

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第45卷 第4期 2024年4月15日

目 次

| 基于扩展STIRPAT模型LMDI分解的碳排放脱钩因素 张江艳 基于LEAP模型的工业园区碳达峰路径:以南京某国家级开发区为例 李慧鹏,李荔,殷茵,何文太,宿杰,赵秋月 高校碳排放核算与分析:以北京A高校为例 曹睿,封莉,张立秋 北京市制造业减污降碳协同效应分析和驱动因素 俞珊,韩玉花,牟洁,张双,张增杰 碳排放权交易价格与全要素生产率:来自中国的证据 吴雪萍 中国城市 PM_5和 PM_0时空分布特征和影响因素分析 李江苏,段良荣,张天娇 2017~2021 年苏皖鲁豫交界区域 PM_5和 0,时空变化特征及影响因素 陈伟,徐学哲,刘文清 疫情管控期西安 PM_5和 0,污染特征及成因分析 原晓红,张强,李琦,谢文豪,刘跃廷,樊亭亭,姜旭朋 | (1869) (1879) (1888) (1898) (1907) (1917) (1926) (1938) (1950) (1963) (1975) |
|--|--|
| 那台氨减排对京津冀PM2.5改善的溢出效益 | (1985) |
| 聊城市冬季PM2.5载带金属元素污染特征、风险评价及来源分析 | (2003) |
| 高原城市拉萨典型VOCs排放源成分谱特征 ···································· | (2011) |
| 王洁,姚震,王敏燕,陈速敏,龙腾,王海林,李红,郭秀锐,郝江虹,聂磊 | (2019) |
| 高温极端天气影响下的成都平原一次典型臭氧污染过程分析雷丽娟,张懿,罗伊娜,张潇,冯森 | (2028) |
| 水环境中抗病毒药物的存在、行为与风险 | (2039) |
| 黄河小浪低水库地表水中重金属的时空变化与概率健康风险 | (2054) |
| 藏乐多出河流域锶晶集水化字符值及控制因系 | (2067) |
| 四北内栖区碑小梞疋回位系可至万印付征及共小代木砾 "你说我们这些有些有些有些有些有些有些有些有些。""你不是是这些有些有些有些。""你们还是不是是这些"你是不是是这些问题,你们还是不是不是是不是我们的是不是不是不是我们的是不是不是不是我们的问题。""你们还是你们还是不是你的问题。""你们还是你们还是你们还是你们的是你们还是你们的是你们还是你们还是你们还是你们的吗?""你们还是你们的话题。""你们还是你们还是你们的是你们的是你们的是你们的是你们的是你们的是你们的是你们的是你们的是你们的 | (2080) |
| 至了小化于和氢氧固位系的家女须应有招地下小作用木协及很化过程 | (2090) |
| 金塔盆地鸳鸯池灌区地下水水化学特征及控制因素 | (2107) |
| 德阳市平原区浅层地下水水化学特征与健康风险评价 | (2129) |
| 典型城市河网沉积物微塑料时空分布特征 | (2142) |
| 抚仙湖子流域尺度氮排放清单构建及关键源解析 | (2150) |
| 过氧化钙/海泡石海藻酸钠缓释凝胶复合材料的制备及其对内源磷的控制性能曲思彤,单苏洁,王崇铭,吴玲予,李大鹏,黄勇 | (2160) |
| 矿物超细颗粒的形成机制、结构特征及其环境行为和效应 | (2171) |
| 生物炭固定化菌复合材料在环境修复中的应用研究进展 | (2185) |
| 微塑料对沸石吸附水体氨氮的影响及其机制 | (2195) |
| 紫外老化作用对纳米生物炭吸附环丙沙星的影响机制 | (2203) |
| 土地利用影响下无定河流域浮游植物群落与环境因子响应 | (2211) |
| | () |
| 御阳御健地细菌研络多杆性种肉石养细菌肉肥糕包干皮 | (2223) |
| 御闲砌湿地细菌群落多样性和可培养细菌功能差凶手度 | (2223) (2233) (2246) |
| 御闲砌湿地细菌杆落多杆住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2250) |
| 御闲砌湿地细菌杆落多杆住和可培养细菌切能基因半度************************************ | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) |
| 御闲湖征地细菌杆落多杆住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2268) |
| 御闲湖征地细菌杆落多杆住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2268) (2280) (2292) |
| 御闲湖湿地细菌杆落多杆住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) |
| 御闲御湿地细菌杆落多杆住和可垢养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) |
| 師闲御徑地细菌杆落多样住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) |
| 御闲湖征地细菌杆落多样住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) (2332) |
| 御闲湖征地细菌杆落多样住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2313) (2321) (2332) (2342) |
| 御闲湖征地细菌杆落多样住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) (2332) (2342) (2353) |
| 御闲湖盈地细菌杆落多样住和可培养细菌功能基因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2313) (2321) (2332) (2342) (2353) |
