

长江流域下游水体中药品和个人护理品赋存、分布、溯源及风险评估研究进展

赵雅芳¹, 李志鸿^{1*}, 顾俊鹏¹, 李冠华¹, 高晨¹, 陈海秀¹, 陆家骝²

(1. 江苏康达检测技术股份有限公司, 江苏 苏州 215000; 2. 江苏省苏州环境监测中心, 江苏 苏州 215004)

摘要:药品和个人护理品(PPCPs)作为一类新污染物,种类繁多,且广泛存在于自然水体中。长江流域下游地区由于人口稠密,产业发达,PPCPs 对于水体的污染问题尤为突出。简述了 2010—2021 年长江流域下游水体中 PPCPs 的赋存状况、时空分布及溯源分析情况,并对 PPCPs 的生态环境风险评估研究进展进行总结,揭示了近 10 年来长江流域下游水体中 PPCPs 的污染状况及变化态势,提出了未来 PPCPs 监测、溯源和风险评估的发展趋势,以期在水环境中 PPCPs 污染物的预警和管控提供参考依据。

关键词:药品和个人护理品;抗生素;水环境;风险评估;长江流域

中图分类号:X522;X820

文献标志码:A

文章编号:1674-6732(2022)05-0031-08

Recent Advances in Occurrence, Distribution, Source Tracing and Risk Assessment of PPCPs in Lower Yangtze River Basin: A Review

ZHAO Ya-fang¹, LI Zhi-hong^{1*}, GU Jun-peng¹, LI Guan-hua¹, GAO Chen¹, CHEN Hai-xiu¹, LU Jia-liu²

(1. Jiangsu Kangda Testing Technology Co., Ltd, Suzhou, Jiangsu 215000, China; 2. Jiangsu Suzhou Environmental Monitoring Center, Suzhou, Jiangsu 215004, China)

Abstract: As a type of emerging pollutants, pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) have a large range of varieties and have been widely detected in natural water bodies. Due to the large population and developed industries along the lower reaches of the Yangtze River Basin, the issues of PPCPs contamination are particularly prominent. This paper briefly describes the occurrence, spatial and temporal distribution and traceability analysis of PPCPs in the lower reaches of the Yangtze River basin from 2010 to 2021, summarizes the research progress of ecological environment risk assessment of PPCPs, reveals the pollution status and change trend of PPCPs pollution in the basin in the past 10 years, and puts forward the development trend of monitoring, traceability and risk assessment of PPCPs in the future. Our research is supposed to provide references for warning and control of PPCPs in the aquatic environment.

Key words: Pharmaceuticals and personal care products; Antibiotics; Aquatic environment; Risk assessment; Yangtze River Basin

药品和个人护理品(PPCPs)是一类新污染物,包含各类抗生素、广谱抗菌药、解热镇痛药、降压药、避孕药、造影剂、染发剂、香料等,被广泛用于人类及动物疾病防治、畜牧及水产养殖、保健化妆等多个领域^[1]。一方面,由于现有的污水处理技术难以有效去除全部 PPCPs,大量种类繁多的

PPCPs 类化合物随着工业废水、畜禽废水、医院废水和生活污水的排放进入水环境中^[2]。另一方面,人或动物摄入的 PPCPs 大多不能在生物体内完全吸收分解,而是直接或以代谢产物的形式随尿液、粪便排出体外,通过多途径最终进入水环境中^[3]。虽然许多 PPCPs 类化合物仅以痕量浓度

收稿日期:2022-05-31;修订日期:2022-07-27

基金项目:江苏省环境监测科研基金资助项目(2106)

作者简介:赵雅芳(1965—),女,高级工程师,大专,主要研究方向为环境污染物检测、危险废物鉴别与司法鉴定。

* 通讯作者:李志鸿 E-mail: zhihongli_taiyuan@126.com

(ng/L)存在于水环境,但由于其种类数目庞杂、具有一定生物富集效应和较强生物活性,且作为一种持续输入的“伪持续性”新污染物^[4],其化合物本体及其代谢产物、环境衍生物(例如,抗生素消毒副产物)等在低剂量长期暴露下,将对生物体产生显著的内分泌干扰毒性、发育毒性和生殖毒性^[5-6],部分 PPCPs 物种还具有三致(致畸、致癌、致突变)作用^[7]。不仅如此,大量抗生素类 PPCPs 进入到水环境中后,会促进微生物抗生素抗性基因的产生和传播,加剧耐药菌(超级细菌)形成的风险^[8]。因此,水环境中 PPCPs 残留污染已经成为威胁人类健康和生态环境的重要问题。

我国是 PPCPs 类物质生产和使用大国,禽畜水产养殖和医疗卫生行业均存在着抗生素滥用问题^[9]。目前,已有不少于 158 种的 PPCPs 类化合物在我国各地区河流及湖泊等天然水环境中不同程度被检出^[10]。而长江流域下游地区尤其是长三角地区因为 PPCPs 的生产和使用量较大,PPCPs 残留对于当地居民饮用水安全构成了日益严峻的威胁。因此,有必要针对长江流域下游地区 PPCPs 的赋存状况和分布特征进行全面解构,并对近 10 年来(2010—2021 年)该地区 PPCPs 的溯源分析及风险评估工作进行系统总结,以期为长江流域下游地区的水生态环境保护 and 风险防控提供科学依据。

