

DOI:10.11918/202209076

北极地区水环境中 PPCPs 的污染现状研究进展

闵熙泽^{1,2}, 张子峰^{1,2}, 滕雨芊^{1,2}, 蔡明红³, 李一凡^{1,2}

(1. 北极环境与生态国际联合研究中心, 极地研究院(哈尔滨工业大学), 哈尔滨 150001;
2. 中国高校极地联合研究中心, 北京 100875; 3. 中国极地研究中心, 上海 200136)

摘要: 药物及个人护理产品 (PPCPs) 是一种国内外广泛关注的新型污染物, 其在北极地区水环境中的出现引起了多国政府与环保组织的高度重视。通过归纳北极地区水环境中 PPCPs 的来源、浓度、分布及归趋, 发现近北极地区的河流输送、大气与海洋长距离传输、废液的直接排放和污水处理厂排放是 PPCPs 进入北极地区水环境的主要途径。北极地区水环境中典型的 PPCPs 为抗癫痫药、非甾体抗炎药 (NSAIDs)、抗抑郁药、兴奋剂和增塑剂, 其具有“假性持久性”, 类似于非北极地区水环境中 PPCPs 的环境行为。目前, 有关北极地区 PPCPs 污染控制技术、北极地区淡水环境中 PPCPs 污染水平的调查、北极地区水环境中 PPCPs 的性质以及环境行为等方面的研究有待加强。

关键词: 药物和个人护理产品; 北极地区; 浓度水平; 水环境

中图分类号: X52

文献标志码: A

文章编号: 0367-6234(2023)06-0019-14

Review of PPCPs pollution in water environments of the Arctic region

MIN Xize^{1,2}, ZHANG Zifeng^{1,2}, TENG Yuqian^{1,2}, CAI Minghong³, LI Yifan^{1,2}

(1. International Joint Research Center for Arctic Environment and Ecosystem, Polar Academy (Harbin Institute of Technology), Harbin 150001, China; 2. University Corporation for Polar Research, Beijing 100875, China;
3. Polar Research Institute of China, Shanghai 200136, China)

Abstract: Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) are a new pollutant of widespread concern at home and abroad, and their presence in the water environment of the Arctic region has attracted great attention of governments and environmental organizations. The source, concentration, distribution, and fate of PPCPs in the Arctic water environments were reviewed in this paper. The river transportation from pan-Arctic regions, long-distance transportation by the atmosphere or the ocean, direct discharge of waste liquids, and residues from sewage treatment plants were found as the main pathways for PPCPs entering into the Arctic water environments. The antiepileptic drugs, non-steroidal anti-inflammatory drugs (NSAIDs), antidepressants, stimulants, and plasticizers were typical PPCPs in the Arctic water environments, and they had "pseudo-persistence", which were similar to the environmental behavior of PPCPs in the water environments of the non-Arctic regions. At present, researches on the pollution control technology of PPCPs in the Arctic region, the pollution level of PPCPs in the Arctic freshwater environment, the physical and chemical properties of PPCPs in the Arctic water environments and their environmental behaviors need to be improved.

Keywords: pharmaceuticals and personal care products (PPCPs); Arctic region; concentration levels; water environment

通常所说的“北极”多数情况下是指“北极地区”, 北极地区的南界通常包括地理学角度定义的北极圈(北纬 66°33'), 以及物候学角度定义的 7 月份平均 10 °C 等温线(海洋为 5 °C 等温线)^[1]。北极地区是地球重要的冷源, 其对全球气候变化的响应和反馈作用迅速, 是全球气候和环境变化的驱动器之一^[2-4]。并且北极地区具有独特的战略空间价值

和资源价值, 近年来逐渐成为国际社会高度关注的热点地区之一^[5]。但是, 由于频繁的资源开发以及旅游业的开展, 北极地区已经受到多种化学污染物的直接污染, 引起了各国政府与环保组织的高度重视^[6]。北极监测与评估计划 (Arctic Monitoring and Assessment Program, AMAP) 于 2016 年报告了多种类新污染物在北极地区的赋存, 这些污染物给北极

收稿日期: 2022-09-18; 录用日期: 2022-11-09; 网络首发日期: 2023-01-20

网络首发地址: <https://kns.cnki.net/kcms/detail/23.1235.t.20230119.1530.001.html>

基金项目: 自然资源部极地科学重点实验室开放基金 (KP201705); 城市水资源与水环境国家重点实验室开放基金 (ESK202005); 黑龙江头雁团队“启航计划”以及北极大学联盟基金 (UA 04/2020); 中央高校基本科研业务费专项资金 (2022FRFK060013)

作者简介: 闵熙泽 (1997—), 女, 博士研究生; 李一凡 (1949—) 男, 教授, 博士生导师

通信作者: 张子峰, zifeng_zhang@aliyun.com

地区脆弱的生态环境带来严峻的挑战^[7,9-10]。因此,北极地区新污染物的持续监测对北极资源的可持续开发以及人类健康的保护有着重要意义。

药物及个人护理品(pharmaceuticals and personal care products, PPCPs)作为一类新污染物日益受到关注^[11]。PPCPs 主要包括各种人类用药(如抗生素、非甾体类抗炎药、抗抑郁药、兴奋剂、镇静剂和激素等),以及个人护理品(防晒剂、遮光剂、杀菌消毒剂和洗涤剂等)两大类物质^[12-14]。随着经济社会的发展和医疗条件的改善,PPCPs 的使用量与日俱增,PPCPs 的全球年产量超过 2×10^7 t,且仅人类用药的年全球使用量就高达 1×10^6 t^[15-16]。但是由于污水处理厂(sewage treatment plants, STP)对多数 PPCPs 及其代谢产物的去除能力十分有限,残留的 PPCPs 随出水排放至受纳水体,成为水环境中 PPCPs 的主要来源之一^[11,17]。自 1976 年对污水中氯贝酸药物污染的首次报道,近几十年来,PPCPs 对全球水环境的污染日益严峻,甚至在北极等偏远地区水域中频繁检出 PPCPs 污染物,AMAP 报告了多种类 PPCPs 在北极地区淡水环境以及海水环境中的广泛分布^[9]。而 PPCPs 的生产制造服务于特定的生理生化功能,其在较低质量浓度下仍具有较强的生物活性,将对水中非靶生物产生潜在毒性效应,干扰其内分泌系统^[18-19]。例如,1~4 ng/L 的 17α -乙炔基雌二醇会使鱼类产生不良反应。研究表明,激素药物已对北极地区的水生生物造成一定的生态风险,因此,北极水环境中 PPCPs 的污染现状不容忽视^[20-22]。尽管如此,目前对北极地区水环境中 PPCPs 污染的认识仍不足,进而可能低估 PPCPs 在北极地区的环境风险。本文归纳了北极地区水环境中 PPCPs 的污染来源,在此基础上重点阐述了 PPCPs 在北极地区淡水环境和海水环境中的浓度、分布以及归趋。本研究将进一步开展北极地区 PPCPs 环境风险评估及污染控制等研究提供参考依据。

1 北极地区水环境中 PPCPs 的来源

由于并没有北极地区(包括欧洲及俄罗斯北极地区)PPCPs 生产源的相关报道,可以认为并未有因 PPCPs 的制造而产生的对北极地区水环境的污染^[9,23]。此外,虽然已有报道 PPCPs 能够通过雨水对土壤中粪肥的冲刷及垃圾渗滤液进入水环境^[24],但是由于相关监测数据的缺乏以及北极圈内国家对固体废物存放的较严监管,并不能确认此方式为北极地区水环境中 PPCPs 的污染来源。图 1 绘制了水环境中 PPCPs 的来源与途径示意。

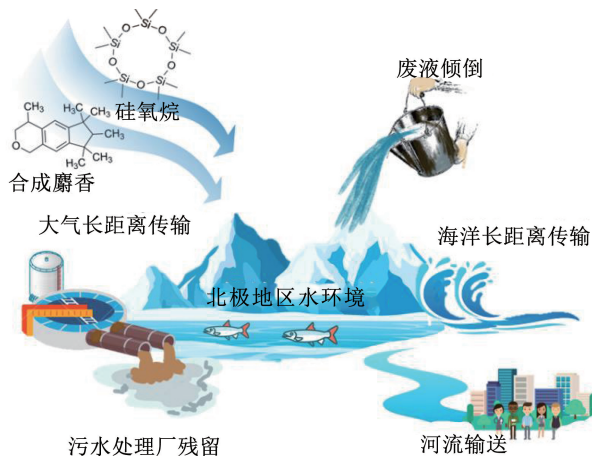


图 1 北极地区水环境中 PPCPs 的来源与途径示意

Fig. 1 Diagram of sources and pathways of PPCPs in the water environment of the Arctic region

1.1 近北极地区的河流输送

据不完全统计,北冰洋每年接纳河流流量约为 $4\,300\text{ km}^3$,其中,亚洲、北美洲和欧洲贡献流量分别占总流量的 55%、28% 和 17%^[25],而 PPCPs 污染物普遍存在于全球河流中^[22],并具有通过河流传输至受纳海水的能力^[26-27],因此,河流传输很可能是北极地区水环境中 PPCPs 赋存的来源之一。但是由于北极地区河流中 PPCPs 污染水平相关报道的缺乏,难以直接估算北极海水受纳河流的 PPCPs 通量。挪威大西洋洋流(Norwegian Atlantic Current, NwAC)^[28]是将挪威海海水带入北冰洋的重要洋流,而北海作为毗邻挪威海的重要海域,其位于人口较为稠密的中欧地区(约有 1.85 亿人居居住在流入北海的河流的集水区),因此,通过河流输送汇入北海的 PPCPs 很可能经由洋流进入北极海水环境。Wolschke 等^[27]计算了中欧向北海输送的苯并三唑类物质(为人类用药^[29])的总流量为 78 t/a,其中,莱茵河占了向北海输送苯并三唑类物质的河流质量总流量的 72%,其每年分别通过北海运河、新航道运河、艾塞尔河和荷兰迪普河向北海输送 22 t 的苯并三唑以及 35 t 的甲基苯并三氮唑。Zhang 等^[26]分别使用了点采样和被动采样法估算了苏格兰乌吉河进入河口和北海中 PPCPs 的质量流量,发现了布洛芬、扑热息痛、卡马西平、曲马多、三氯生和双氯芬酸的质量流量之和分别为 4 636 和 4 517 g(分别经由点采样和被动采样法估算结果)。此外,北极地区包括了加拿大哈得逊湾内海的部分区域,其是温尼伯湖经由纳尔逊河汇入的受纳水域,据 Challis 等^[30]报道,每年约有 20 kg 的卡马西平进入温尼伯湖,且红河谷作为注入温尼伯湖的河流,卡马西平、甲基红霉素、新诺明、磺胺吡啶的负荷量分别为 128、33、68 和 150 $\mu\text{g}/(\text{人}\cdot\text{d})$ 。综上,近北极地区的