| 御闲湖迎电细菌群落多样住和可培养细菌切能蒸因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) (2332) (2332) (2342) (2353) |
| 師內涵並地抽菌許落多祥性和可培养和菌功能茲因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) (2332) (2332) (2342) (2353) (2363) (2373) (2385) |
| 師问師徑地和圖群落多件性和可培养和國功能差因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2313) (2313) (2321) (2332) (2342) (2353) (2363) (2373) (2385) (2394) |
| 師內加亞地爾爾萨洛多祥住和可培养细菌功能茲因羊皮 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) (2332) (2342) (2353) (2353) (2363) (2373) (2385) (2394) (2406) |
| 邮内调速地和菌杆落多件往和可培养和菌功能基因半皮 與农河沉积物细菌群落结构特征及其与重金属的关系 方水处理厂尾水排放对受纳河流细菌和真菌微生物群落的影响 宏基因组学分析深度处理阶段污水中细菌的赋存特征及其功能 新亚平,张俊华,田惠文,朱航成,刘舒、丁亚鹏 基于连续小波变换,SHAP和XCBoost的土壤有机质含量高光谱反演 叶子壮,王松燕,陆潇,史多鹏,吕慎强,李嘉,杨泽字,王林权 长期施用有机肥对土壤微塑料赋存及迁移特征的影响 土壤盐分变化对 N_0 排放影响:基于 Meta分析 基于土地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量时空变化模拟 影響,影響峰 基于土地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量时空变化模拟 长期、时振软,朱文博,孙梓欣,赵体侠,邓文萍,刘志强 防护林建设过程中土壤微生物养分限制与有机碳组分之间的关系 长期秸秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力 修风罩,黄懿梅,黄倩,申继凯 长期秸秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力 修风罩,黄懿梅,黄倩,申继凯 长期秸秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力 一般生,陈佳钰,李智贤,李永梅,罗志章,杨锐,田明洋,赵吉霞,范茂攀 辽河流域氮素时空分布及其对土地利用和降雨的响应 高强度农业种植区不同景观池塘氧化亚氮排放特征 子服子,陈佳钰,李智贤,李永梅,罗志章,杨锐,田明洋,赵吉霞,范茂攀 红河流域氮素时空分布及其对土地利用和降雨的响应 高强度农业种植区不同景观池塘氧化亚氮排放特征 生物发与不同类型氮肥配施成菜地土壤反硝化细菌群落的影响 小菜、紫油、青香春,高世臣,赵亚楠,景胜强,周艳兵,都允兵 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2313) (2313) (2313) (2313) (2321) (2332) (2342) (2353) (2363) (2373) (2385) (2394) (2406) (2417) |
| 師內爾德地理問輯辞答時作和可培养細菌勿能整因半度 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2313) (2313) (2321) (2332) (2342) (2353) (2363) (2373) (2385) (2394) (2406) (2417) |
| 師时前遲迎祖酒醉落多件往和可培非祖因功能並與主要。 與太河沉积物细菌群落结构特征及其与重金属的关系 污水处理厂尾水排放对受纳可流细菌和真菌微生物群落的影响 基里因学分析深度处理阶段污水中细菌的赋存特征及其功能 为別以区生境质量时空特征及自然-人为因素驱动机制 基于连续小波变换、SHAP和XGBoost的土壤有机质含量高光谱反演 叶子壮、玉松燕、陆潇、史多鹏、吕慎强、李嘉、杨泽字、玉林权 长期施用有机肥对土壤微型料赋存及迁移特征的影响 土壤盐分变化对 N_O 排放影响:基于 Meta 分析 基于土地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量评价与预测 基于上地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量评价与预测 基于LuxEST 模型的伏牛山地区生态系统碳储量时分与预测 基于LvEST 模型的伏牛山地区生态系统碳储量时空变化模拟 防护林建设过程中土壤微生物养分限制与有机碳组分之间的关系 长期能秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力 修凤環、黄鳞梅、黄倩、中缝凯 长期秸秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力 修用、黄花、桃菜、紫皙、时振软、朱文博、孙梓成、赵本段、邓文萍、刘志强 防护林建设过程中土壤微生物养分限制与有机碳组分之间的关系 全绿肥覆盖对土壤团聚体及有机碳和 AMF 多样性的影响 一个资源、紫水梅、罗志章、杨锐、田明洋、赵吉霞、范茂攀 了河流域氯素时空分布及其对土地利用和降雨的响应 高强度农业种植区不同景观池塘壤化亚氮排放特征 生物炭与不同类型氮肥配施对菜地土壤及硝化细菌群落的影响 大菇山不同林龄人工油松林土壤微生物特征 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) (2332) (2342) (2342) (2353) (2363) (2373) (2385) (2394) (2406) (2417) (2428) |