1 长江流域下游水体 PPCPs 赋存状况及分布规律

1.1 研究区域概况

长江流域下游位于我国华东地区,地跨安徽省、江苏省、上海市,流经合肥市、芜湖市、马鞍山市、南京市、镇江市、常州市、无锡市、苏州市、上海市等。该地区河道纵横,水网密织,主要的自然水体包括了长江干流、黄浦江等支流、太湖等自然湖泊、人工开凿运河以及各种沟渠水塘等。该地区城镇化程度高,人口密度大,工农业生产尤其是禽畜

和水产养殖业发达,环境水体受到 PPCPs 污染的潜在风险较高。从近 10 年来(2010—2021 年)研究成果看,上述水体中受到广泛关注且检出率、检出浓度较高的 PPCPs 污染物主要有磺胺类药物(SAs)、大环内酯类抗生素(MLs)、氟喹诺酮类药物(FQs)、四环素类抗生素(TCs)以及氯霉素类抗生素(CPs)5 大类以及咖啡因等个别物种^[11]。

1.2 PPCPs 赋存状况

SAs 是一类人畜共用的广谱抗菌药,是目前使用量较大的一类 PPCPs,在长江流域下游水体中检出率较高、检出浓度较大的有磺胺甲噁唑(SMX)、磺胺二甲嘧啶(SMT)和磺胺嘧啶(SD)等^[12]。MLs 是一类具有 14~16 元环内酯结构的抗生素,红霉素(ETM)及其脱水产物脱水红霉素、罗红霉素(RTM)、克拉霉素(CLA)在长江流域水体中经常被检出^[13-14]。FQs 在治疗人畜细菌性感染方面具有较好疗效,目前氧氟沙星(OFC)、诺氟沙星(NFC)、环丙沙星(CFC 或 CIP)等大量使用的氟喹诺酮类药物在我国各地环境水体中检出率较高^[15]。TCs 由于具有价廉和广谱抗菌的特点,在临床医疗和畜禽养殖中均得到广泛应用。虽然 TCs 进入自然水体后易发生降解,但由于用量巨大,土霉素(OTC)、四环素(TC)、多西环素(DC)等仍有检出^[16]。CPs 在水产养殖中得到了广泛使用,在黄浦江和长江口附近氯霉素(CAP)、甲砷霉素(TAP)、氟苯尼考(FF)均曾以较高浓度被检出^[17]。此外,属于林可酰胺类抗生素的克林霉素(CLI)及林可霉素(LCM),属于精神类药物的咖啡因(CAF),属于解热镇痛药的双氯芬酸(DF),属于降压药的阿替洛尔(ATE),属于造影剂的碘普罗胺(IPM),属于个人护理品的避蚊胺(DEET)等其他类别的 PPCPs 也多有被检出的报道^[18-19]。近 10 年来长江流域下游水体中被检出的主要 PPCPs 污染物及其浓度范围见表 1。

表 1 长江流域下游水体中 PPCPs 检出种类及浓度范围^①

地区及水样类型	采样时间	首要污染物 (检出质量浓度最高)	主要污染物 (最大检出质量浓度 > 10 ng/L)	浓度范围/ (ng · L ⁻¹)	是否同步开展溯源分析/风险评估	参考文献
长江口地表水	2011 年 7 月— 2012 年 5 月	磺胺吡啶	氯霉素、甲砷霉素、氟苯尼考、磺胺嘧啶、磺胺吡啶、磺胺甲噁唑、磺胺二甲嘧啶、磺胺喹噁啉、诺氟沙星、氧氟沙星、土霉素、红霉素	ND~219	是	[17]
长江口地表水	2012 年 8 月— 2013 年 3 月	甲砷霉素	甲砷霉素、林可霉素、二环己胺、磺胺、磺胺甲噁唑、可替宁	ND~600	是	[20]
长江口地表水	2013 年 7 月	磺胺二甲嘧啶	磺胺二甲嘧啶、红霉素、甲砷霉素、氟苯尼考	ND~27.2	否	[21]