河流输送很可能成为 PPCPs 进入北极地区水环境的重要途径。

1.2 大气与海洋长距离传输

少数的 PPCPs 如硅氧烷和合成麝香化合物有较高的挥发性,具有通过大气传输至北极地区海水的的能力。Xie 等^[31]通过对海气交换通量的分析计算,证实了大气沉降是合成麝香化合物进入北极地区海水的重要途径^[32]。相比之下,大多数 PPCPs 化合物具有较强的极性和较弱的挥发性,这些理化性质虽然不利于 PPCPs 经由大气长距离迁移,但是有助于其随海水长距离迁移至北极海域^[10,33]。

Brumovsk 等^[33]通过估算 PPCPs 随海水长距离传输的空间范围指数,发现丹麦海峡和卡特加特地区中的卡马西平、三氯蔗糖和磺胺甲恶唑可能来源于中欧及北欧人口稠密地区的河流^[34]。位于北欧的波罗的海是世界上污染最严重的海洋之一,其 PPCPs 污染也较为严重,Berndt 等^[34]报道了波罗的海中 39 种药物的赋存,并具有超过 55 t 卡马西平的存量,因此,波罗的海可能成为将药物经洋流传输至北极海域的潜在污染源^[34]。已有报道称挪威沿海海水中半衰期较短的 PPCPs 可能来源于波罗的海以平均 1 ~ 2 节平流速度的向北输送,并估计 PPCPs 由挪威南部传输至北极朗伊尔城需要 1 ~ 2 个月^[33]。

1.3 废液的直接排放

北极地区水环境中 PPCPs 的直接来源和本地人为污染源密切相关^[31,35]。例如,格陵兰北极地区具有“小聚集、多散落”的人口居住特点,集中式废水收集系统和污水处理设施的建设有着经济局限性,因此,居民倾向于将未经处理的桶式厕所废液及生活污水直接倾倒入周边河流及海域^[10,36-37]。而这些液体中人体未完全代谢的残留药物及多种类个人护理品的浓度水平较高,成为北极地区水环境中 PPCPs 污染的重要来源之一^[35]。

1.4 污水处理厂残留

许多污水处理厂的处理工艺难以有效去除污水中的 PPCPs,而北极地区寒冷的气候条件以及有限的经济条件使得污水中 PPCPs 的去除更具有局限性^[11,38]。北极城市污水处理设施分布在人口相对较密集的挪威特罗姆瑟、挪威朗伊尔城、挪威奥勒松和丹麦格陵兰,据不完全统计人口分别约为 75 638、>2 000、66 258 和 55 992 人,北极地区绝大多数城市仅采用一级污水处理工艺(沉淀、过滤等),但是一级污水处理工艺着重于污泥颗粒物对 PPCPs 的吸附去除,对极性较强的 PPCPs 去除能力微弱,致使 PPCPs 随出水污染北极地区受纳水体^[35,39-40]。

表 1 列出了北极地区污水处理厂(sewage treatment plant,STP)进水、出水和污泥中常见的 PPCPs 种类及其含量,以进一步分析 STP 对北极水环境中 PPCPs 污染的贡献。从表 1 可以看出,北极地区 STP 中的 PPCPs 主要分为兴奋剂、非甾体抗炎药(nonsteroidal anti-inflammatory drugs,NSAIDs)、抗抑郁药、抗菌剂和抗癫痫药 5 个组别,以下归纳其在北极地区 STP 中含量及分布。

1) 兴奋剂。从表 1 可以看出,北极地区 STP 中检测出的兴奋剂主要为咖啡因及其代谢产物^[41]。Tø 的 STP 进水中咖啡因的质量浓度为 54 700 ng/L,类似于其在美国波士顿及葡萄牙里亚镇 STP 进水中质量浓度水平^[42]。但注意到 Tø 的 STP 出水中咖啡因质量浓度水平(501 ~ 280 000 ng/L)类似于其在 Tø 进水中的质量浓度水平,且质量浓度最大值高于其在波士顿、北京和曼谷 STP 出水中质量浓度最大值 1 ~ 3 个数量级,说明了北极地区 Tø 的 STP 对咖啡因较弱的去除能力^[36,43-45]。与此同时发现了 Ny 的 STP 出水中具有较高质量浓度的咖啡因代谢产物(副黄嘌呤和/或茶碱 230 ~ 310 μg/L)^[43-45],这可能是由于咖啡在挪威的人均消费量高达 9.7 kg,而人体摄入咖啡后,约有 5% 的咖啡因未能被消化,且约有 80%、4% 的咖啡因分别由肝脏代谢为副黄嘌呤和茶碱,造成了大量咖啡因及其代谢产物随尿液排出进入污水系统,并随出水污染水体^[46-47]。

2) 抗癫痫药。卡马西平是水环境中最常检测到的抗癫痫药之一,Tø 市布雷维卡 STP 出水中卡马西平的质量浓度为 250 ~ 400 ng/L,类似于挪威近北极地区 STP 出水(230 ~ 475 ng/L)以及法国某 STP 出水(112 ~ 258 ng/L)中卡马西平的质量浓度^[48]。研究表明,未配备专门处理卡马西平工艺的 STP 对其去除效率通常小于 10%,这是因为常规的污水处理设施如生物处理及滴滤池通常针对 mg/L 质量浓度水平卡马西平的去除,而对 ng/L 质量浓度水平卡马西平的降解能力有限^[48-49]。因此,布雷维卡 STP 仅采用一级污水处理工艺对卡马西平较弱的去除能力,造成了其在北极地区 STP 出水中较高浓度的赋存^[48-49]。

3) 抗菌剂。三氯生是重要的个人护理品,其被广泛地应用于防腐和抗菌,清洁剂、牙膏、消毒剂等产品中三氯生的质量分数范围通常为 0.1% ~ 0.3%^[53]。Tø 的 STP 进水中三氯生的质量浓度为 430 ng/L,类似于其在北极地区 Tø(350 ~ 480 ng/L)及 Byen(28 ~ 803 ng/L) STP 出水中的质量浓度水平,说明了北极地区 STP 对三氯生的去除能力极其有限。

表 1 北极地区 STP 进水、出水和污泥中常见的 PPCPs 及其浓度

Tab. 1 Common PPCPs and their mass concentrations in influent, effluent, and sludge of the STP in the Arctic region					
组别	物质名称	$\rho_{\text{进水}}/(\text{ng}\cdot\text{L}^{-1})$	$\rho_{\text{出水}}/(\text{ng}\cdot\text{L}^{-1})$	$w_{\text{污泥}}/(\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}\text{干重})$	文献
兴奋剂	咖啡因	54 700 (T ϕ^2)	30 200 ~ 126 000 (T ϕ^2) ; 180 000 ~ 280 000 (Ny) ; 501 ~ 50 704 (Byen)		[10,36,50]
	咖啡因代谢产物		230 000 ~ 310 000 (Ny) *		[50]
抗癫痫药	卡马西平	n. d. (T ϕ^1)	n. d. (T ϕ^1) ; 250 ~ 400 (T ϕ^3)	120 ~ 195 (T ϕ^3)	[36,51]
非甾体抗炎药 (NSAIDs)	双氯芬酸	n. d. (T ϕ^1)	78 (T ϕ^2) ; 30 (T ϕ^1) ;29 ~ 180 (Ny) ; 30 ~ 1074 (Byen) ; 23.5 (GL) ; 14.3 (GL-H)	2.77 (GL) ; 1.87 (GL-H)	[10,36, 50,52]
	萘普生		1 200 ~ 3 150 (T ϕ^3) ; 250 ~ 990 (Ny) ; 106 (GL)	8 ~ 17 (T ϕ^3) ; 8.01 (GL)	[50 ~ 52]
	布洛芬	600 (T ϕ^1)	448 (T ϕ^2) ; 150 ~ 680 (T ϕ^1) ; 30 ~ 403 (Byen) ; 700 (GL) ; 2 810 (GL-H)	30.1 (GL) ; 48.2 (GL-H)	[10,36,52]
	扑热息痛		3 300 ~ 6 000 (T ϕ^3) ; 7 990 (GL) ; 20 600 ~ 25 800 (GL-H)	< LOD (T ϕ^3) ; 447 (GL) ; 85.2 (GL-H)	[51 ~ 52]
	帕罗西汀	0.6 ~ 12.3 (T ϕ^4)	3 ~ 13 (T ϕ^2) ; n. d. (T ϕ^1) ; n. d. (Byen) ; 2.7 (GL) ; 20.8 (GL-H)	<0.19 (GL) ; 1.15 (GL-H)	[10,36 ~ 37, 52]
	羟基布洛芬	1 320 (T ϕ^1)	3 614 (T ϕ^2) ; 210 ~ 1 130 (T ϕ^1) ; 8 ~ 1 398 (Byen)		[10,36]
	羧基布洛芬	1 630 (T ϕ^1)	70 170 (T ϕ^2) ; 70 ~ 1 270 (T ϕ^1) ; 411 ~ 34 028 (Byen)		[10,36]
	抗菌剂	三氯生	430 (T ϕ^1)	350 (T ϕ^2) ; 160 ~ 480 (T ϕ^1) ; 28 ~ 803 (Byen)	[10,36]
抗抑郁药	氟西汀	0.4 ~ 2.4 (T ϕ^4)	1 ~ 5 (T ϕ^2) ; n. d. (T ϕ^1) ; n. d. (Byen) ; <4.17 (GL) ; <4.17 (GL-H)	0.13 (GL-H)	[10,36 ~ 37,52]
	西酞普兰	13 ~ 612 (T ϕ^4)	63 ~ 102 (T ϕ^2) ; 130 (GL) ; 192 (GL-H)	51.6 (GL) ; 134 (GL-H)	[10,37,52]
	氟伏沙明	0.4 ~ 3.9 (T ϕ^4)	0.8 ~ 1.7 (T ϕ^2) ; n. d. (Byen)		[10,37]
	舍曲林	1.8 ~ 2.5 (T ϕ^4)	8 ~ 90 (T ϕ^2) ; n. d. (T ϕ^1) ;	13 (T ϕ^3) ;	[10,36 ~ 37, 51 ~ 52]
			5 ~ 31 (T ϕ^3) ; n. d. (Byen) ; 1.96 (GL) ; <0.42 (GL-H)	<0.1 (GL) ; 28.8 (GL-H)	