| 邮冲制速地细菌样落多样性和可培养细菌功能整固半皮。如果不用、现象化、季香菜、兔菌松、丁、味 與农河沉积物细菌群落结构特征及其与重金属的关系。 一、如果不要。如果和,蒙俊杰,即小琮、周瑞娟、李霖 为水处理厂尾水排放对受纳河流细菌和真菌微生物群落的影响 家基因组学分析深度处理阶段污水中细菌的赋存特征及其功能 引健双、王燕、周或、汪雅琴、王乘政、李激 大别山区生境质量时空特征及自然-人为因素驱动机制 基于连续小波变换、SHAP和XGBoost的土壤有机质含量高光谱反演。 叶子壮、玉松燕、陆潇、史多鵰、吕慎强、李嘉、杨泽字、王林校 长期施用有机肥对土壤微塑料赋存及迁移特征的影响 土壤盐分变化对N,0排放影响:基于 Meta分析 基于土地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量评价与预测 基于上地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量评价与预测 基于L地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量时空变化模拟 账排秸秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力。 "参花"、般生纸、熟活"、胡雪纯、解文艳、刘志平、周怀平、杨振兴 冬绿肥覆盖对土壤团聚体及有机碳和 AMF多样性的影响 一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) (2332) (2342) (2342) (2353) (2363) (2373) (2385) (2394) (2406) (2417) (2428) (2440) |
| 師中兩種地理相關科格多样性和可培养相關功能整因半皮 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2313) (2313) (2321) (2332) (2342) (2342) (2353) (2363) (2373) (2385) (2394) (2406) (2417) (2428) (2428) (2440) (2450) |
| 御田朝經地理相關許容多样性和同培养相關初比ᆇ四半後 期在, 王库, 凡木, 州页化, 手茶杰, 池固枚, 门 柴子 與衣河沉积物细菌群落结构特征及其与重金属的关系 方水处理厂 民水排放对受纳河流细菌和真菌微生物群落的影响 宏基因组学分析深度处理阶段污水中细菌的赋存特征及其功能 力期工, 定身, 人水因, 蒙俊杰, 部小琮, 周瑞娟, 李霖 大別山区生境质量时空特征及自然-人为因素驱动机制 郑亚平, 张俊华, 田惠文, 朱航成, 刘舒, 丁亚聘 基于连续小波变换, SHAP和XCBoost的土壤有机质含量高光谱反演 叶森, 朱琳, 刘旭东, 黄勇, 陈落落, 李欢 精杯还田、覆膜和施窥对旱地麦田土壤质量的影响 叶子壮, 王松杰, 陆潇, 史多疇, 吕慣溫, 李嘉, 杨泽字, 王林衣 长期施用有机肥对土壤微型料赋存及迁移特征的影响 土壤盐分变化对 N, 0.排放影响, 基于 Meta 分析 畫子上地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量时空变化模拟 张哲, 时振软, 朱文博, 孙梓成, 赵体侯, 邓文萍, 刘志强 基于土地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量时空变化模拟 张哲, 时影软, 朱文博, 孙梓成, 赵体侯, 邓文萍, 刘志强 基定 新华、 新校, 秋田, 北市, 黄常, 部露, 那德杰, 刘新红, 马艳, 罗佳 基于推动用人覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量时空变化模拟 张楷和建微生物养分限制与有机碳组分之间的关系 长期秸秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力 ● 常子, 陈佳纸, 奉智贤, 李永楠, 罗志章, 杨锐, 田明洋, 赵吉霞, 范震, 范震, 龙岳霞, 范蒙, 北市, 二、李贵, 小紫和, 黄常, 郑银国, 罗菊花, 徐向, 郑寿学, 郑相坠 近河流域氮素时空分布及其对土地利用和降雨的响应 ● 常社, 陈佳任, 奉智贤, 李永楠, 罗志章, 杨锐, 田明洋, 赵吉霞, 范震, 范蒙, 李贵, 大岳山, 同市洋, 秋田, 其使, 常寿, 新朝臣, 雷坤, 高强度, 台震, 北梁, 於明, 和县, 李贵, 春, 赤石, 李之章, 大敏, 小市, 新朝, 四省, 高洁, 李贵春, 太岳山, 小市, 北市, 秋田, 北黄, 北市, 北市, 赤, 李忠, 小和, 小市, 北市, 北市, 赤, 李忠, 小和, 赤, 李忠, 北市, 北市, 北市, 北市, 北市, 北市, 北市, 北市, 北市, 北市 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2313) (2313) (2321) (2332) (2342) (2342) (2353) (2363) (2373) (2385) (2394) (2406) (2417) (2428) (2440) (2450) (2450) |
| 咖啡面喻迎迎和商评各步件任和句后养细菌初距差四半段 "加工,工学,之养、 | (2223) (2233) (2246) (2259) (2268) (2280) (2292) (2304) (2313) (2321) (2332) (2342) (2342) (2353) (2363) (2373) (2363) (2373) (2385) (2394) (2406) (2417) (2428) (2440) (2450) (2461) (2473) (2473) |