续 表

地区及 水样类型	采样时间	首要污染物 (检出质量浓度最高)	主要污染物 (最大检出质量浓度 > 10 ng/L)	浓度范围/ (ng · L ⁻¹)	是否同步开展溯 源分析/风险评估	参考 文献
长江口某 水库地表水	2014 年 1—11 月	土霉素	环丙沙星、诺氟沙星、氧氟沙星、恩诺沙星、四环素、土霉素、磺胺嘧啶、磺胺二甲嘧啶、磺胺甲噁唑	ND ~ 176	是	[22]
长江口饮 用水水源水	2014 年 4 月— 2015 年 3 月	咖啡因	咖啡因、避蚊胺	ND ~ 89.2	是	[23]
上海市黄 浦江地表水	2009 年 6—9 月	磺胺二甲嘧啶	甲砒霉素、氟苯尼考、磺胺嘧啶、磺胺吡啶、磺胺甲噁唑、磺胺甲嘧啶、磺胺二甲嘧啶、环丙沙星、四环素、土霉素、金霉素、多西环素	ND ~ 623	否	[24]
上海市黄 浦江地表水	2012 年 5 月	咖啡因	咖啡因、甲氧苄啶、吉非罗齐、双氯芬酸、美托洛尔、卡马西平	ND ~ 824	否	[25]
黄浦江及 其支流地表水	2012 年 7 月	磺胺甲噁唑	磺胺嘧啶、磺胺吡啶、磺胺甲噁唑、磺胺噻唑、磺胺二甲嘧啶、磺胺喹恶啉、环丙沙星、恩诺沙星、氧氟沙星、氟苯尼考、四环素、土霉素、多西环素、金霉素	ND ~ 765	是	[26]
淀山湖饮 用水水源水	2017 年 4—11 月	磺胺甲嘧啶	磺胺甲嘧啶、磺胺间二甲氧嘧啶、双氯芬酸、酮洛芬、布洛芬	ND ~ 59.5	是	[27]
上海市地表水	2019 年 5 月	磺胺嘧啶	磺胺嘧啶、磺胺吡啶、磺胺甲噁唑、磺胺二甲嘧啶、磺胺二甲嘧啶、磺胺二甲氧嘧啶、磺胺甲噁唑、诺氟沙星、氧氟沙星、环丙沙星、洛美沙星、培氟沙星、西诺沙星、莫西沙星、氟甲唑、奈哌酸、恶唑酸、多西环素、米诺环素、土霉素、阿奇霉素、克拉霉素、罗红霉素、头孢氨苄、阿莫西林、青霉素 V、青霉素 G、林可霉素	ND ~ 502	是	[28]
长江南京 段地表水及 饮用水水源水	2017 年 9 月	环丙沙星	磺胺甲噁唑、磺胺苯酰、阿奇霉素、四环素、多西环素、诺美沙星、氧氟沙星、诺氟沙星、环丙沙星、克林霉素	ND ~ 318	是	[29]
南京市长江 及秦淮河地表水	2018 年 4—7 月	咖啡因	咖啡因、布洛芬、磺胺甲噁唑、红霉素	ND ~ 905	是	[30]
长江南 京段地表水	2018 年 8 月	克林霉素	伊诺沙星、克林霉素、林可霉素、多西环素	ND ~ 739	是	[31]
巢湖地表水	2012 年 3—7 月	磺胺甲噁唑、氧氟沙星	磺胺嘧啶、磺胺甲噁唑、诺氟沙星、环丙沙星、恩诺沙星、氧氟沙星、双氟沙星、多西环素、四环素	ND ~ 183	是	[32]
南京市、 环太湖、长 江下游地表水	2016 年 4—5 月	金刚烷胺	金刚烷胺、美托洛尔、4-乙酰氨基安替比林、避蚊胺、奈普生、地西洋、磺胺甲噁唑、卡马西平、安替比林	2.12 ~ 884	是	[33]
太湖地表水	2013 年 11 月— 2014 年 5 月	多西环素、氟苯尼考	磺胺醋酰、磺胺二甲氧嘧啶、磺胺甲噁唑、磺胺间二甲氧嘧啶、甲氧苄啶、金霉素、多西环素、土霉素、双氟沙星、氟罗沙星、诺美沙星、麻保沙星、氧氟沙星、培氟沙星、林可霉素、氟苯尼考	ND ~ 963	是	[34]
太湖贡 湖湾地表水	2013 年 8 月	土霉素	环丙沙星、氧氟沙星、恩诺沙星、诺氟沙星、四环素、土霉素、金霉素、甲氧苄啶、磺胺甲基嘧啶、磺胺噻唑、磺胺甲噁唑、磺胺甲氧嘧啶、罗红霉素	ND ~ 4 720	是	[35]
太湖地表水 及饮用水水源水	2016 年 5 月	咖啡因	咖啡因、缬沙坦	ND ~ 25.8	是	[36]
太湖地下水	2010 年 5 月	氧氟沙星、土霉素	磺胺二甲嘧啶、磺胺噻唑、磺胺甲噁唑、磺胺间二甲氧嘧啶、脱水红霉素、罗红霉素、金霉素、四环素、土霉素、氧氟沙星、诺氟沙星	ND ~ 80.9	是	[37]
太湖径流地表水	2019 年 6 月	磺胺甲噁唑	磺胺甲噁唑、红霉素	ND ~ 94.9	是	[38]
淀山湖地表水	2017 年 4 月— 2018 年 1 月	磺胺二甲嘧啶	磺胺甲噁唑、磺胺间二甲氧嘧啶、磺胺二甲嘧啶、双氯芬酸、布洛芬、酮洛芬	ND ~ 59.5	是	[39]

续 表

地区及 水样类型	采样时间	首要污染物 (检出质量浓度最高)	主要污染物 (最大检出质量浓度 > 10 ng/L)	浓度范围/ (ng · L ⁻¹)	是否同步开展溯 源分析/风险评估	参考 文献
宜兴市地表水	2015 年 6—10 月	阿替洛尔	阿替洛尔、美托洛尔、扑热息痛、阿司匹林、避蚊胺、奈哌酸、普鲁卡因、苯佐卡因、卡马西平、华法林、奥芬达唑、β-雌二醇、甲苯噻嗪	ND ~ 600	否	[40]
常州市长江饮用水处理厂原水及出水	2017 年 12 月	恩诺沙星	咖啡因、恩诺沙星、氧氟沙星、红霉素、酮洛芬、林可霉素、磺胺甲噁唑、扑热息痛	ND ~ 85.6	是	[41]
太湖运河	2018 年 5 月— 2019 年 10 月	磺胺类	环丙沙星、双氟沙星、培氟沙星、洛美沙星、诺氟沙星、磺胺甲噁唑、磺胺二甲噁唑、磺胺甲氧哒嗪、磺胺甲噁唑、磺胺间甲氧哒嗪、磺胺噻唑、恶喹酸、氟苯尼考、罗红霉素、林可霉素	ND ~ 262	否	[42]