注:Byen,挪威朗伊尔城;T ϕ^1 ~ ϕ^4 ,4 个文献报道的挪威特罗姆瑟;GL,丹麦格陵兰城镇;GL-H,丹麦格陵兰医院;Ny,挪威奥勒松;LOD,limit of detection;n. d.,not detected;* Kim 等使用液相色谱-高分辨率质谱检测咖啡因代谢产物时未能够将副黄嘌呤和茶碱分离,因此,Ny 中的咖啡因代谢物代表副黄嘌呤和/或茶碱^[48-50]。

4) NSAIDs。NSAIDs 是主要用于治疗疼痛、发烧等症状的非甾体类抗炎药^[54]。北极地区 STP 中检出的 NSAIDs 包括双氯芬酸、萘普生、扑热息痛、帕罗西汀、布洛芬、羟基布洛芬和羧基布洛芬。STP 进水中布洛芬的质量浓度为 600 ng/L,羟基布洛芬和羧基布洛芬是人体摄入布洛芬后的代谢产物,其质量浓度分别为 1 320、1 630 ng/L^[36]。布洛芬、羟基布洛芬和羧基布洛芬的质量分数占比分别为 16.9%、37.2%、45.9%,类似于 Weigel 等^[36]报道的其在排泄物内 15%、26%、43% 的占比,说明 STP 进水中的 3 种药物来源于人体对布洛芬的摄入及代谢作用^[36]。布洛芬 (150 ~ 680 ng/L)、羟基布洛芬

(210 ~ 1 130 ng/L)、羧基布洛芬 (70 ~ 1 270 ng/L) 在 T ϕ 的 STP 出水中质量浓度水平类似于其在 T ϕ 的 STP 进水中质量浓度水平,说明此 STP 仅对污水过滤的处理方法对水中布洛芬及其代谢产物的去除能力十分有限^[36]。值得注意的是,格陵兰医院 (GL-H) 的 STP 出水中扑热息痛质量浓度高达 25 800 ng/L,且 GL-H 的 STP 污泥中扑热息痛质量分数仅为 85.2 ng/g 干重,这可能因为扑热息痛的 log K_{ow} 低于 2.48 (为 0.46),较高的极性使其不倾向于吸附至污泥或悬浮颗粒物,造成其在出水中较高的质量浓度^[51,55]。

5) 抗抑郁药。北极地区 STP 中检测出的抗抑

郁药主要包括氟西汀、西酞普兰、舍曲林和氟伏沙明,这 4 种物质均属于选择性血清素再摄取抑制剂 (selective serotonin reuptake inhibitors, SSRIs)^[56]。STP 进水中西酞普兰的质量浓度最大值为 612 ng/L, 高于其在挪威非北极城市奥斯陆进水中的质量浓度最大值(303.6 ng/L)^[56]。挪威北极地区 STP 进水中 SSRIs 污染可以归因于挪威市场 20 世纪 90 年代对 SSRIs 的引入以及使用量的迅速增加,截至 2006 年,约有 4% 的挪威居民至少服用一种 SSRIs^[56]。而相较于挪威非北极地区,北极地区自然光照的缺乏增加了抑郁症的患病率,更高 SSRIs 的使用量造成了其在北极地区 STP 进水中的高质量浓度赋存^[57]。Tø 的 STP 出水中检测出的氟西汀(1~5 ng/L)和氟伏沙明(0.8~1.7 ng/L)的质量浓度水平类似于其在 Tø 的 STP 进水中质量浓度水平,这同加拿大 STP 对这两种 SSRIs 的去除结果相似^[58-59],说明了此 STP 对低 ng/L 质量浓度范围氟西汀和氟伏沙明有限的去除能力。北极地区出水中西酞普兰的质量浓度最大值为 192 ng/L,将其和进水中西酞普兰质量浓度最大值比较,估算出北极地区 STP 对其去除效率为 68.62%,同时发现其在北极地区 STP 污泥中的质量分数(51.6~134 μg/kg 干重)较高,因此,一定程度上说明了具有较高分配系数的西酞普兰倾向于由污泥吸附去除^[55]。值得注意的是,舍曲林在 Tø 的 STP 出水中的质量浓度水平(5~90 ng/L)高于其在 Tø 的 STP 进水中质量浓度水平(1.8~2.5 ng/L),这可能是由于 Tø 各监测点所处位置和年际间的污染物质量浓度数据的差异,因此,亟需加强对北极地区 STP 中舍曲林的检测。

综上,北极地区 STP 现有的处理工艺对兴奋剂、NSAIDs、抗菌剂、抗癫痫药和 SSRIs 的去除能力仍有限,且去除效果与 PPCPs 的理化性质紧密相关,从而致使 PPCPs 随出水进入受纳海水或河流中,成为自然水环境中 PPCPs 重要来源之一。

2 PPCPs 在北极水环境中的含量与分布

2.1 北极地区淡水环境

目前,关于北极地区淡水环境中 PPCPs 质量浓度的报道仅局限于加拿大北极地区,其中,剑桥湾镇天然苔原湿地由自然湖泊或地表径流组成,容纳了污水存贮塘的出水^[60]。表 2 列出了加拿大北极地区湖泊和湿地中 PPCPs 的平均质量浓度,可以看出,加拿大北极地区湖泊以及湿地中赋存的 PPCPs 主要为抗癫痫药(卡马西平)、β 阻滞剂(阿替洛尔、美托洛尔)、NSAIDs(萘普生)和抗生素(新诺明、磺

胺吡啶和甲氧苄啶)4 类药物。

加拿大北极地区 PPCPs 的平均质量浓度见图 2,结合图 2 和表 2 可以看出,卡马西平的平均质量浓度总值最高,为 4 395 ng/L。通过与表 3 比较可以看出,在非污水存贮塘放水期间,加拿大北极地区淡水环境中卡马西平质量浓度水平(50~951 ng/L)类似于其在加拿大安大略淡水环境中质量浓度最大值(749 ng/L),远高于其在美国密歇根湖(2.23 ng/L)、意大利马焦雷湖(<1 ng/L)、巴西帕拉诺阿湖(5~25 ng/L)和中国太湖(0.24~8.74 ng/L)中质量浓度水平。而在存贮塘放水期间,卡马西平在湿地中较高赋存质量浓度水平(2 740 ng/L)类似于其在以色列某污水存贮塘中质量浓度(1 500 ng/L^[61])。此外,北极地区淡水环境中萘普生和甲氧苄啶也具有较高的质量浓度,分别为 339.0 和 211.0 ng/L。萘普生的质量浓度类似于其在美国、芬兰非北极地区淡水环境的质量浓度水平,但是低于其在南非河流的质量浓度。而甲氧苄啶的质量浓度最大值高于在其他非北极地区淡水环境中质量浓度水平。这可能是因为研究报道了甲氧苄啶在模拟湿地中的质量浓度范围为 24~112 ng/L^[62],甲氧苄啶在污水存贮塘放水期间的湿地中质量浓度(148 ng/L)高于在其他淡水水体中质量浓度。

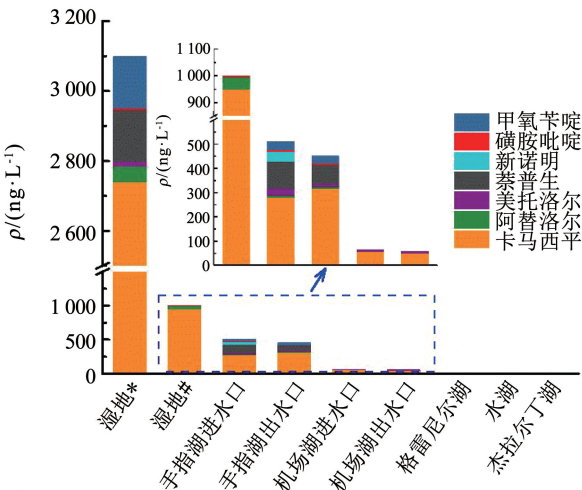


图 2 PPCPs 在加拿大北极地区淡水环境中的平均质量浓度
Fig. 2 Average mass concentration of PPCPs in the freshwater environments in the Canadian Arctic region

值得注意的是,不同湖泊中 PPCPs 污染的差别很大。例如,所有药物均在手指湖中被检出,而在格雷厄姆湖和水湖中均未被检测出,且卡马西平、美托洛尔在手指湖中平均质量浓度分别为 280~317、13~29 ng/L,而在机场湖中平均质量浓度分别为 50~57、6.1~6.6 ng/L。并且发现 PPCPs 在湿地和湖泊中平均质量浓度有所差别,由图 2 可以观察到,

阿替洛尔、卡马西平、萘普生和甲氧苄啶在湿地中的质量浓度高于其在湖泊中的质量浓度,这可能是因为这些天然苔原湿地接纳了污水存贮塘的出水,而这些污水存贮塘出水中残留大量 PPCPs 物质,例如,污水存贮塘放水期间剑桥湾镇湿地中卡马西平高达 2 740 ng/L^[60]。此外,注意到手指湖出水口中

阿替洛尔、美托洛尔、萘普生、新诺明、磺胺吡啶和甲氧苄啶质量浓度均略低于其在手指湖入水口质量浓度,且卡马西平、美托洛尔在机场湖出水口中质量浓度略低于其在机场湖入水口质量浓度,说明了北极地区湖泊对部分药物具有净化能力,但是这种净化能力是十分有限的^[60]。

表 2 加拿大北极地区淡水环境中 PPCPs 污染平均质量浓度 ^[60]								
Tab. 2 Mean contaminations of PPCPs in the Canadian Arctic freshwater environments ^[60]								ng·L ⁻¹
城市	地点	ρ (抗癫痫药 卡马西平)	ρ (β 阻滞剂)		ρ (NSAID 萘普生)	ρ (抗生素)		
			阿替洛尔	美托洛尔		新诺明	磺胺吡啶	甲氧苄啶
伊魁特	杰拉尔丁湖	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.		n. d.	n. d.
	手指湖进水口	280	8. 1	29	111	41	8. 2	34
	手指湖出水口	317	6. 4	13	80	<66	6. 1	29
贝克湖	机场湖进水口	57	n. d.	6. 6	<120	<66	n. d.	<12
	机场湖出水口	50	n. d.	6. 1	<120	n. d.	n. d.	<12
	格雷尼尔湖	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.
剑桥湾镇	水湖	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.	n. d.
	湿地 [#]	951	45	<2. 1	n. d.	n. d.	4. 2	n. d.
	湿地 [*]	2 740	44	14	148	<66	4. 7	148
总质量浓度		4 395	103. 5	68. 70	339. 0	41. 00	23. 20	211. 0