水环境中抗病毒药物的存在、行为与风险

葛林科,李璇艳,曹胜凯,郑金帅,张蓬*,朱超,马宏瑞

(陕西科技大学环境科学与工程学院,西安 710021)

摘要:当前,甲型流感病毒与新冠病毒感染流行,抗病毒药物(ATVs)被大量使用,并通过各种污染途径不断排放到水环境中, 已成为一类新污染物.ATVs能长期存在于水环境中,并表现出"假持久性",使易感生物或病毒产生耐药性,对水生生物和人 类产生不可忽视的潜在威胁.ATVs在废水和天然水环境中的浓度水平、环境行为以及生态毒理效应备受关注,在梳理文献的 基础上,发现在水环境中ATVs的分析方法、迁移转化和风险评估研究方面取得了突破.通过收集全球不同区域水体中ATVs 的数据,对其污染途径、分析方法、环境存在、行为与风险进行了总结,介绍了水中ATVs常用的前处理和仪器分析方法,重 点探讨了其在地表水环境中的污染现状、分布特征与迁移转化行为,评述了其对环境水域生态和人类健康的潜在风险,最后 对其监测研究、风险识别和污染防治进行了展望.

关键词:抗病毒药物(ATVs);分析方法;存在状况;环境行为;风险评估

中图分类号: X52 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2024)04-2039-15 DOI: 10.13227/j. hjkx. 202304190

Presence, Behavior, and Risk of Antiviral Drugs in the Aqueous Environment

GE Lin-ke, LI Xuan-yan, CAO Sheng-kai, ZHENG Jin-shuai, ZHANG Peng*, ZHU Chao, MA Hong-rui

(School of Environmental Science and Engineering, Shaanxi University of Science & Technology, Xi'an 710021, China)

Abstract: With the pandemic of influenza A virus and coronavirus infection, antiviral drugs (ATVs) have been widely used and continuously released into surface water through various pollution pathways, so they are regarded as a class of emerging pollutants in the environment. ATVs can exist in the aqueous environment for a long time and show "pseudo-persistence", enabling susceptible organisms or viruses to develop drug resistance. Their existence is a potential threat to aquatic organisms and human beings, which cannot be ignored. The concentration levels, environmental behavior, and ecotoxicological effects of ATVs in wastewater and the natural water environment have attracted much attention. Based on previous literature, we found some breakthroughs in analysis methods, migration and transformation, and risk assessment of ATVs in the aqueous environment. Through collecting data on ATVs in different regions of global water bodies, this study summarized their pollution pathways, analytic methods, environmental existence, behavior, and risk. The commonly used pretreatment and instrumental analysis methods of ATVs in water were recommended, and the pollution situation, distribution characteristics, and migration and transformation behavior of ATVs in surface water were thoroughly discussed. Furthermore, the potential ecological and human health risks of ATVs exposure in environmental waters were highlighted. Finally, the research prospects regarding the monitoring research, risk identification, and pollution prevention of ATVs were proposed. **Key words**; antiviral drugs(ATVs); analysis method; existence; environmental behavior; risk assessment

抗病毒药物(antiviral drugs, ATVs)属于药物及 个人护理用品(PPCPs),是一类用于预防和治疗病 毒感染的药物[1],按作用可分为抗流感及呼吸道病 毒药物、抗疱疹病毒药物、抗肝炎病毒药物、抗人 类免疫缺陷病毒(HIV)药物等^[2].如今,全球发病率 最高的传染性疾病是由病毒引起的, ATVs的销量在 全球各类医药中位列前10^[3].与其他药物类似, ATVs 被人和动物病患吸收代谢差,大多数以原形和 代谢物通过尿液和粪便排出体外,经多种污染途径 排放到环境中^[4,5]. 现已在世界范围内许多国家和地 区的废水和天然水环境中检测到ATVs的存在,特 别是在流感、埃博拉和COVID-19等病毒大流行事 件期间^[4,6,7].水环境中残留的ATVs会在不同介质间 迁移,并发生转化反应生成二次产物,通常这些产 物比母体 ATVs 毒性更强,即使浓度很低,也可能 会危及水生态系统安全和人类健康[8].除了毒性作用 外,ATVs还会引起病毒对其产生耐药性^[6].作为病 毒潜在自然宿主的动物长期暴露在含有高浓度 ATVs 及其代谢物的水体中,可能会诱导药物的选择性压

力和病毒突变,加速ATVs耐药性的产生^[9],这种类型的ATVs耐药性被定义为环境获得性抗病毒药物耐药性(environmentally acquired antiviral drug resistance, EDR)^[10].

水环境中ATVs持续存在,表现为假持久性和 难降解性,引起了人们对水生生物的潜在生态毒理 学影响以及野生动物ATVs耐药性发展的担忧.许多 国内外学者对ATVs的环境存在、迁移转化、生态 毒性以及污染控制等进行了研究并取得了突破性的 成果^[11-17].鉴于此,本文通过收集全球不同区域水 体中ATVs的数据,对其环境存在、行为与风险进 行了总结,全面梳理与讨论了水环境中ATVs的污

收稿日期: 2023-04-22;修订日期: 2023-06-26

基金项目:国家自然科学基金项目(21976045,22076112, 21577029);大学生创新创业训练项目(S202210708091); 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2017ZX0760 2-001)

作者简介: 葛林科(1980~),男,博士,教授,主要研究方向为新型有 机污染物的 LC-MS/MS 分析技术与环境行为, E-mail: gelinke@sust.edu.cn

^{*} 通信作者,E-mail: zhangpeng4477@sust.edu.cn

染途径、分析方法、存在状况与迁移转化行为,评述了其暴露在环境水域中的危害与风险,最后对其污染防治、监测研究和风险评估发展方向进行了展望,以期为水环境中ATVs的归趋和环境风险评价提供参考.

1 水环境中抗病毒药物的污染途径

在当前甲流、COVID-19流行的背景下,ATVs 的产量和使用量均不断增长.水环境中ATVs的污染 主要来自制药企业、医院和养殖业的生产、使用和 处置等环节^[4,18],污染来源与途径如图1所示.例如, ATVs的生产过程中会产生大量难降解的高浓度有机 废水,经处理后仍有一定量的药物排入到水体中, 对水环境造成污染.医院及养殖业是药物使用最为 频繁且集中的场所,ATVs在人或动物体内不能被完 全吸收,母体化合物及其代谢物经排泄后随污水排 放进入污水处理厂^[16].因现有常规污水处理工艺对 ATVs的去除效果不佳,大部分药物会随着污水处理 厂出水排入地表水中,通过雨水冲刷、淋溶等作用 对地下水和土壤造成污染^[6].此外,污水处理过程产 生的污泥常残留未降解的药物及其转化产物,水产 养殖中的药物还会通过未被食用的饵料直接进入到 临近水域或沉降富集于底泥中,这些药物及其转化 产物在生物污泥和地表水底部沉积物中的显著积累 可能是环境二次污染的来源^[19,20].被丢弃的过期或未 使用的药物也是ATVs的一种暴露途径,若采用填 埋方式处理这些固体废弃物会导致这些药物通过填 埋场的排水或者渗滤液重新进入环境^[21].





2 水环境中抗病毒药物的分析方法

水环境中的 ATVs浓度处于 ng·L⁻¹~µg·L⁻¹的数量 级^[6],其检测属于微量水平的分析.ATVs的环境监 测主要包括采样、运输、储存、样品前处理、检测 和定量,其中样品前处理及仪器检测的条件在获得 准确分析结果方面起着重要作用.表1总结了近年来 水环境样品中 ATVs常用的分析方法.