①ND 代表未检出。

1.3 PPCPs 时空分布规律

PPCPs 是一类与人类活动相关度极高的新污染物。一般来说,人口越多、城镇化水平越高、经济越发达的地区,环境中残留 PPCPs 化合物的含量也会相应越高。另外,不同地区乃至同一地区不同地点、不同时间段的 PPCPs 分布也存在着显著的差异。长江流域下游水体中 PPCPs 的时空分布呈现出以下规律:

(1)长江下游流域内 PPCPs 空间分布存在显著的地域差异。例如,太湖中四环素类和氟苯尼考含量很高^[34];长江南京段则是环丙沙星和克林霉素检出频率及检出浓度较高^[29-31];而黄浦江流域及其毗邻的上、下游的淀山湖和长江口的地表水中的典型污染物为磺胺二甲噁唑^[17,21-22,24,26-28]。

(2)PPCPs 的检出种类数、检出率及检出质量浓度大体上呈现出冬、春(枯水季)明显高于夏、秋(丰水季)的规律^[43]。例如,巢湖中 2012 年 3 月检出的 PPCPs 质量浓度超过 10 ng/L 的有 7 种,而 2012 年 7 月仅有 3 种;在巢湖共计 13 个采样点中首要污染物氧氟沙星在 3 月的检出率达到 100%,而 7 月的检出率仅为 77%^[32]。这种现象与抗生素使用量、旱涝及径流量的季节变化以及水温对抗生素降解速率的影响都有一定关系^[18]。

(3)同一河流上、下游或同一湖泊不同区域中的 PPCPs 污染物种类、浓度分布有所差异。Yang 等^[44]研究发现在同一时段咖啡因在长江上海段平均检出质量浓度(824 ng/L)高于南京段(786 ng/L)。这种空间分布规律和水体周围及上游的污染源的分布以及 PPCPs 化合物在水环境中稳定性等因素密切相关^[45]。

(4)长江下游干流总体而言 PPCPs 检出种类较多,但具体到某一种 PPCPs 浓度相对较低,且各

个区段空间分布差异相对较大;而长江支流及湖泊中检出的 PPCPs 种类相对较少,但个别物种浓度很高,空间分布差异相对较小。长江干流各区段 PPCPs 分布差异较大的原因除支流汇入造成的稀释之外,另一个可能原因是长江干流水体自净能力较好,PPCPs 更容易发生吸附和降解,例如,悬浮物对 PPCPs 的吸附会对 PPCPs 的分布产生一定影响^[46-47]。

2 长江流域下游水体 PPCPs 溯源分析

2.1 来源及迁移途径

环境中的 PPCPs 主要来源有医院、家庭、制药排放、禽畜养殖、水产养殖等^[48]。一方面,PPCPs 通过生活污水、医疗废水、制药废水、畜牧水产养殖废水的直接排放或经污水处理厂不彻底去除后排放进入地表水中^[49];另一方面,PPCPs 可通过人畜禽排泄物堆肥、垃圾填埋等途径进入土壤、污泥、垃圾中,再通过渗透的方式进入各种环境水体。地表水、地下水、饮用水水源水中的 PPCPs 还可以发生相互迁移。PPCPs 具体来源及迁移途径见图 1。

2.2 溯源分析

常用主成分分析法(PCA)或 Spearman 相关分析法对某一地区水体中 PPCPs 开展溯源分析^[50]。张智博等^[51]利用 PCA 法研究了上海青浦区水环境中 PPCPs 来源,结果发现三氯卡班、酮洛芬等主要来源于生活污水,而四环素、泰乐菌素和磺胺二甲噁唑等主要来源于养殖废水。此外,PPCPs 的溯源工作还可以结合当地已有的典型废水监测数据开展。有报道发现,长江三角洲地区养猪场废水中主要检出的是磺胺类和四环素类 PPCPs,而甲鱼养殖废水中主要检出的是氯霉素类^[52],该发现对于解析水产养殖业发达的

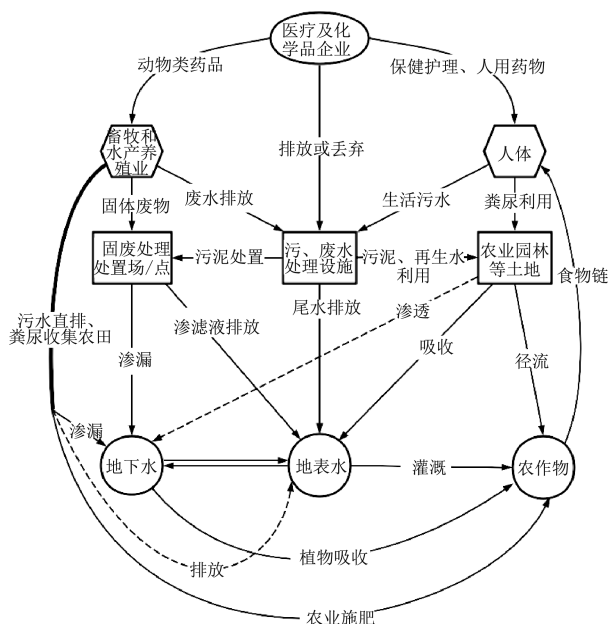


图 1 环境中 PPCPs 来源及迁移途径

太湖、黄浦江流域地表水中氟苯尼考的较高检出率以及高浓度提供了参考依据。除了氯霉素与水产养殖的密切关联之外,朴海涛等^[53]研究发现磺胺类和大环内酯类在农村、城郊地区检出质量浓度明显大于城市地区,其污染源主要是禽畜养殖;酮洛芬、避蚊胺、三氯生的污染源主要是生活污水;而碘普罗胺的污染源则明确指向了医疗废水。Wei 等^[54]还发现磺胺类和四环素类 PPCPs 在养猪场废水中检出率明显高于家禽和奶牛养殖场的废水,证明养猪场是环境水体中磺胺类和四环素类的重要污染源。