注:湿地[#],污水存贮塘未放水时;湿地^{*},污水存贮塘放水期间;n. d.,not detected。

表 3 北极地区及非北极地区淡水中部分 PPCPs 质量浓度比较			
Tab. 3 Comparison of the concentration of some PPCPs in freshwater from Arctic and non-Arctic regions			
物质名称	北极地区	非北极地区	文献
卡马西平	50 ~2 740 ng/L	加拿大安大略 749 ng/L;美国密歇根湖 2. 23 ng/L;意大利马焦雷湖(<1 ng L); 中国太湖 0. 24 ~8. 74 ng/L;巴西帕拉诺阿湖 5 ~25 ng/L	[63 –67]
萘普生	80 ~148 ng/L	美国彭恰尔特恩湖 22 ~107 ng/L;美国密西西比河 37 ~39 ng/L;芬兰哈帕耶尔维湖 22 ~129 ng/L;南非姆博科多温河 6. 84 μ g/L	[68 –70]
甲氧苄啶	29 ~148 ng/L	葡萄牙杜罗河口 15. 7 ng/L;美国密歇根湖的南部 5. 15 ng/L;中国太湖 14. 7 ng/L	[64,71 –72]

2.2 北极海水环境

挪威水研究所和瑞典环境研究所等机构于 2008 年联合开展了对北极地区海水环境中人类用药、水产养殖用药和个人护理产品的筛查研究^[51]。报告表明,特罗姆瑟海峡的海水及底泥中均未检测出阿米替林、阿托伐他汀钙、吗啡、螺旋霉素、他莫昔芬、华法林、阿莫西林、头孢噻肟、头孢噻吩、美罗培南、氧氟沙星、青霉素 G、匹美西林和碘海醇等人类用药以及阿考苯宗、椰油酰胺丙基甜菜碱等个人护理产品^[51]。表 4 对检测出的 PPCPs 及其质量浓度进行总结,可以看出,北极地区海水及海水底泥中检测出的 PPCPs 主要位于挪威特罗姆瑟、挪威朗伊尔城和丹麦格陵兰,包括兴奋剂、 β 阻滞剂、抗癫痫药、NSAIDs、抗菌剂、增塑剂、显影剂、抗生素和抗抑郁药 9 个组别共 17 种物质,其在北极地区海水中总质

量浓度最大值为 1 204 ng/L。图 3 比较了北极地区海水中不同 PPCPs 的质量浓度,发现北极地区海水中扑热息痛的污染最为严重,其在格陵兰海水中的质量浓度最大值为 698 ng/L,远高于其在法罗群岛近海海域中质量浓度(43. 2 ng/L),说明了北极地区海水中扑热息痛污染状况严峻^[52]。表 5 比较了北极地区海水中部分 PPCPs 与其在非北极地区的质量浓度最大值,发现北极地区海水中咖啡因(130 ng/L)、布洛芬(120 ng/L)和碘普胺(50 ng/L)的污染较为严重,这可能是因为北极地区海水对这些 PPCPs 较弱的有效稀释和降解能力^[10]。并且发现北极地区海水中酞酸二乙酯的质量浓度较高(139 ng/L),这可能是因为酞酸二乙酯为邻苯二甲酸酯(PAEs)类化合物,而 PAEs 的产量高(全球总产量每年超过 800 万 t),应用广泛,并且很容易通

过工业废水和生活污水迁移至环境中^[73-75]。因此, 加强对北极地区酞酸二乙酯及其他 PAEs 污染的关注是十分必要的。值得注意的是, 通过比较可以看出, 萘普生在北极地区海水中质量浓度(5~12 ng/L)低于其在北极地区淡水中一个数量级(80~148 ng/L), 且卡马西平在北极地区淡水环境中的质量浓度范围为 50~2 740 ng/L, 高于其在北极地区海水中质量浓度 1~3 个数量级(1 ng/L)。相同 PPCPs 在北极地区海水和淡水中的质量浓度差异可能是, 相比分布于人口相对密集地区的淡水水体, 本地污染源对海水的直接污染相对较弱。

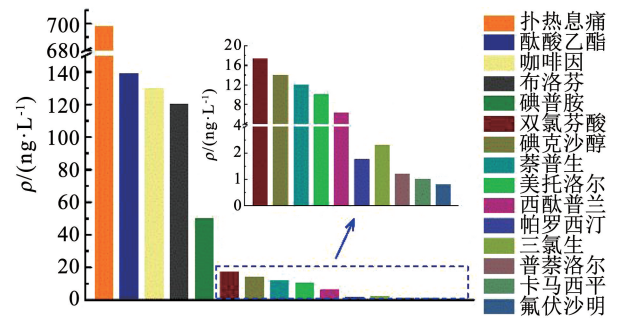


图 3 北极地区海水环境中 PPCPs 的质量浓度最大值

Fig. 3 Maximum concentration of PPCPs in the Arctic seawater environment

由表 4 可以看出, 现有报道中并未在北极地区海水底泥中检出普萘洛尔、卡马西平、萘普生、帕罗西汀、酞酸二乙酯和氟西汀, 而检出的 PPCPs 单位干重质量分数普遍较低, 主要包括美托洛尔(0.67 μg/kg)、双氯芬酸(0.18~0.19 μg/kg)、西酞普兰(1.20~3.69 μg/kg)、布洛芬(0.18~0.21 μg/kg)、碘克沙醇(5~7 μg/kg)、舍曲林(0.16~0.27 μg/kg)以及碘普胺(1~2 μg/kg)。PPCPs 在北极地区海水底泥中的赋存种类和质量分数水平类似于其在冰岛、法罗群岛近北极海域中的结果, 说明 PPCPs 在北极和近北极地区海水底泥中具有相似的赋存特征^[20]。此外, 注意到北极地区海水中质量浓度较高的扑热息痛并未在海水底泥中被检出, 这可能是由于扑热息痛较低的辛醇水系数 $\log K_{ow}=0.268$, 使其倾向于在海水中富集。并且注意到, 虽然 Tø 地区海水中具有高质量浓度的酞酸二乙酯, 但是在 Tø 地区海水底泥中未检测出这种物质, 这可能是因为 PAEs 在沉积物-海水界面迁移特征的研究表明, 低分子质量的酞酸二乙酯相比高分子质量的 PAEs 更倾向于从沉积物扩散至海水中, 导致了其在北极地区海水底泥中的质量分数低于检测限^[73]。

表 4 北极地区海水环境中 PPCPs 的污染水平				
Tab. 4 Contamination levels of PPCPs in the Arctic seawater environment				
类别	物质名称	$\rho_{\text{海水}}/(\text{ng} \cdot \text{L}^{-1})$	$w_{\text{海水底泥}}/(\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1} \text{干重})$	文献
兴奋剂	咖啡因	7~87 (Tø ¹); 4.6~130 (Ny); 24~41 (Byen)		[10,36,50]
β 阻滞剂	美托洛尔	n. d. (Ny); 10.1 (GL)	0.67 (GL)	[50-52]
	普萘洛尔	0.5~1.2 (Tø ³)	n. d. (Tø ³)	
抗癫痫药	卡马西平	1 (Tø ³)	n. d. (Tø ³)	[51]
NSAIDs	双氯芬酸	n. d. (Ny); 1~4 (Byen); 10.6 (GL); 17.3 (GL-H)	0.18 (GL); 0.19 (GL-H)	[10,50,52]
	萘普生	5~12 (Tø ³); n. d. (Ny); <1.05 (GL)	n. d. (Tø ³); <0.1 (GL)	[50-52]
	布洛芬	0.1~0.7 (Tø ¹); 0.4~1 (Byen); 120 (GL); 0.98 (GL-H)	0.21 (GL); 0.18 (GL-H)	[10,36,52]
	扑热息痛	698 (GL); <20.8 (GL-H)	<5.0 (GL); <5.0 (GL-H)	[52]
	帕罗西汀	0.6~1.4 (Byen); <1.51 (GL); 1.76 (GL-H)	<0.19 (GL); <0.19 (GL-H)	[10,52]
抗菌剂	三氯生	2~2.3 (Byen)		[10]
增塑剂	酞酸二乙酯	17~139 (Tø ³)	<LOD (Tø ³)	[51]
显影剂	碘普胺	10~50 (Tø ³)	1~2 (Tø ³)	[51]
	碘克沙醇	14 (Tø ³)	5~7 (Tø ³)	[51]
抗抑郁药	氟西汀	n. d. (Tø ²); n. d. (Byen); <4.17 (GL); <4.17 (GL-H)	<0.1 (GL); <0.1 (GL-H)	[10,36-37,52]
	西酞普兰	<LOQ (Tø ²); n. d. (Byen); 6.25 (GL); 0.50 (GL-H)	3.69 (GL); 1.20 (GL-H)	[10,37,52]
	氟伏沙明	n. d. (Tø ²); 0.5~0.8 (Byen)		[10,37]
	舍曲林	n. d. (Tø ²); <LOQ (Byen); <0.42 (GL); <0.42 (GL-H)	0.27 (GL); 0.16 (GL-H)	[10,37,52]

注:Byen,挪威朗伊尔城;Tø¹⁻³,3 个文献报道的挪威特罗姆瑟;GL,丹麦格陵兰;GL-H,丹麦格陵兰医院;Ny,挪威奥勒松;LOD,limit of detection; LOQ,limit of quantitation;n. d.,not detected.