2.1 样品前处理技术

样品前处理过程主要包括提取、纯化和富集等 步骤^[37-39],是仪器分析前消除复杂基质中干扰成分 的关键.处理过程操作不当易造成二次污染,引入 新的杂质,影响分析的准确度和灵敏度.水样中 ATVs的前处理技术主要包括固相萃取(SPE)、悬浮 液滴微萃取(SFODME)、中空纤维液相微萃取(HF-LPME)和冷冻干燥等(表1),其中冷冻干燥区别于 其他3种,是一种在冷冻、真空条件下通过升华方 式去除水分的前处理技术.

SPE基于固液分离原理,具有有机溶剂使用量 少、简单快速、分离效率高和重复性好等优点.较 多研究应用SPE提取净化ATVs,其中Oasis HLB和 Isolute ENV⁺固相萃取柱被广泛使用^[24,26,27,30,32,35].由于 目标化合物理化性质(pK_a 和 lg K_{ow} 等)的差异,一种 型号的SPE柱较难实现不同目标物均有很高的回收 率.基于此,Yao等^[31]通过利用ENVI-Carb串联Oasis HLB小柱提取水样中9种ATVs,提取效率

| 仪器 | ATVs缩写 | 样品前 | 色谱条件 | A A | 质谱 | 线性范围 | LOD/LOQ | 应用 | 文 |
|-------------------|--|----------------------------------|---|--|--------------------------------|---|--|------------------------|------|
| 2 S 00 | | 处理 | 色谱柱 | 流动相/流速 | 条件 | | /ng•L ⁻¹ | · · · · · · | 献 |
| HPLC/UV | SOF、DCV、VEL和 LED | SFODME | Agilent Shim-pack C18 (250 mm×4.6 mm, 5 μm) | A:水 B:磷酸盐缓冲液 | _ | $0.01 \sim 5$ mg·L ⁻¹ | 3 000~12 000/ 10 000~40 000 | 地表 水 | [22] |
| LC-MS/MS | OC和OS | 在线 SPE- Shim-pack MAYI-ODS | ACE5 C18-PFP (150 mm×2.1 mm, 5.0 μm) | A:水+0.1%甲酸 B:乙腈 0.2 mL·min ⁻ | ESI⁺ 和 ¹MRM | _ | MDL < 1 | 地表 水/污 水 | [23] |
| | NVP、ZDV和3TC | SPE-Oasis HLB | 反相C18色谱柱(10 mm× 2.1 mm, 3.5 µm)+保护柱 (100 mm×2.1 mm, 3.5 µm) | A:水 B:乙腈+0.1% 甲酸 | ESI ⁺ 和 MRM | $0.01 \sim 1$ mg·L ⁻¹ | 2~13/5~44 | 地表 水 | [24] |
| HPLC-MS | ABC、ACV、EMT、 LMV、ZDV、GCV、 ABV desCP、ABV- COOH、ZDV-COOH、 LMV-S-oxide、LMV- COOH、EMT-S-oxide 着IEMT-COOH | 直接进样 | Synergi Hydro RP (150×3 mm, 4 µm) +保护柱 AQ- C18 (3 mm) | A:水+0.2%甲酸 B:甲醇 450 µL·min ⁻¹ | ESI⁺ 和 MRM | 1~30 000 ng∙L ⁻¹ | na/5~50 | 地表 水/污 水 | [25] |
| HPLC-MS/MS | ACV 、PCV 、D4T 、 ABC 、NVP 、OS 、OC 和 ZDV | SPE-Isolute ENV ⁺ | Synergi Hydro RP (150×3 mm, 4 µm) +保护柱(4×3 mm) | A:水+5 mmol·L ⁻¹ 甲酸铵 B:甲醇 0.4 mL·min ⁻¹ | ESI⁺ 和 MRM | $0.2 \sim 1\ 000$ ng•L ⁻¹ | na/0.2~100 | 地表 水/污 水 | [26] |
| | VACV、ABC、ETV、 ZDV、NVP、GCV、 LDT、3TC、ACV和 AMT | SPE-Isolute ENV ⁺ | Waters ACQUITY UPLC TM BEH C18 (100 mm×2.1 mm, 1.7 μm) | A:水+0.1%甲酸 B:乙腈 0.3 mL·min ⁻¹ | ESI⁺ 和 MRM | $0.5 \sim 200$ ng • L ⁻¹ | na/0.2~5 | 地表水 | [27] |
| 0 | AMT | SPE-MCX | Waters ACQUITY UPLC TM BEH C18 (100 mm×2.1 mm, 1.7 μm) | A:乙腈 B:水+0.1% 甲酸 0.25 mL·min ⁻¹ | ESI⁺ 和 MRM | 1~20 μg•L ⁻¹ | 0.5/1 | 海水 | [28] |
| GM | NVP 和 EFV | 离心后直 接进样 | Waters UPLC [®] C18 Ethylene Bridged Hybrid (BEH) (100 mm×2.1 mm, 1,7 μm) | A:水+0.1%甲酸 B:乙腈+0.1% 甲酸 0.3 mL·min ⁻¹ | APCI | $0 \sim 10\ 000$ ng·L ⁻¹ | 44.4/148 | 地表水 | [15] |
| UPLC-MS/MS | EFV、EMT、3TC、 NVP、RTV、AZT、 AZTG、EFVM、 NVPM 和 RTVM | SPE-Strata SDB-L/直接 进样 | HSS T3 (150 mm×2.1 mm, 1.8 μm) | A:水+0.1%甲酸 B:乙腈 0.3 mL·min ⁻¹ | ESI ^{+/-} 和 MRM | $0.6 \sim 625 \ \mu g \cdot L^{-1}$ | 3~224/na~ 37 500 | 地表 水/污 水 | [29] |
| | OC | SPE-Oasis HLB | UPLC BEH C18 (100 mm×2.1 mm, 1.7 μm) | A:水+0.1%甲酸 B:乙腈 0.35 mL·min ⁻¹ | ESI^{+} | $0.5 \sim 400 \ \mu g \cdot L^{-1}$ | 3.6/12 | 地表 水/污 水 | [30] |
| | ABC、ZDV、EFV、 NVP、RTV、LPV、 3TC、LDT 和 ETV | SPE-Oasis HLB 串联 ENVI-Carb | Agilent ZORBAX eclipse plus C18 (50 mm×2.1 mm, 1.8 μm)+柱前过滤器(2.1 mm, 0.2 μm) | A:水+5 mmol·L ⁻¹ 乙酸铵+0.2% 甲酸 B:甲醇 0.3 mL·min ⁻¹ | ESI⁺ 和 MRM | $2\sim 200$ $\mu g \cdot L^{-1}$ | MDL: 0.02~5.77 MQL: 0.05~ 19.23 | 地表 水/污 水 | [31] |
| UHPLC-MS/ MS | DDC、TDF、3TC、 DDI、D4T、ABC、 ZDV、NVP、IDV、 RTV、EFV 和I LPV | SPE-Oasis HLB | Agilent Zorbax Eclipse XDB C8 (50 mm×3 mm, 1.8 μm) | A:水+0.1%甲酸 B:乙腈+0.1% 甲酸 0.4 mL·min ⁻¹ | ESI ⁺ 和 MRM | $1 \sim 1\ 000$ $\mu g \cdot L^{-1}$ | MDL: 13.4~519 LOQ: 0.04~18.2 | 地表 水/污 水 | [32] |
| | EMT、TDF 和 EFV | HF-LPME | Luna [®] Omega C18 (50 mm×4.6 mm, 3 μm) | A:水+0.1%甲酸 B:乙腈+0.1% 甲酸 | ESI ⁺ | 10~700 μg•L ⁻¹ | 9~160/33~530 | 地表 水/污 水 | [33] |
| HILIC - MS/ MS | ACV 、ABC 、ABC- COOH 、EMT 、EMT- COOH 、EMT-S-oxide 和 3TC | 冷冻干燥 | Zwitterionic HILIC Nucleodur (250 mm×3 mm, 3 µm)+柱护罩(4 mm×3 mm; 3 µm) | A:水+0.1%甲酸 B:(7.5 mmol·L ⁻¹ 甲酸铵+乙腈):水 (90/10)+0.1% 甲酸 0.5 mL·min ⁻¹ | ESI⁺ 和 MRM | _ | —/1~200 | 地表 水/地 下水/ 污水 | [34] |