3 长江流域下游水体 PPCPs 风险评估

3.1 风险评估方法

生态风险评估方法有风险商值(RQ)法、概率生态风险法、生态风险指数法和毒性当量法等^[55-56],其中RQ法对于PPCPs类污染物的评估应用较多。根据RQ值大小可分为3个风险等级:RQ>1,表示对于某种化合物处于高风险;若RQ为0.1~1,表示处于中风险;若RQ<1,表示处于低风险^[57-58]。

RQ 的计算公式如下:

$$\text{RQ} = \text{MEC}/\text{PNEC} \quad (1)$$

式中: MEC——实际测定环境质量浓度, ng/L ; PNEC——预计无效应质量浓度, ng/L 。

PNEC 值通常由实验所得的毒性数据除以评

估因子 (AF) 得到, 部分毒性数据可查美国生态毒理数据库 (ECOTOX) 获得, AF 的取值范围为 10 ~ 1 000^[59]。值得注意的是, 现有的 PPCPs 毒性数据来自多个毒性数据库及不同文献, 且选取的受试物种不同, 得到的实验终值及风险排序差别较大。例如, Li 等^[60]发现磺胺甲噁唑对水生植物的毒性明显大于鱼类, 而三甲氧苄氨嘧啶则对无脊椎动物的毒性大于藻类, 致使其 RQ 值对于不同受试物种分别呈现出高风险和中风险。又例如, 研究发现红霉素对藻类和虫类呈现出较高风险, 而对鱼类的风险很低^[61]。

因此,应综合选取有代表性特征水生生物(鱼、浮游动物、虫类、藻类、其他水生植物等)的毒性表征,进而全面、真实、客观地反映区域水环境中 PPCPs 的环境效应和生态风险^[62]。当水环境中多种 PPCPs 共存时,可通过简单叠加模型将各物质对某一指定受试物种的 RQ 值进行加和,得到联合毒性风险商(RQ_{sum} 或 ΣRQ)。

3.2 风险评估研究进展

长江流域下游水体中高风险等级 PPCPs 及最大 RQ 值见表 2。风险评估结果呈现以下规律:

(1) 由于各种 PPCPs 类化合物毒性差别很大, 某些毒性高的物质虽然环境浓度较低, RQ 值仍然很大^[65], 例如用于化妆品和织物的二甲基双十八烷基铵对鱼类有剧毒, 虽然在长江口水域的检出率相对较低且检出质量浓度 $< 10 \text{ ng/L}$, 但对生态环境的危害仍不容忽视^[33]。

(2) 部分地区部分种类的 PPCPs 污染状况得到了明显改善,尤其是近年来重要饮用水源地水。例如,淀山湖^[27]和经净水处理后的长江常州段饮用水源水^[41]中 PPCPs 的单物质 RQ 值整体上较低(淀山湖 2017 年 RQ 值最大为 0.003,长江常州段 2017 年 RQ 值最大为 0.000 67),这与饮用水源地保护工作的开展、PPCPs 使用排放的逐步规范以及净水工艺的改进有着密切关系。例如,Zhu 等^[28]研究发现 2019 年 5 月在上海市黄浦江地表水中甲砒霉素及氟苯尼考类的检出率及检出质量浓度与 2009 年 6—9 月^[24]相比有了明显下降,且无中、高生态风险。Liu 等^[66]在 2018 年 1—2 月对上海市全域的自来水进行了抽检并开展人体健康风险评估,发现除了扑米酮对婴幼儿具有中风险(RQ=0.145)之外,其他 PPCPs 类化合物对人体健康均为低风险。

表 2 长江流域下游水体中高风险等级 PPCPs 及最大 RQ 值

地区及水样类型	采样时间	高风险等级 PPCPs 种类	单物质最大 RQ 或 RQ _{sum} 值	参考文献
巢湖东半湖饮用水水源水	2015 年 12 月	四环素	103	[63]
南京市长江及秦淮河地表水	2018 年 4—7 月	磺胺甲噁唑、红霉素	8.7 (RQ _{sum})	[30]
太湖贡湖湾地表水	2013 年 8 月	环丙沙星、氧氟沙星、恩诺沙星、诺氟沙星、土霉素	135	[35]
太湖地表水	2013 年 11 月—2014 年 5 月	磺胺甲噁唑、金霉素、多西环素、氧氟沙星、甲氧苄啶	46.8	[34]
太湖径流地表水	2019 年 6 月	磺胺甲噁唑	1 010	[38]
南京市、环太湖、长江下游地表水	2016 年 4—5 月	二甲基双十八烷基铵	4 677	[33]
长江口饮用水水源水	2014 年 4 月—2015 年 3 月	咖啡因、雌酮	54	[23]
上海市黄浦江流域地表水	2013 年	三氯生	1.17	[64]
长江口某水库地表水	2014 年 1—11 月	土霉素、四环素、环丙沙星、磺胺甲噁唑	10.36	[22]
长江口地表水	2012 年 8 月—2013 年 3 月	无	0.128	[20]
淀山湖饮用水水源水	2017 年 4—11 月	无	0.003	[27]
常州市长江饮用水处理厂原水及出水	2017 年 12 月	无	0.000 67	[41]
上海市地表水	2019 年 5 月	无	0.051 0	[28]