表 5 北极地区及非北极地区海水中部分 PPCPs 质量浓度比较

Tab. 5 Comparison of the concentration of some PPCPs in seawater from the Arctic and non-Arctic regions			
物质名称	北极地区	非北极地区	文献
酞酸二乙酯	139 ng/L	热带西太平洋 n. d. ~2. 11 ng/L;西北太平洋边缘海域 0. 001 3 ~0. 070 2 μg/L;马赛湾 0. 000 3 ~0. 050 0 μg/L	[74 – 75]
咖啡因	130 ng/L	北海 2 ~ 16 ng/L;地中海 n. d. ~5 ng/L; 俄勒冈州沿海 1. 6 ~ 1. 9 ng/L;马萨诸塞湾海水 5. 2 ~ 71 ng/L	[44, 76]
布洛芬	120 ng/L	中国台湾北部沿海水 <2. 5 ~ 57. 1 ng/L	[77]
碘普胺	50 ng/L	科威特海水(2014 年) n. d. ;奥斯洛峡湾 3 ~ 9 ng/L	[51, 78]
注: n. d. , not detected。			

2.3 北极地区海洋生物

 北极地区海洋生物体内 PPCPs 的监测数据十分有限, 目前主要由挪威空气研究所(NILU) 和北欧部长会议(Norden) 分别于 2009 和 2014 年开展筛查^[79 – 80]。从表 6 可以看出, 现有关于 PPCPs 的监测

地点主要集中在挪威和格陵兰岛(丹麦) , 监测物种主要为不同属的鲑鱼, 且因为鱼类肝脏和肌肉对 PPCPs 较强的蓄积能力, 肝脏和肌肉为 PPCPs 在北极地区鲑鱼体内富集的主要器官^[81]。

表 6 北极地区海洋生物中 PPCPs 的污染水平

Tab. 6 Contamination levels of PPCPs in the marine biota								
类别	物质名称	缩写	质量分数水平/ (ng·g ⁻¹)	国家	地名	种类	名称	器官 参考文献
硅氧烷	六甲基环三硅氧烷	D3	3. 6 ~ 10. 4	挪威	孔斯峡湾	大西洋鲑鱼	<i>Gadus morhua</i>	肝脏 [79]
	八甲基环四硅氧烷	D4	2. 6 ~ 9. 2		孔斯峡湾	大西洋鲑鱼	<i>Gadus morhua</i>	
	十甲基环戊二烷	D5	2. 2 ~ 19. 1		孔斯峡湾	大西洋鲑鱼	<i>Gadus morhua</i>	
	十二烷甲基环己烷硅氧烷	D6	2. 2 ~ 10. 7		孔斯峡湾	大西洋鲑鱼	<i>Gadus morhua</i>	
增塑剂	邻苯二甲酸(2-乙基己基) 酯	DEHP	126 ~ 293		比勒峡湾	极地鲑鱼	<i>Boreogadus saida</i>	
			125 ~ 203		孔斯峡湾	大西洋鲑鱼	<i>Gadus morhua</i>	
表面活性剂	烷基三甲基铵	ATACs *	< LOQ	格陵兰岛 (丹麦)	萨那湾	大西洋鲑鱼	<i>Gadus morhua</i>	肌肉 [80]
			< LOQ		殖民港	格陵兰鲑鱼	<i>Gadus ogac</i>	
			4. 7		努克伊梅克 ¹		<i>Gadus ogac</i> ;	
						格陵兰鲑鱼	<i>shorthorn sculpin</i> ;	
			11		努克伊梅克 ²		<i>Myoxocephalus scorpius</i>	
			1. 4		萨那湾	大西洋鲑鱼	<i>Gadus morhua</i>	
杀菌剂	苯扎氯铵	BACs *	< LOQ		殖民港	格陵兰鲑鱼	<i>Gadus ogac</i>	
			1. 8		努克伊梅克 ¹		<i>Gadus ogac</i> ;	
						格陵兰鲑鱼	<i>shorthorn sculpin</i> ;	
			1. 0		努克伊梅克 ²		<i>Myoxocephalus scorpius</i>	
			0. 3		萨那湾	大西洋鲑鱼	<i>Gadus morhua</i>	
			< LOQ		殖民港	格陵兰鲑鱼	<i>Gadus ogac</i>	
	二烷基二甲基铵	DDACs *	0. 5		努克伊梅克 ¹		<i>Gadus ogac</i> ;	
						格陵兰鲑鱼	<i>shorthorn sculpin</i> ;	
			< LOQ		努克伊梅克 ²		<i>Myoxocephalus scorpius</i>	

 注: 努克伊梅克^{1, 2}分别为此地的两个采样点; * ATACs, BACs, DDACs 分别表示 ATAC-C12, ATAC-C14, ATAC-C16, ATAC-C18, ATAC-C20, ATAC-C22; BAC-C12, BAC-C14, BAC-C16, BAC-C18; DDAC-C10, DDAC-C12, DDAC-C14, DDAC-C14; 16, DDAC-C16, DDAC-C16; 18, DDAC-C18 的浓度总值; LOQ, limit of quantitation。

从图 4 可以看出,增塑剂 DEHP (90.94%) 为挪威鳕鱼肝脏内主要 PPCPs 污染物,其在极地鳕鱼 (*Boreogadus saida*) 以及大西洋鳕鱼 (*Gadus morhua*) 肝脏内质量分数水平相似,分别为 126 ~ 293、125 ~ 203 ng/g,且总质量分数最大值为 496 ng/g,类似于其在瓦朗厄尔峡湾(挪威)中鱼样品中质量分数水平^[83],但低于其在相近年限中国东海(n. d. ~1 940.81 ng/g)、中国香港(200 ~4 260 ng/g)海洋鱼类中 DEHP 质量分数水平^[84]。相比之下,北极地区鳕鱼肝脏内的硅氧烷质量分数水平较低,且 D3、D4、D5 和 D6 的质量分数水平相似,质量分数范围分别为 3.6 ~ 10.4、2.6 ~ 9.2、2.2 ~ 19.1 和 2.2 ~ 10.7 ng/g。和大西洋工业化地区相比,D5 质量分数低于其在奥斯洛峡湾鳕鱼肝脏中质量分数 2 个数量级(2 200 ng/g)^[79]。

挪威北极地区鳕鱼肝脏中增塑剂以及硅氧烷的赋存与其理化性质密切相关,DEHP 和硅氧烷均为半挥发性物质,其倾向于通过大气传输并沉降进入北极地区海水,进而在鱼体内富集^[82]。而 DEHP 的质量分数较高,这可能由于其在聚氯乙烯制备过程

中的频繁使用,据报道,塑料制品中 DEHP 的质量分数在 1% ~ 40%^[82]。此外,挪威北极地区鳕鱼肝脏中的硅氧烷可能归因为其在挪威的广泛应用(挪威 2004 年对 D4 和 D5 的使用量为 42 t)以及其难以降解的化学性质^[85]。虽然硅氧烷在北极地区生物体内的质量分数相对较低,但是 D4 被欧盟视为具有潜在生育能力受损风险的物质,并且 D5 具有潜在致癌性,因此,北极地区鳕鱼内的硅氧烷不容忽视。

如图 4 所示,表面活性剂 ATACs 为鳕鱼肌肉中主要赋存的污染物(75.85%),不同链长 ATACs 的总质量分数最大值为 15.70 ng/g。其次为杀菌剂 BACs(20.29%),其总质量分数最大值为 4.20 ng/g。而 DDACs 类杀菌剂的总质量分数相对较低(0.80 ng/g)。由表 6 可知,格陵兰鳕鱼 (*Gadus ogac*、*shorthorn sculpin* 和 *Myoxocephalus scorpius*) 为受到 ATACs 和 BACs 污染的主要物种。据报道,ATACs 和 BACs 具有生物累积性,可能在食物链/网中被生物放大,造成其在高营养级生物中的富集,进而潜在危害生物与人类健康^[80]。

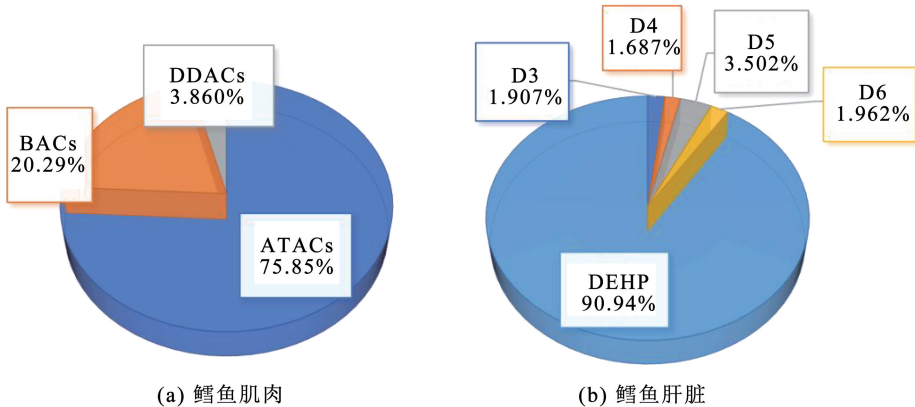


图 4 北极地区海洋生物中 PPCPs 的分布

Fig. 4 Distribution of PPCPs in the Arctic marine biota

3 北极地区自然水体中 PPCPs 的归趋

通过前文所述,PPCPs 通过本地污染源以及长距离传输进入北极地区自然水环境(淡水、海水和海洋生物),考虑到进入水环境的有机污染物将在不同的环境相间发生迁移,且有机污染物的物理化学参数和其环境归趋紧密相关^[86],因此,结合北极地区 PPCPs 物理化学性质对其在北极地区水环境中(海水为主要赋存环境)的环境归趋探讨是十分必要的。

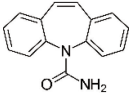
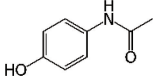
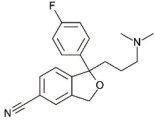
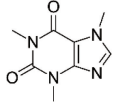
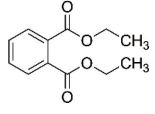
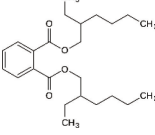
通过对 PPCPs 在北极水环境中污染水平的归纳可知,抗癫痫药(卡马西平)、NSAIDs(扑热息痛)、抗抑郁药(西酞普兰)、兴奋剂(咖啡因)和增塑剂(酞酸二乙酯、邻苯二甲酸(2-乙基己基)酯)为北

极地区水环境中高浓度赋存的典型 PPCPs 污染物,表 7 对这 6 类物质的物理化学性质加以总结。可以看出,北极地区水体中主要赋存 PPCPs 的水溶解度在中高范围(112 ~ 14 000 mg/L),因此,水体为这些 PPCPs 的主要赋存环境。这 6 类物质在水体中普遍具有较短的半衰期(360 h)^[87],因此,这些 PPCPs 的高浓度赋存可能是其广泛使用以及污染源的持续排放造成的。此外,应用了 BIOWIN 模型^[88]评估有机化合物的生物降解能力,进而揭示其在环境中的归宿,发现抗癫痫药和 NSAIDs 不易生物降解(生物降解值 < 0)。并且研究表明,卡马西平^[89]和扑热息痛^[90]在自然水体中具有有限的生物降解速率,说明了这些 PPCPs 进入北极地区水体中的高浓度赋存可能是由于其较弱的生物降解性。而相比之下,北