| 买 衣Ⅰ | | | | | | | | | |
|-----------------|---|--|---|-------------------------------|-------|--------------------------------|--------------------|---------|------|
| 仪器 | | 样品前 处理 | 色谱条件 | | | 坐州本国 | LOD/LOQ | 亡田 | 文 |
| | AIVS细与 | | 色谱柱 | 流动相/流速 | 条件 | 线性犯固 | $/ng \cdot L^{-1}$ | 应用 | 献 |
| RPLC-MS/MS | ABC、ATV、DRV、 IDV、MVC、3TC、 NFV、LPV、NVP、 RAL、RTV和SQV | SPE-Oasis HLB | Hypersil Gold C18 (50 mm×2.1 mm, 1.9 μm) | A:水+0.1%甲酸 B:甲醇+0.1% 甲酸 | HESI⁺ | 10~5 000 ng•L ⁻¹ | 2~20/12~65 | 污水 | [35] |
| GC-TOFMS | NVP 和 EFV | SPE- Cleanert PEP 串联 Bond Elute 硫酸钠干 燥柱 | Phenomenex Zebron ZB- Semivolatiles GUARDIAN columnn (5m guard column, 30 m×0.25 mm× 0.25 μm). | 1.2 mL•min ⁻¹ | | 20~200 ng•L ⁻¹ | 1.8~7.8/6~25.9 | 污水 | [36] |
| GC×GC- TOFMS | EFV | PDMS采样 器+SBSE | Rtx [®] -CLPesticides ΙΙ (30 m×0.25 mm, 0.2 μm) + Rxi [®] -17Sil MS (1 m×0.25 mm, 0.25 μm) | 1.4 mL•min ⁻¹ | _ | 5 ng•L ⁻¹ | _ | 地表 水 | [15] |