4 结论与展望

4.1 结论

(1) 长江流域下游水体中检出的 PPCPs 污染物类型及种数繁多, 其中磺胺甲噁唑、氧氟沙星、咖啡因、红霉素、三甲氧苄氨嘧啶、二甲基双十八烷基铵等检出质量浓度大、检出率高且生态环境风险高的 PPCPs 类污染物应得到重点关注。

(2) PPCPs 时空分布具有典型的地域和时间特征, 不同地区的代表性污染物有所不同, PPCPs 检出种类数、检出率及质量浓度大体上呈现出冬、春(枯水季)含量高于夏、秋(丰水季)的规律。

(3) 水环境中 PPCPs 的来源及进入水体的途径丰富多样, 抗生素类及磺胺类主要来源于禽畜水产养殖, 解热镇痛药、降压药、其他个人护理品类主要来源于城镇生活污水。

(4) 近年来长江流域内一些地区(例如, 上海黄浦江)地表水中部分 PPCPs 污染状况与 10 年前相比有所改善, 但相关监测及防控工作依然不容松懈。

4.2 展望

未来对于区域内 PPCPs 的监测、溯源及风险评估研究将呈现出以下发展趋势:

(1) 监测筛查覆盖的 PPCPs 种类更多, 名录更全, 更具有针对性和代表性, 更加注重开展 PPCPs 代谢产物及环境衍生物的相关研究。

(2) 监测溯源对象从长江干流、太湖、黄浦江等主要水体拓展至小型湖泊、河流、沟渠及污水处理厂出水口等地, 溯源工作更加快速精准, 通过监

测结果迅速查明污染源。

(3) 更加注重流域内 PPCPs 的动态、实时监测, 关注其时空分布规律, 进而因地制宜、因时制宜开展防控和治理工作。

(4) 对 PPCPs 的溯源分析及风险评估方法更加多元化、综合化, 从单一化合物的风险商评估方法发展为多种风险评估方法并用。

(5) 根据已有研究成果逐步制定并完善水体中 PPCPs 监测、评价及管控的法规和标准。

[参考文献]

[1] 秀措, 王尘辰, 吕永龙, 等. 潮汕地区入海河流及水生生物中 PPCPs 分布特征及风险评估[J]. 环境科学, 2020, 41(10): 4514–4524.

[2] 汪琪, 张梦佳, 陈洪斌. 水环境中药物类 PPCPs 的赋存及处理技术进展[J]. 净水技术, 2020, 39(1): 43–51.

[3] 陈贤, 张彩杰, 杨桂朋, 等. 典型药物及个人护理品在黄东海域水体中的检测、分布规律及其风险评估[J]. 环境科学, 2020, 41(1): 194–204.

[4] HERNANDO M D, MARIA D, FERNÁNDEZ-ALBA A R, et al. Environmental risk assessment of pharmaceutical residues in wastewater effluents, surface waters and sediments[J]. Talanta, 2006, 69(2): 334–342.

[5] 蔡东明, 欧阳洁, 丁锦建, 等. 抗生素消毒副产物的分析检测及毒性效应研究进展[J]. 分析化学, 2022, 50(3): 327–340.

[6] 任丙南, 耿静. 三亚市水体中 PPCPs 的污染水平、分布特征及生态风险评价[J]. 环境科学, 2021, 42(10): 4717–4726.

[7] 闭凤丽, 李志广, 刘波, 等. 南方某地区水体抗生素含量及风险评估[J]. 环境化学, 2018, 37(3): 621–624.