极地区海水中的兴奋剂和增塑剂的生物降解较快(生物降解值>0.5),侧面说明了北极地区浓度较高 PPCPs 赋存的主要原因为污染源的持续排放。

log K_{ow} 可以表示有机化学物质吸附至底泥或者沉积物的能力。通过表 7 可以看出,北极地区水体中主要赋存 PPCPs 的 log K_{ow} 均小于 3^[91],较低的 log K_{ow} 说明进入海水中的 PPCPs 不倾向于吸附并富集至底泥中,这与表 4 中海水底泥中扑热息痛、酞酸二乙酯未被检出的结论相一致。但是,海水底泥中

主要的 PPCPs 污染物西酞普兰的 log K_{ow} 相对较高,在底泥中具有较长的半衰期(38 900 h),并且不易生物降解(生物降解值<0),因此,进入北极地区海水中的西酞普兰倾向于富集至海水底泥。此外,发现邻苯二甲酸(2-乙基己基)酯具有极高的 log K_{ow} (8.39),且难溶于水(0.270 mg/L),其进入北极地区海水中倾向于富集至鱼体内,而邻苯二甲酸(2-乙基己基)酯增塑剂对水生生物有毒有害^[11],已有研究表明其对鱼类的内分泌干扰效应^[92]。

表 7 北极地区水环境中典型 PPCPs 的物理化学性质										
Tab.7 Physical chemical properties of typical PPCPs in the Arctic water environment										
类别	赋存 介质	物质 名称	CAS 号	物质结构	摩尔质量/ (g·mol ⁻¹)	水溶解度/ (mg·L ⁻¹)	log K_{ow}	水中 半衰 期/h	底泥中 半衰 期/h	生物 降解值*
抗癫痫药	淡水	卡马西平	298-46-4		236	112	2.45	900	8 100	-0.074
NSAIDs	海水	扑热息痛	103-90-2		151	1.40 × 10 ⁴	0.26	360	3 240	-0.112
抗抑郁药	海水底泥	西酞普兰	59729-33-8		324	31.1	3.74	4 320	38 900	-1.59
兴奋剂	海水	咖啡因	58-08-2		194	2.16 × 10 ⁴	0.16	360	3 240	0.502
增塑剂	海水	酞酸二乙酯	84-66-2		222	1.08 × 10 ³	2.65	360	3 240	0.691
	生物	邻苯二甲酸(2-乙基己基)酯	117-81-7		390	0.270	8.39	360	3 240	-0.227

注:数据来源为 EPI suite;* 基于厌氧线性模型生物降解值。

综上,在北极地区寒冷水体温度条件下(例如北冰洋的的表面海水温度为-1.8℃^[93],低于世界海洋的平均表面温度),进入北极地区自然水体中的高浓度 PPCPs 虽然部分具有生物降解去除的能力,但是由于 PPCPs 较广泛的使用以及污染源的持续排放,造成了北极地区 PPCPs 的“假性持久性”,长期以高浓度赋存在北极地区水环境中,这种“假性持久性”类似于 PPCPs 在非北极地区的环境行为^[94]。

4 结论与展望

北极地区生态环境极其脆弱,PPCPs 在北极地区水环境中的污染将破坏水生生态系统,进而威胁

当地居民健康。目前,北极地区水环境污染来源主要包括近北极地区的河流输送、大气与海洋长距离传输、废液的直接排放和污水处理厂残留。水体为水溶性较高 PPCPs 的主要赋存环境,北极地区水环境中抗癫痫药、NSAIDs、抗抑郁药、兴奋剂和增塑剂 5 类 PPCPs 的污染较为严重,这些 PPCPs 在北极地区水环境中的高浓度赋存可以归因为其较广泛的使用以及污染源的持续排放,因此,具有“假性持久性”,类似于 PPCPs 在非北极地区的环境行为。虽然本文归纳了北极地区水环境中 PPCPs 的来源、浓度及分布,并结合北极地区典型 PPCPs 的理化性质分析其在北极地区的归趋,但是对水环境中 PPCPs 的认识还十分有限,提出以下几点展望:

1) 北极地区 STP 的处理设施较为落后, 致使出水中多种残留的 PPCPs 污染北极地区水环境。因此, 亟需探究 PPCPs 在北极寒冷气候条件下的有效去除措施, 并改进北极地区 STP 的现有污水处理工艺, 为进一步保护北极地区水环境、制定更严格的水质排放标准提供技术支持。

2) 目前, 有关北极地区淡水环境中 PPCPs 的报道还较少, 针对河流中 PPCPs 的研究更是鲜见报道, 而河流传输很可能是北极地区水环境中 PPCPs 赋存的来源之一。相关数据的缺失致使估算亚洲、欧洲以及北美洲大陆向北极地区海水输送的 PPCPs 通量较为困难, 应加强对北极地区淡水环境中 PPCPs 的监测以及相关基础数据的积累。

3) 对北极地区特定水体环境条件下 PPCPs 物理化学性质的报道十分缺失, 因此, 建议加强对北极地区水环境条件下 PPCPs 理化性质的探究, 对更好地理解 PPCPs 在北极地区水环境中的环境行为、建立更好的管理策略有重要意义。

参考文献

[1] 刘惠荣, 孙善浩. 中国与北极: 合作与共赢之路[J]. 中国海洋大学学报(社会科学版), 2016, 2: 1
LIU Huirong, SUI Shanhao. China and the Arctic: the road to cooperation and win-win[J]. Journal of Ocean University of China (Social Sciences Edition), 2016, 2: 1. DOI: 10.16497/j.cnki.1672-335x.2016.02.001

[2] 魏鑫, 李斐, 张胜凯, 等. 基于 CryoSat-2 测高数据的北极格陵兰海海冰干舷高提取研究[J]. 极地研究, 2017, 1: 90
WEI Xin, LI Fei, ZHANG Shengkai, et al. Estimation of sea ice freeboard from Cryosat-2 data in the Arctic Greenland sea[J]. Chinese Journal of Polar Research, 2017, 1: 90. DOI: 10.13679/j.jdyj.2017.1.090

[3] KODAIRA T, WASEDA T, NOSE T, et al. Record high Pacific Arctic seawater temperatures and delayed sea ice advance in response to episodic atmospheric blocking[J]. Scientific Reports, 2020, 10(1): 20830. DOI: 10.5194/egusphere-egu21-9312

[4] OVERLAND J, DUNLEA E, BOX J E, et al. The urgency of Arctic change[J]. Polar Science, 2019, 21: 6. DOI: 10.1016/j.polar.2018.11.008

[5] 杨振蛟, 董海楠. 北极环境问题研究综述[J]. 中国海洋大学学报(社会科学版), 2012(4): 26
YANG Zhenjiao, DONG Hainan. An overview of researches in Arctic environment[J]. Journal of Ocean University of China (Social Sciences Edition), 2012(4): 26

[6] AIYYNA L. 北极地区的环境治理: 复合体制的视角[J]. 杭州: 浙江大学, 2023
AIYYNA L. Environmental governance of Arctic region: regime complex perspectives[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2023

[7] WIT C, MUIR D. Levels and trends of new contaminants, temporal trends of legacy contaminants and effects of contaminants in the Arctic: preface[J]. Science of the Total Environment, 2010, 408(15): 2852. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2009.06.011

[8] SVAVARSSON J, GULS H D, SHAM R C, et al. Pollutants from shipping-new environmental challenges in the subarctic and the

Arctic Ocean[J]. Marine Pollution Bulletin, 2021, 164: 112004. DOI: 10.1016/j.marpolbul.2021.112004

[9] AMAP. AMAPassessment 2016: Chemicals of emerging Arctic concern, Arctic monitoring and assessment programme (AMAP): ISBN-978-82-7971-104-9 [R]. Oslo, Norway: [s. n.], 2017

[10] KALLENBORN R, BRORSTRÖM-LUNDÉN E, REIERSEN L O, et al. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in Arctic environments: indicator contaminants for assessing local and remote anthropogenic sources in a pristine ecosystem in change[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2018, 25(33): 33001. DOI: 10.1007/s11356-017-9726-6

[11] CHATURVEDI P, SHUKLA P, GIRI B S, et al. Prevalence and hazardous impact of pharmaceutical and personal care products and antibiotics in environment: a review on emerging contaminants[J]. Environmental Research, 2021, 194: 110664. DOI: 10.1016/j.envres.2020.110664

[12] BEEK T, WEBER F A, BERGMANN A, et al. Pharmaceuticals in the environment-global occurrences and perspectives[J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2016, 35(4): 823. DOI: 10.1002/etc.3339

[13] 胡洪营, 王超, 郭美婷. 药品和个人护理用品(PPCPs)对环境的污染现状与研究进展[J]. 生态环境, 2005, 14(6): 947
HU Hongying, WANG Chao, GUO Meiting. The present status of environmental pollution by pharmaceuticals and personal care products (PPCPs)[J]. Ecology and Environment, 2005, 14(6): 947. DOI: 10.16258/j.cnki.1674-5906.2005.06.032

[14] 沈国宸, 耿金菊, 吴刚, 等. 高级氧化联合生物活性炭工艺深度净化污水中 PPCPs 研究进展[J]. 环境科学学报, 2019, 39(10): 3195
SHEN Guochen, GENG Jinju, WU Gang, et al. Advanced treatment of PPCPs in wastewater by advanced oxidation coupled with biological activated carbon: progresses and perspectives[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019, 39(10): 3195. DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2019.0281

[15] WEI Xiaoxiao, WANG Yuzhi, CHEN Jing, et al. Adsorption of pharmaceuticals and personal care products by deep eutectic solvents-regulated magnetic metal-organic framework adsorbents: performance and mechanism[J]. Chemical Engineering Journal, 2020, 392: 124808. DOI: 10.1016/j.cej.2020.124808

[16] WANG Jianlong, WANG Shizong. Removal of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) from wastewater: a review[J]. Journal of Environmental Management, 2016, 182: 620. DOI: 10.1016/j.jenvman.2016.07.049

[17] KOSMA C I, LAMBROPOULOU D A, ALBANIS T A. Investigation of PPCPs in wastewater treatment plants in Greece: occurrence, removal and environmental risk assessment[J]. Science of the Total Environment, 2014, 466/467: 421. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2013.07.044

[18] 周程, 吴南翔, 范宏亮. 药物及个人护理品对鱼类毒性的研究进展[J]. 环境与职业医学, 2017, 34(12): 1123
ZHOU Cheng, WU Nanxiang, FAN Hongliang. Research advance on toxicity of pharmaceuticals and personal care products on fish[J]. Journal of Environmental & Occupational Medicine, 2017, 34(12): 1123. DOI: 10.13213/j.cnki.jeom.2017.17388