1)SFODME为悬浮液滴微萃取,SPE为固相萃取,HF-LPME为中空纤维液相微萃取,SBSE为搅拌棒吸附萃取;LOD表示检测限,LOQ表示定量限,MDL表示方法检出限,MQL表示方法定量限,na表示不可用,"一"表示无数据;ABC为阿巴卡韦、ACV为阿昔洛韦、OS为奥司他韦、OC为奥司他韦较酸盐、DCV为达卡他韦、DRV为达芦那韦、EMT为恩曲他滨、ETV为恩替卡韦、VACV为伐昔洛韦、GCV为更昔洛韦、AMT为金刚烷胺、3TC/LMV为拉米夫定、LED为雷迪帕韦、RAL为雷特格韦、RTV为利托那韦、LPV为洛匹那韦、NFV为奈非那韦、NVP为奈韦拉平、PCV为喷昔洛韦、AZT/ZDV为齐多夫定、DDI为去羟肌苷、SQV为沙奎那韦、D4T为司他夫定、SOF为索非布韦、LDT为替比夫定、TDF为替诺福韦酯、VEL为维帕他韦、EFV为依非韦伦、IDV为茚地那韦、DDC为扎西他滨、ABV desCP为去环丙基阿巴卡韦、ABC-COOH为羧基阿巴卡韦、EMT-COOH为羧基恩曲他滨、LMV-COOH为羧基拉米夫定、ZDV-COOH为羧基齐多夫定、EFVM为8,14-二羟基-依法韦伦、NVPM为12-羟基奈韦拉平、RTVM为去噻唑甲氧羰基、EMT-S-oxide为恩曲他滨硫氧化物、LMV-S-oxide为拉米夫定硫氧化物和ZTG为齐多夫定葡萄糖醛酸

为40%~85%,表明采用不同类型的SPE柱串联是一种较好的固相萃取方式.

相对于 SPE, SFODME 技术简单、快速、廉价 且环保.Kannouma 等^[22]采用涡流辅助 SFODME 提取 尼罗河中 4种 ATVs,回收率在 98%~102% 之间,并 发现在液相微萃取中使用混合溶剂比单一萃取剂具 有更高的提取效率、

HF-LPME技术通过固定在多孔中空纤维孔内的 薄层有机溶剂将分析物从水样中提取出来,其优势 在于具有突出的样品净化功能,小孔径能防止水样 中的大分子和颗粒进入受体相,减少交叉污染^[33,40]. Mlunguza等^[33]的研究证明HF-LPME是从废水和地表 水中有效分离以及预浓缩 ATVs 的方法.

为提取高极性分析物并且能同时富集选定的中性、阳离子和阴离子目标物,Boulard等^[34]将SPE与冷冻干燥两种前处理技术进行比较,发现SPE没有同时保留所有或大部分目标物,而冷冻干燥对7种目标ATVs及转化产物的回收率在73%~120%之间.

此外,也有研究采用直接进样的方法^[15,25,29], 这可省去复杂的萃取步骤,缩短分析时间,减少溶 剂的使用量以及人为操作的损失.然而,环境样品 组成复杂,直接进样可能会损坏分析柱或干扰电喷 雾电离的效率,在这种情况下,应使用保护柱以防 止损坏分析柱,并考虑基质效应^[15].

2.2 仪器分析方法 作为精准定性和定量分析药物的首选,LC-MS/ MS结合了HPLC或UPLC的分离能力和MS对带电离子的特异性测量,具有较高的灵敏度和选择性,已成为环境中ATVs残留分析的主要方法^[41-43].Prasse等^[26]开发了一种SPE-HPLC-MS/MS的方法监测德国多条河流中ATVs的存在状况,被监测的9种ATVs和1种活性代谢物的定量限(LOQ)为0.2~10 ng·L⁻¹. Abafe等^[35]通过 RPLC-MS/MS分析了南非3个污水处理厂进出水中的13种ATVs,检测限(LOD)和LOQ分别为2~20 ng·L⁻¹和12~65 ng·L⁻¹.Funke等^[25]用LC-HRMS鉴定和定量了5种ATVs在地表水及污水生物处理过程中形成的转化产物,地表水和污水的LOQ分别为5~20 ng·L⁻¹和20~50 ng·L⁻¹.

选择合适的色谱柱是在更短的时间内分析 ATVs 的关键步骤之一,较常用的是 C8和 C18液相色谱 柱^[44,45]. Wood等^[32]发现 12种 ATVs 在 C8、PFP和 C18 色谱柱上的分离效果具有高度可比性,但 Agilent ZORBAX Eclipse XDB C8 色谱柱分离的峰形最佳, 对于保留时间差最小的化合物分离度最高,且适合 在后期分析过程添加更多种类的目标化合物.刘先 军等^[37]比较了 10种 ATVs 在 ACQUITY UPLC BEH C18、HSS T3及 CORTECS C18色谱柱上的分离效果, 半数以上的 ATVs 在 BEH C18 柱上的响应和峰形较 好,并发现待分析物的理化性质与色谱柱的选择具 有一定相关性.

亲水交互作用色谱(HILIC)是一种组分分离模 式介于正相色谱和反相色谱之间的技术,适用于分 析环境水样中低至 ng·L⁻¹的强亲水性和强极性有机 化合物,可解决样品中多种强极性组分分离难的问题^[46]. Boulard等^[34]采用 HILIC-MS/MS 测定了污水处 理厂出水、地表水、地下水和饮用水中阿巴卡韦 (ABC)、阿昔洛韦(ACV)、恩曲他滨(EMT)、拉米 夫定(3TC)及其主要转化产物,LOQ为1~200 ng·L⁻¹. 但 HILIC 方法开发非常复杂,必须严格控制流动相 组成,以确保重现性,并且寻找最优色谱条件耗时 较长.

