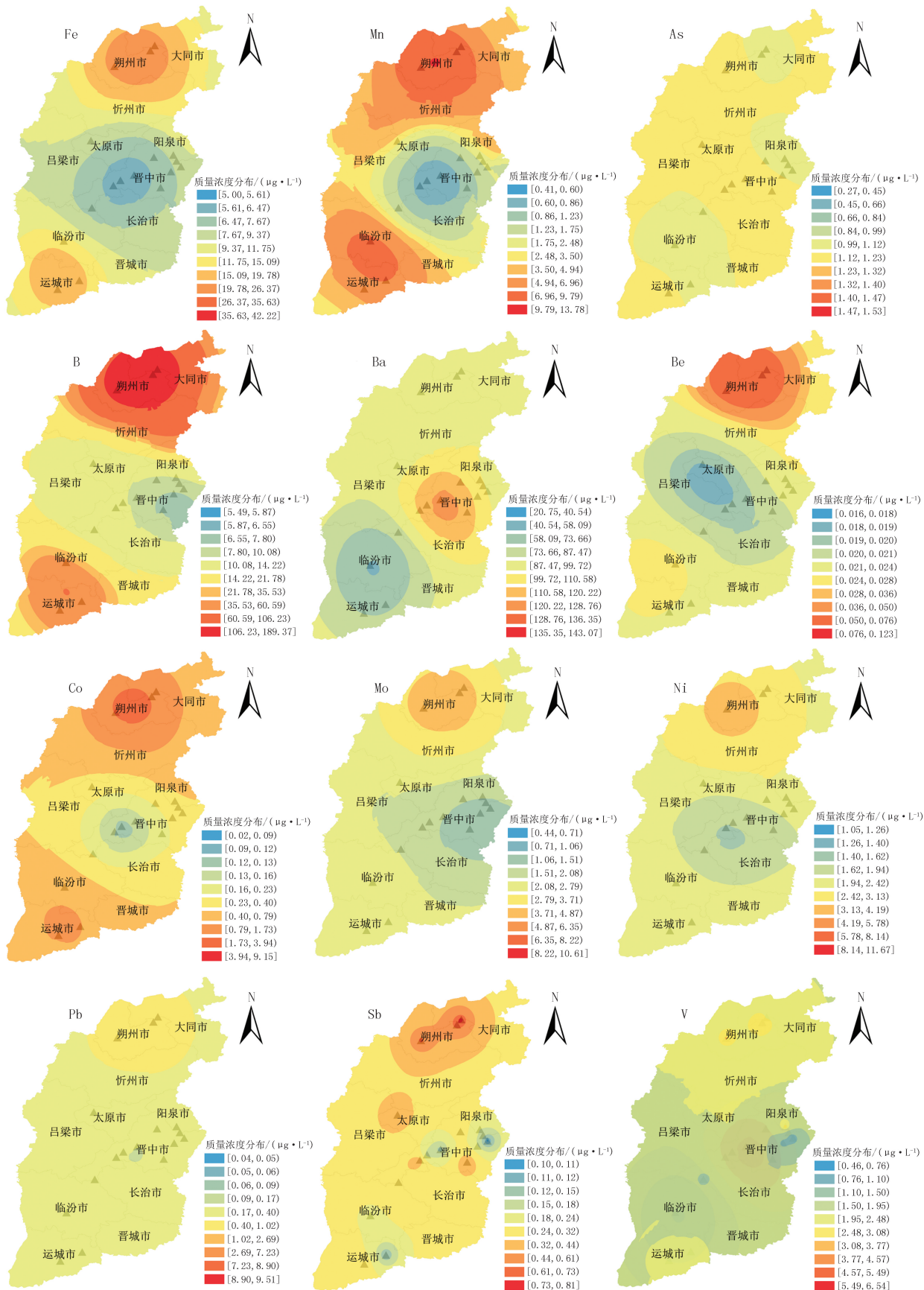
Keywords: drinking water sources; heavy metals; spatial and temporal distribution; Pearson correlation analysis; health risk assessment

[责任编辑 赵晓华 刘洋]

表 S1 风险评估模型中的暴露因素参数
Tab. S1 Exposure factor parameters in risk assessment model

参数	单位	类型	分布范围		参考文献
			成人	儿童	
BW	kg	对数正态分布	(59.78, 1.07)	(16.68, 1.48)	[24]
IR	L/d	对数正态分布	(1.23, 0.27)	(1.12, 0.27)	[24]
ED	a	均匀分布	(0, 70)	(0, 10)	[25]
RfD_i	mg/(kg·d)	点分布	0.14(Fe)、0.000 96(Mn)、0.000 4(As)、0.003 5(Pb)、0.005(Mo)、0.000 3(Co)、 0.002(Be)、0.2(B)、0.000 4(Sb)、0.02(Ni)、0.2(Ba)、0.005(V)		[25]
SF_i	(kg·d)/mg	点分布	-(Fe)、-(Mn)、1.5(As)、0.0085(Pb)、0.32(Mo)、0.063(Co)、0.086 6(Be)、 -(B)、0.207(Sb)、1.7(Ni)、0.851(Ba)、0.122(V)		[25]
ρ_{Fe}	mg/L	对数正态分布	(0.007 76, 0.020 42)		本研究
ρ_{Mn}	mg/L	对数正态分布	(0.001 22, 0.003 96)		本研究
ρ_{As}	mg/L	对数正态分布	(0.000 50, 0.000 63)		本研究
ρ_{Pb}	mg/L	Gamma 分布	(0.006 71, 0.1)		本研究
ρ_{Mo}	mg/L	对数正态分布	(0.001 07, 0.001 60)		本研究
ρ_{Co}	mg/L	Gamma 分布	(0.010 87, 0.1)		本研究
ρ_{Be}	mg/L	Gamma 分布	(0.000 32, 0.1)		本研究
ρ_B	mg/L	Gamma 分布	(0.243 48, 0.1)		本研究
ρ_{Sb}	mg/L	Gamma 分布	(0.006 91, 0.1)		本研究
ρ_{Ni}	mg/L	逻辑分布	(0.000 70, 0.000 91)		本研究
ρ_{Ba}	mg/L	Beta 分布	(−0.008 74, 0.208 60, 0.438 85, 1.482 14)		本研究
ρ_V	mg/L	对数正态分布	(0.001 04, 0.001 45)		本研究

注：“-”表示无数据。



图S1 2018-2022年重金属的空间变化特征

Fig.S1 Characterization of spatial changes of heavy metals in 2018-2022