[19] 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繁殖毒性筛查[J]. 生态毒理学报, 2015, 10(6): 1
LIU Na, JIN Xiaowei, WANG Yeyao, et al. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) caused reproductive toxicity in surface water of China: a review[J]. Asian Journal of

- Ecotoxicology, 2015, 10 (6): 1. DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20150323014
- [20] HUBER S, REMBERGER M, KAJ L, et al. A first screening and risk assessment of pharmaceuticals and additives in personal care products in waste water, sludge, recipient water and sediment from Faroe Islands, Iceland and Greenland[J]. Science of the Total Environment, 2016, 562: 13. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2016.03.063
- [21] FENT K, WESTON A A, CAMINADA D. Ecotoxicology of human pharmaceuticals[J]. Aquatic Toxicology, 2006, 76 (2): 122. DOI: 10.1016/j.aquatox.2005.09.009
- [22] EBELE A J, ABDALLAH M A, STUART H. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in the freshwater aquatic environment[J]. Emerging Contaminants, 2017, 3(1): 1. DOI: 10.1016/j.emcon.2016.12.004
- [23] ЛЫКОВ И, КУСАЧЕВА С, САФРОНОВА М, et al. Загрязнение окружающей среды фармацевтическими препаратами. экология и промышленность России [J]. Экология и промышленность России, 2020, 24 (8): 51. DOI: 10.18412/1816-0395-2020-8-51-55
- [24] DONG Rui, YU Gang, GUAN Yuntao, et al. Occurrence and discharge of pharmaceuticals and personal care products in dewatered sludge from WWTPs in Beijing and Shenzhen [J]. Emerging Contaminants, 2016, 2 (1): 1. DOI: 10.1016/j.emcon.2015.10.003
- [25] YANG Daqing, KANE D L. Arctic hydrology, permafrost and ecosystems [M]. Switzerland: Springer Cham, 2021: 704
- [26] ZHANG Zulin, LEBLEU M, OSPREY M, et al. Risk estimation and annual fluxes of emerging contaminants from a Scottish priority catchment to the estuary and North Sea [J]. Environmental Geochemistry and Health, 2018, 40(5): 1987. DOI: 10.1007/s10653-017-0002-y
- [27] WOLSCHKE H, XIE Zhiyong, MÖLLER A, et al. Occurrence, distribution and fluxes of benzotriazoles along the German large river basins into the North Sea [J]. Water Research, 2011, 45 (18): 6259. DOI: 10.1016/j.watres.2011.09.028
- [28] SKAGSETH Ø, FUREVIK T, INGVALDSEN R, et al. Volume and heat transports to the Arctic Ocean via the Norwegian and Barents seas [M]. Netherlands, Dordrecht: Springer, 2008: 46
- [29] BRIGUGLIO I, PIRAS S, CORONA P, et al. Benzotriazole: an overview on its versatile biological behavior[J]. European Journal of Medical Chemistry, 2015, 97: 612. DOI: 10.1016/j.ejmech.2014.09.089
- [30] CHALLIS J K, CUSCITO L D, JOUDAN S, et al. Inputs, source apportionment, and transboundary transport of pesticides and other polar organic contaminants along the lower Red River, Manitoba, Canada[J]. Science of the Total Environment, 2018, 635: 803. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.04.128
- [31] XIE Zhiyong, EBINGHAUS R, TEMME C, et al. Air-sea exchange fluxes of synthetic polycyclic musks in the North sea and the Arctic[J]. Environmental Science & Technology, 2007, 41 (16): 5654. DOI: 10.1021/es0704434
- [32] VORKAMP K, RIGÉT F F. A review of new and current-use contaminants in the Arctic environment: evidence of long-range transport and indications of bioaccumulation[J]. Chemosphere, 2014, 111: 379. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2014.04.019
- [33] BRUMOVSK M, BEČANOVA J, SÁŇKA O, et al. Line ferries and cargo ships for the monitoring of marine contaminants of emerging concern: application along a Europe-Arctic transect[J]. Journal of Hazardous Materials, 2022, 424: 127232. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2021.127232
- [34] BJÖRLENIUS B, RIPSZÁM M, HAGLUND P, et al. Pharmaceutical residues are widespread in Baltic Sea coastal and offshore waters-screening for pharmaceuticals and modelling of environmental concentrations of carbamazepine[J]. Science of the Total Environment, 2018, 633: 1496. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.03.276
- [35] GUNNARSÐÓTTIR R, JENSSEN P D, JENSEN P E, et al. A review of wastewater handling in the Arctic with special reference to pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) and microbial pollution[J]. Ecological Engineering, 2013, 50: 76. DOI: 10.1016/j.ecoleng.2012.04.025
- [36] WEIGEL S, BERGER U, JENSEN E, et al. Determination of selected pharmaceuticals and caffeine in sewage and seawater from Tromsø/Norway with emphasis on ibuprofen and its metabolites [J]. Chemosphere, 2004, 56 (6): 583. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2004.04.015
- [37] VASSKOG T, BERGER U, SAMUELSEN P J, et al. Selective serotonin reuptake inhibitors in sewage influents and effluents from Tromsø, Norway[J]. Journal of Chromatography A, 2006, 1115 (1): 187. DOI: 10.1016/j.chroma.2006.02.091
- [38] EVGENIDOU E N, KONSTANTINOU I K, LAMBROPOULOU D A. Occurrence and removal of transformation products of PPCPs and illicit drugs in wastewaters: a review[J]. Science of the Total Environment, 2015, 505: 905. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2014.10.021
- [39] CHEN Wenling, CHENG Jiunyi, LIN Xiaoqian. Systematic screening and identification of the chlorinated transformation products of aromatic pharmaceuticals and personal care products using high-resolution mass spectrometry[J]. Science of the Total Environment, 2018, 637/638: 253. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.05.011
- [40] JENSEN P E, HENNESSY T W, KALLENBORN R. Water, sanitation, pollution, and health in the Arctic[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2018, 25 (33): 32827. DOI: 10.1007/s11356-018-3388-x
- [41] GRACIA-LOR E, ROUSIS N I, ZUCCATO E, et al. Estimation of caffeine intake from analysis of caffeine metabolites in wastewater [J]. Science of the Total Environment, 2017, 609: 1582. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2017.07.258
- [42] PAÍGA P, RAMOS S, JORGE S, et al. Monitoring survey of caffeine in surface waters (Lis River) and wastewaters located at Leiria town in Portugal[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2019, 26 (32): 33440. DOI: 10.1007/s11356-019-06168-w
- [43] ZHOU Haidong, WU Chunying, HUANG Xia, et al. Occurrence of selected pharmaceuticals and caffeine in sewage treatment plants and receiving rivers in Beijing, China [J]. Water Environment Research, 2010, 82 (11): 2239. DOI: 10.2175/106143010x12681059116653
- [44] SIEGENER R, CHEN R F. Caffeine in Boston Harbor seawater [J]. Marine Pollution Bulletin, 2002, 44(5): 383. DOI: 10.1016/s0025-326x(00)00176-4
- [45] SENTA I, GRACIA-LOR E, BORSOTTI A, et al. Wastewater analysis to monitor use of caffeine and nicotine and evaluation of their metabolites as biomarkers for population size assessment[J]. Water Research, 2015, 74: 23. DOI: 10.1016/j.watres.2015.02.002
- [46] MARTÍNEZ B M J, UCLÉS S, HERNANDO M D, et al. Evaluation of selected ubiquitous contaminants in the aquatic