[8] 陈强, 邝乃慈, 谢洪勇, 等. 不同环境介质中抗生素的污染现

- 状及其检测方法研究进展[J]. 环境监控与预警, 2017, 9(5): 24–31.
- [9] 黄子晏, 丁婷婷, 杜士林, 等. 沙颍河流域抗生素污染特征与生态风险评价[J]. 环境监控与预警, 2020, 12(5): 117–123, 131.
- [10] 王丹, 隋倩, 赵文涛, 等. 中国地表水环境中药物和个人护理品的研究进展[J]. 科学通报, 2014, 59(9): 743–751.
- [11] 王若男, 曹阳, 高超, 等. 沱江干流抗生素污染的时空变化和生态风险评估[J]. 环境化学, 2021, 40(8): 2505–2514.
- [12] 赵富强, 高会, 张克玉, 等. 中国典型河流域抗生素的赋存状况及风险评估研究[J]. 环境污染与防治, 2021, 43(1): 94–102.
- [13] 廖杰, 魏晓琴, 肖燕琴, 等. 莲花水库水体中抗生素污染特征及生态风险评价[J]. 环境科学, 2020, 41(9): 4081–4087.
- [14] WU C, HUANG X, WITTER J D, et al. Occurrence of pharmaceuticals and personal care products and associated environmental risks in the central and lower Yangtze river, China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2014, 106(1): 19–26.
- [15] 尉泽佳, 赵鑫宇, 陈慧, 等. 石家庄市水环境中喹诺酮类抗生素的空间分布特征与环境风险评估[J]. 环境科学学报, 2021, 41(12): 4919–4931.
- [16] 胡冠九, 陈素兰, 穆淼, 等. 江苏省某市典型饮用水水源中抗生素质量浓度特征[J]. 水资源保护, 2016, 32(3): 84–88.
- [17] YAN C, YANG Y, ZHOU J, et al. Antibiotics in the surface water of the Yangtze Estuary: occurrence, distribution and risk assessment[J]. *Environmental Pollution*, 2013, 175(1): 22–29.
- [18] 章强, 辛琦, 朱静敏, 等. 中国主要水域抗生素污染现状及其生态环境效应研究进展[J]. 环境化学, 2014, 33(7): 1075–1083.
- [19] WU D, SUI Q, YU X, et al. Identification of indicator PPCPs in landfill leachates and livestock wastewaters using multi-residue analysis of 70 PPCPs: Analytical method development and application in Yangtze River Delta, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 753(1): 137624.
- [20] LI X, ZHANG R, TIAN T, et al. Screening and ecological risk of 1200 organic micropollutants in Yangtze Estuary water[J]. *Water Research*, 2021, 201(1): 117341.
- [21] ZHAO H, ZHOU J, ZHANG J. Tidal impact on the dynamic behavior of dissolved pharmaceuticals in the Yangtze Estuary, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 536(1): 946–954.
- [22] ZHU F, WANG S, LIU Y, et al. Antibiotics in the surface water of Shanghai, China: screening, distribution, and indicator selecting[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2021, 28(8): 1–13.
- [23] CONG X, LEI C, YOU L, et al. Occurrence, impact variables and potential risk of PPCPs and pesticides in a drinking water reservoir and related drinking water treatment plants in the Yangtze Estuary[J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2018, 20(7): 1030–1045.
- [24] JIANG L, HU X, YIN D, et al. Occurrence, distribution and seasonal variation of antibiotics in the Huangpu River, Shanghai, China[J]. *Chemosphere*, 2011, 82(6): 822–828.
- [25] 王丹, 隋倩, 吕树光, 等. 黄浦江流域典型药物和个人护理品的含量及分布特征[J]. 中国环境科学, 2014, 34(7): 1897–1904.
- [26] CHEN K, ZHOU J L. Occurrence and behavior of antibiotics in water and sediments from the Huangpu River, Shanghai, China[J]. *Chemosphere*, 2014, 95(1): 604–612.
- [27] CAO S S, DUAN Y P, TU Y J, et al. Pharmaceuticals and personal care products in a drinking water resource of Yangtze River Delta Ecology and Greenery Integration Development Demonstration Zone in China: Occurrence and human health risk assessment[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 721(1): 137624.
- [28] ZHU F, WANG S Q, LIU Y J, et al. Antibiotics in the surface water of Shanghai, China: screening, distribution, and indicator selecting[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2021, 28(8): 9836–9848.
- [29] 李辉, 陈瑀, 封梦娟, 等. 南京市饮用水源地抗生素污染特征及风险评估[J]. 环境科学学报, 2020, 40(4): 1269–1277.
- [30] YANG H, LU G, YAN Z, et al. Occurrence, spatial-temporal distribution and ecological risks of pharmaceuticals and personal care products response to water diversion across the rivers in Nanjing, China[J]. *Environmental Pollution*, 2019, 255(1): 113132.
- [31] 封梦娟, 张芹, 宋宁慧, 等. 长江南京段水源水中抗生素的赋存特征与风险评估[J]. 环境科学, 2019, 40(12): 5286–5293.
- [32] TANG J, SHI T, WU X, et al. The occurrence and distribution of antibiotics in Lake Chaohu, China: seasonal variation, potential source and risk assessment[J]. *Chemosphere*, 2015, 122(1): 154–161.
- [33] PENG Y, FANG W, KRAUSS M, et al. Screening hundreds of emerging organic pollutants (EOPs) in surface water from the Yangtze River Delta (YRD): occurrence, distribution, ecological risk[J]. *Environmental Pollution*, 2018, 241(1): 484–493.
- [34] ZHOU L J, WU Q L, ZHANG B B, et al. Occurrence, spatio-temporal distribution, mass balance and ecological risks of antibiotics in subtropical shallow Lake Taihu, China[J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2016, 18(4): 500–513.
- [35] 武旭跃, 邹华, 朱荣, 等. 太湖贡湖湾水域抗生素污染特征分析与生态风险评价[J]. 环境科学, 2016, 37(12): 4596–4604.
- [36] 刘娜, 金小伟, 薛荔栋, 等. 太湖流域药物和个人护理品污染调查与生态风险评估[J]. 中国环境科学, 2017, 37(9): 3515–3522.
- [37] XU J, ZHANG Y, ZHOU C, et al. Distribution, sources and composition of antibiotics in sediment, overlying water and pore water from Taihu Lake, China[J]. *Science of the Total Environ-*