- environment and their transformation products; a pilot study of their removal from a sewage treatment plant [J]. *Water Research*, 2011, 45(6): 2331. DOI: 10.1016/j.watres.2011.01.011
- [47] RIGUETO C V T, NAZARI M T, DE SOUZA C F, et al. Alternative techniques for caffeine removal from wastewater: an overview of opportunities and challenges [J]. *Journal of Water Process Engineering*, 2020, 35: 101231. DOI: 10.1016/j.jwpe.2020.101231
- [48] LECLERCQ M, MATHIEU O, GOMEZ E, et al. Presence and fate of carbamazepine, oxcarbazepine, and seven of their metabolites at wastewater treatment plants [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2008, 56(3): 408. DOI: 10.1007/s00244-008-9202-x
- [49] PATEL M, KUMAR R, KISHOR K, et al. Pharmaceuticals of emerging concern in aquatic systems: chemistry, occurrence, effects, and removal methods [J]. *Chemical Reviews*, 2019, 119(6): 3510. DOI: 10.1021/acs.chemrev.8b00299
- [50] CHOI Y, KIM K, KIM D, et al. Ny-Alesund-oriented organic pollutants in sewage effluent and receiving seawater in the Arctic region of Kongsfjorden [J]. *Environmental Pollution*, 2020, 258: 113792. DOI: 10.1016/j.envpol.2019.113792
- [51] MARTIN S CHRISTIAN D, LENNART K, et al. Environmental screening of selected organic compounds 2008: TA-2508/2009 [R]. Oslo: Norwegian Pollution Control Authority (SFT), 2009
- [52] HUBER S, REMBERGER M, GÖTSCH A, et al. Pharmaceuticals and personal care products as environmental pollutants in Faroe Islands, Iceland and Greenland [R]. Copenhagen: Nordic Council of Ministers, 2013
- [53] GUERRA P, TESLIC S, SHAH A, et al. Occurrence and removal of triclosan in Canadian wastewater systems [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, 26(31): 31873. DOI: 10.1007/s11356-019-06338-w
- [54] ESLAMI A, AMINI M M, YAZDANBAKSHI A R, et al. Occurrence of non-steroidal anti-inflammatory drugs in Tehran source water, municipal and hospital wastewaters, and their ecotoxicological risk assessment [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2015, 187(12): 734. DOI: 10.1007/s10661-015-4952-1
- [55] IVANOVÁ L, FÁBEROVÁ M, MACKU'AK T, et al. Estimation of amount of selected pharmaceuticals sorbed onto digested sludge from wastewater treatment plant Bratislava-Petržalka [J]. *Environmental Research*, 2017, 155: 31. DOI: 10.1016/j.envres.2017.02.001
- [56] VASSKOG T, ANDERSEN T, PEDERSEN-BJERGAARD S, et al. Occurrence of selective serotonin reuptake inhibitors in sewage and receiving waters at Spitsbergen and in Norway [J]. *Journal of Chromatography A*, 2008, 1185(2): 194. DOI: 10.1016/j.chroma.2008.01.063
- [57] MARQUEZE E C, VASCONCELOS S, GAREFELT J, et al. Natural light exposure, sleep and depression among day workers and shiftworkers at arctic and equatorial latitudes [J]. *PLoS One*, 2015, 10(4): e0122078. DOI: 10.1371/journal.pone.0122078
- [58] LAJEUNESSE A, GAGNON C, SAUVÉ S. Determination of basic antidepressants and their n-desmethyl metabolites in raw sewage and wastewater using solid-phase extraction and liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Analytical Chemistry*, 2008, 80(14): 5325. DOI: 10.1021/ac800162q
- [59] LAJEUNESSE A, SMYTH S A, BARCLAY K, et al. Distribution of antidepressant residues in wastewater and biosolids following different treatment processes by municipal wastewater treatment plants in Canada [J]. *Water Research*, 2012, 46(17): 5600. DOI: 10.1016/j.watres.2012.07.042
- [60] STROSKI K M, LUONG K H, CHALLIS J K, et al. Wastewater sources of per- and polyfluorinated alkyl substances (PFAS) and pharmaceuticals in four Canadian Arctic communities [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 708: 134494. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2019.134494
- [61] GASSER G, RONA M, VOLOSHENKO A, et al. Evaluation of micropollutant tracers. II. Carbamazepine tracer for wastewater contamination from a nearby water recharge system and from non-specific sources [J]. *Desalination*, 2011, 273(2): 398. DOI: 10.1016/j.desal.2011.01.058
- [62] DAN A, YANG Yang, DAI Y N, et al. Removal and factors influencing removal of sulfonamides and trimethoprim from domestic sewage in constructed wetlands [J]. *Bioresource Technology*, 2013, 146: 363. DOI: 10.1016/j.biortech.2013.07.050
- [63] KLEYWEGT S, PILEGGI V, YANG P, et al. Pharmaceuticals, hormones and bisphenol A in untreated source and finished drinking water in Ontario, Canada—occurrence and treatment efficiency [J]. *Science of the Total Environment*, 2011, 409(8): 1481. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2011.01.010
- [64] FERGUSON P J, BERNOT M J, DOLL J C, et al. Detection of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in near-shore habitats of southern Lake Michigan [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, 458/459/460: 187. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2013.04.024
- [65] LOOS R, WOLLGAST J, HUBER T, et al. Polar herbicides, pharmaceutical products, perfluorooctanesulfonate (PFOS), perfluorooctanoate (PFOA), and nonylphenol and its carboxylates and ethoxylates in surface and tap waters around Lake Maggiore in Northern Italy [J]. *Anal Bioanal Chem*, 2007, 387(4): 1469. DOI: 10.1007/s00216-006-1036-7
- [66] LIU Na, JIN Xiaowei, YAN Zheng, et al. Occurrence and multiple-level ecological risk assessment of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in two shallow lakes of China [J]. *Environmental Sciences Europe*, 2020, 32(1): 69. DOI: 10.21203/rs.2.23424/v2
- [67] SODRÉ F F, CAVALCANTI C M P. Method development for assessing carbamazepine, caffeine, and atrazine in water sources from the Brazilian Federal District using UPLC-QTOF/MS [J]. *International Journal of Analytical Chemistry*, 2018, 2018: 4593793. DOI: 10.1155/2018/4593793
- [68] BOYD G R, REEMTSMA H, GRIMM D A, et al. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in surface and treated waters of Louisiana, USA and Ontario, Canada [J]. *Science of the Total Environment*, 2003, 311(1): 135. DOI: 10.1016/s0048-9697(03)00138-4
- [69] BROZINSKI J M, LAHTI M, MEIERJOHANN A, et al. The Anti-Inflammatory drugs diclofenac, naproxen and ibuprofen are found in the bile of wild fish caught downstream of a wastewater treatment plant [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(1): 342. DOI: 10.1021/es303013j
- [70] MADIKIZELA L M, CHIMUKA L. Occurrence of naproxen, ibuprofen, and diclofenac residues in wastewater and river water of KwaZulu-Natal province in South Africa [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2017, 189(7): 348. DOI: 10.1007/s10661-017-6069-1
- [71] MADUREIRA T V, BARREIRO J C, ROCHA M J, et al. Spatiotemporal distribution of pharmaceuticals in the Douro River estuary (Portugal) [J]. *Science of the Total Environment*, 2010,

- 408(22): 5513. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2010.07.069
- [72] LIN Tao, YU Shilin, CHEN Wei. Occurrence, removal and risk assessment of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) in an advanced drinking water treatment plant (ADWTP) around Taihu Lake in China[J]. *Chemosphere*, 2016, 152: 1. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2016.02.109
- [73] WANG Liuyong, GU Yanyu, ZHANG Zeming, et al. Contaminant occurrence, mobility and ecological risk assessment of phthalate esters in the sediment-water system of the Hangzhou Bay[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 770: 144705. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.144705
- [74] ZHANG Qian, SONG Jinming, LI Xuegang, et al. Concentrations and distribution of phthalate esters in the seamount area of the Tropical Western Pacific Ocean[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2019, 140: 107. DOI: 10.1016/j.marpolbul.2019.01.015
- [75] CAO Yaru, LI Jing, WU Rongben, et al. Phthalate esters in seawater and sediment of the northern South China Sea: occurrence, distribution, and ecological risks[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, 811: 151412. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.151412
- [76] REY Z R D, GRANEK E F, SYLVESTER S. Occurrence and concentration of caffeine in Oregon coastal waters[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2012, 64(7): 1417. DOI: 10.1016/j.marpolbul.2012.04.015
- [77] FANG Tienhsi, NAN Fanhua, CHIN T S, et al. The occurrence and distribution of pharmaceutical compounds in the effluents of a major sewage treatment plant in Northern Taiwan region and the receiving coastal waters[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2012, 64(7): 1435. DOI: 10.1016/j.marpolbul.2012.04.008
- [78] GEVAO B, UDDIN S, DUPONT S. Baseline concentrations of pharmaceuticals in Kuwait's coastal marine environment[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2021, 173: 113040. DOI: 10.1016/j.marpolbul.2021.113040
- [79] EVENSET A, LEKNES H, GUTTORM N, et al. Screening of new contaminants in samples from the Norwegian Arctic: TA-2510/2009[R]. Oslo: Norwegian Pollution Control Authority (SFT), 2009
- [80] KAI L, WALLBERG P, BRORSTRÖM-LUNDÉN E. Quaternary ammonium compounds: analyses in a Nordic cooperation on screening: TemaNord2014:556[R]. Copenhagen: Nordic Council of Ministers, 2014
- [81] ROJO M, CRISTOS D, GONZÁLEZ P, et al. Accumulation of human pharmaceuticals and activity of biotransformation enzymes in fish from two areas of the lower Rio de la Plata Basin[J]. *Chemosphere*, 2021, 266: 129012. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2020.129012
- [82] GUO Yin, KURUNTHACHALAM K. Survey of phthalates and parabens in personal care products from the United States and its implications for human exposure[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(24): 14442. DOI: 10.1021/es4042034
- [83] BAKKE T E, FJELD B B, SKAARE J A, et al. Mapping of metals and selected new organic pollutants: TA-2284/2007[R]. Oslo: The State's Pollution Control (SFT), 2007
- [84] HU Xialin, GU Yunyun, HUANG Wenping, et al. Phthalate monoesters as markers of phthalate contamination in wild marine organisms[J]. *Environmental Pollution*, 2016, 218: 410. DOI: 10.1016/j.envpol.2016.07.020
- [85] BAKKE T, BOITSOV S, BREVIK E M, et al. Mapping selected organic contaminants in the Barents Sea 2007: TA-2400/2008[R]. Norwegian: Norwegian Pollution Control Authority (SFT), 2008
- [86] LOHMANN R, BREVIK K, DACHS J, et al. Global fate of POPs: current and future research directions[J]. *Environmental Pollution*, 2007, 150(1): 150. DOI: 10.1016/j.envpol.2007.06.051
- [87] BAYEN S, ZHANG Hui, DESAI M M, et al. Occurrence and distribution of pharmaceutically active and endocrine disrupting compounds in Singapore's marine environment: influence of hydrodynamics and physical-chemical properties[J]. *Environmental Pollution*, 2013, 182: 1. DOI: 10.1016/j.envpol.2013.06.028
- [88] BALAKRISHNAN A, KANCHINADHAM S B K, KALYANARAMAN C. Assessment on biodegradability prediction of tannery wastewater using EPI Suite BIOWIN model[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2020, 192(11): 732. DOI: 10.1007/s10661-020-08661-z
- [89] DURÁN-ÁLVAREZ J C, PRADO B, GONZÁLEZ D, et al. Environmental fate of naproxen, carbamazepine and triclosan in wastewater, surface water and wastewater irrigated soil: results of laboratory scale experiments[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 538: 350. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2015.08.028
- [90] AKAY C, TEZEL U. Biotransformation of Acetaminophen by intact cells and crude enzymes of bacteria: a comparative study and modelling[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 703: 134990. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2019.134990
- [91] GRUNG M, HEIMSTAD E S, MOE M, et al. Human and veterinary pharmaceuticals, narcotics, and personal care products in the environment: TA-2325/2007[R]. Norwegian: Norwegian Pollution Control Authority (SFT), 2008
- [92] 叶婷, 康美, 黄乾生, 等. 邻苯二甲酸二(2-乙基己)酯和邻苯二甲酸单乙基己基酯对幼年期及青年期海洋青鳉 (*Oryzias melastigma*) 的内分泌干扰效应[J]. *环境化学*, 2014, 33: 544
- YE Ting, KANG Mei, HUANG Qiansheng, et al. Endocrine-disrupting effects of DEHP and MEHP on the fry and juvenile stage medaka (*Oryzias melastigma*) [J]. *Environmental Chemistry*, 2014, 33: 544
- [93] SCHANKE N L, BOLINESI F, MANGONI O, et al. Biogeochemical and ecological variability during the late summer-early autumn transition at an ice-floe drift station in the Central Arctic Ocean[J]. 2021, 66: S1. DOI: 10.1002/lno.11676
- [94] 贾媛, 胡建英, 孙建仙, 等. 环境中的医药品与个人护理品[J]. *化学进展*, 2009, 21(2): 389
- JIA Yuan, HU Jianying, SUN Jianxian, et al. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in environment[J]. *Progress in Chemistry*, 2009, 21(2): 389

(编辑 刘 彤)