- ment, 2014, 497(1): 267–273.
- [38] LI L, ZHAO X, LIU D, et al. Occurrence and ecological risk assessment of PPCPs in typical inflow rivers of Taihu lake, China [J]. *Journal of Environmental Management*, 2021, 285(1): 112176.
- [39] 曹双双. 上海淀山湖水环境中典型 PPCPs 的多介质分布特征及风险评估[D]. 上海: 上海师范大学, 2019.
- [40] 曾超, 蒋科伟, 钱佳, 等. 固相萃取-液质联用分析药物和个人护理品[J]. *环境监控与预警*, 2016, 8(5): 34–37.
- [41] JIANG X, QU Y, LIU L, et al. PPCPs in a drinking water treatment plant in the Yangtze River Delta of China: Occurrence, removal and risk assessment[J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2019, 13(2): 1–13.
- [42] JIANG X, ZHU Y, LIU L, et al. Occurrence and variations of pharmaceuticals and personal-care products in rural water bodies: a case study of the Taige Canal (2018–2019) [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 762(1): 143138.
- [43] QI W, MÜLLER B, PERNET-CAUDRIER B, et al. Organic micropollutants in the Yangtze River: seasonal occurrence and annual loads[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 472(1): 789–799.
- [44] YANG Y, CHEN Z, ZHANG J, et al. The challenge of micropollutants in surface water of the Yangtze River[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 780(1): 146537.
- [45] 胡烨, 徐辉, 王殿常, 等. 长江重点江段枯水期药物及个人护理品 (PPCPs) 的空间分布特征及来源[J]. *环境科学学报*, 2022, 42(2): 164–173.
- [46] 张国栋, 董文平, 刘晓晖, 等. 我国水环境中抗生素赋存、归趋及风险评估研究进展[J]. *环境化学*, 2018, 37(7): 1491–1500.
- [47] YANG Y, FU J, PENG H, et al. Occurrence and phase distribution of selected pharmaceuticals in the Yangtze Estuary and its coastal zone [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 190(1–3): 588–596.
- [48] 高立红, 史亚利, 厉文辉, 等. 抗生素环境行为及其环境效应研究进展[J]. *环境化学*, 2013, 32(9): 1619–1633.
- [49] 王琦, 武俊梅, 彭晶倩, 等. 饮用水系统中药物和个人护理用品的研究进展[J]. *环境化学*, 2018, 37(3): 453–461.
- [50] DU J, ZHAO H, LIU S, et al. Antibiotics in the coastal water of the South Yellow Sea in China: occurrence, distribution and ecological risks[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 595(1): 521–527.
- [51] 张智博, 段艳平, 沈嘉豪, 等. 长三角一体化示范区青浦区水环境中 22 种 PPCPs 的多介质分布特征及风险评估[J]. *环境科学*, 2022, 43(1): 349–362.
- [52] 姜蕾, 陈书怡, 杨蓉, 等. 长江三角洲地区典型废水中抗生素的初步分析[J]. *环境化学*, 2008, 27(3): 371–374.
- [53] 朴海涛. 京杭运河及沿岸区域地表水中药物及个人护理品污染地理分布特征及来源辨析[D]. 北京: 中国地质科学院, 2017.
- [54] WEI R, GE F, HUANG S, et al. Occurrence of veterinary antibiotics in animal wastewater and surface water around farms in Jiangsu Province, China [J]. *Chemosphere*, 2011, 82(10): 1408–1414.
- [55] 刘昔, 王智, 王学雷, 等. 我国典型区域地表水环境中抗生素污染现状及其生态风险评价[J]. *环境科学*, 2019, 40(5): 2094–2100.
- [56] 张松. 黄河流域典型药物和个人护理品的污染特征与生态风险[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2020.
- [57] 张芹, 张圣虎, 汪贞, 等. 骆马湖表层水体中 32 种 PPCPs 类物质的污染水平、分布特征及风险评估[J]. *环境科学*, 2017, 38(1): 162–169.
- [58] 陈宇, 王涌涛, 黄天寅, 等. 骆马湖水体中药品及个人护理品的污染特征及风险评估[J]. *环境科学研究*, 2021, 34(4): 902–909.
- [59] 唐娜, 张圣虎, 陈玫宏, 等. 长江南京段表层水体中 12 种磺胺类抗生素的污染水平及风险评价[J]. *环境化学*, 2018, 37(3): 505–512.
- [60] LI S, SHI W, LIU W, et al. A duodecennial national synthesis of antibiotics in China's major rivers and seas (2005–2016) [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 615(1): 906–917.
- [61] 苏超, 崔严. 长江流域淡水生态系统内分泌干扰物、药物和个人护理品的风险排序[J]. *环境科学*, 2020, 41(11): 4981–4988.
- [62] 刘娜, 金小伟, 王业耀, 等. 我国地表水中药物与个人护理品污染现状及其繁殖毒性筛查[J]. *生态毒理学报*, 2015, 10(6): 1–12.
- [63] 潘潇, 强志民, 王为东. 巢湖东半湖饮用水源区沉积物药品和个人护理品 (PPCPs) 分布与生态风险[J]. *环境化学*, 2016, 35(11): 2234–2244.
- [64] 胡丽霞. 上海市水环境中药品和个人护理品 (PPCPs) 环境生态风险评价[D]. 上海: 东华大学, 2014.
- [65] 刘敏, 殷浩文, 许慧慧, 等. 上海市水源中药品及个人护理品污染现状分析及生态风险评价[J]. *环境与职业医学*, 2019, 36(7): 609–615.
- [66] LIU M, YIN H W, WU Q. Occurrence and health risk assessment of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) in tap water of Shanghai [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, 183(1): 109497.