ATVs由于挥发性较差,很少使用气相色谱串联 质谱法(GC-MS)测定. Schoeman等^[36]运用气相色谱-飞行时间质谱(GC-TOFMS)监测了南非某污水处理 厂的进水以及氯化处理前后水中的奈韦拉平(NVP) 和依非韦伦(EFV), LOD 和 LOQ 分别为 1.8~7.8 ng·L⁻¹和6~25.9 ng·L⁻¹,表明GC-TOFMS可用于废水 中 NVP 和 EFV 的测定.此外, GC×GC 的强色谱分辨 率能高效分离目标化合物,识别常规GC遗漏的次 要化合物,提高数据准确性^[47].GC×GC-TOFMS提供 了对复杂基质中各种化合物进行非靶向分析的可能 性,已被用于量化水体中的 PPCPs^[40,48].例如, Wooding 等^[15]应用此方法测定了南非地表水中10种 内分泌干扰物(EDCs)和2种ATVs(NVP、EFV).但 是GC和GC-MS需要对目标物进行衍生化处理 操 作过程相对繁琐、易引入杂质且重复性相对较差.

因水环境基质复杂,ATVs分析方法的开发和验证更加困难.此外ATVs具有较宽的辛醇-水分配系数(K_{ow})和不同的解离常数(pK_a)^[5],一次分析很难同时检测多种ATVs,这导致分析精度和效率较差.因此,为了全面调查环境中各种ATVs的存在状况与分布特征,筛选优先控制ATVs污染物,迫切需要开发能够检测和量化不同环境基质中多种ATVs的LC-MS/MS分析方法.

3 水环境中抗病毒药物的存在

3.1 抗病毒药物的存在状况

目前,已在世界范围内的海洋、河流、湖泊、 水库、废水、地下水和饮用水中检测到微量的 ATVs,并且在污泥以及沉积物中也检出了浓度相当 的ATVs污染物^[19,42,49-51].通过搜集文献,整理分析 发现污水处理厂是ATVs进入环境的最后一道屏障, 其进出水中ATVs的检出率和浓度相对较高,浓度 最高可达数千µg·L^{-1[51]},所以污水处理厂通常被认 为是地表水中ATVs的主要来源^[50,51].地表水是污水 排放的主要受纳水体,也是直接污染的环境介质. ATVs在地表水中的消减受多种因素的影响,如底物 浓度和河流的水文地质条件、溶解性有机质或环境

理化参数等^[52],但很难预测这些药物在实际水体中 的消减速率^[26]. 地表水中ATVs污染会进一步导致临 近土壤以及地下水的大面积污染,最终进入饮用水 系统.残留的ATVs通过食物链在生态系统中不断积 累、富集和放大,从而危害人类及其他生物健 康^[53,54]. 与污水处理厂进出水和地表水相比, 目前地 下水与饮用水中ATVs的检测数据较少,已在南非 Hartbeespoort 大坝附近^[42]和赞比亚 Chunga 地区^[55]的 地下水中发现NVP的存在,德国饮用水^[25]中检出3 种ATVs 羧基转化产物浓度为41~84 ng·L⁻¹,波兰自 来水^[56]中达卡他韦(DCV)的浓度最大值为169 ng·L⁻¹,南非Hartbeespoort大坝附近自来水^[32]中检测 到扎西他滨(DDC)和齐多夫定(ZDV),分别为8.4 ng·L⁻¹和72.7 ng·L⁻¹.因此,应重视相关水体中ATVs 的污染问题,特别是在污水处理设施不完善或检测 技术落后的地区.

表2总结了近20年来国内外水环境中ATVs的 存在状况.其中,大多数是分析和评价病毒大流行 后所使用的 ATVs 对水环境造成的污染情况,在非 洲一些国家和地区研究最多, 而欧洲和亚洲主要分 布在德国、法国和中国、日本等,挪威、芬兰以及 俄罗斯等国家的研究较少.此外,国内针对ATVs的 相关监测研究起步较晚,主要集中于地表水环境, 目的是通过监测地表水中ATVs浓度,分析其污染 状况以及时空分布特征,以此反映采样点周边产业 与排污情况,进一步追踪溯源[13,57,58];而国外则多 集中于各类水体,如污水处理厂进出水、地表水和 地下水,旨在阐明 ATVs 及其代谢物在污水处理环 节的转化过程,并评估污水处理厂对自然水体中 ATVs的污染贡献,较国内更倾向于从"污染源→纳 污水体"展开足迹式研究[19,25,30,50,59]. 污水处理厂是 水环境污染的重要点源之一,对其进出水以及周边 纳污水体进行监测,能够反映出污水处理工艺的去 除效率,同时也有助于厘清是否存在其他潜在污染 源,摸清污染源头才能进行合理的控制.

根据收集的研究数据(表 2),发现检出率较高的 ATVs 有奧司他韦(OS)、奧司他韦羧酸盐(OC)、 金刚烷胺(AMT)、ABC、3TC、ZDV、EFV 和 NVP. OS 及其代谢物 OC (nd~58 ng·L⁻¹)是最早在河流中检 测到的 ATVs^[60],这可能是因为 OC 在污水处理厂中 难以降解去除^[61].德国里德河、鲁尔河、莱茵河以 及埃姆舍尔河中有 9种 ATVs 和 1种代谢物检出,其 中 OS 和 OC 普遍存在^[26].在流感暴发季节,日本河水 中的 OS 和 OC 浓度高达 288 ng·L^{-1[62]},英国河流中 OC 为 33~62 ng·L^{-1[63]},在韩国^[23]和西班牙^[64]OC 也有 检出,而在中国珠江三角洲地区未检出 OC 的存 在^[13].虽然许多国家在家禽畜牧业生产中已明确禁 止使用AMT,但仍然存在非法使用的情况.AMT在 中国包头黄河支流^[65]、长江三角洲地区^[58]和胶州 湾^[66]等地以及日本淀川^[67]均有检出.ABC、3TC和 ZDV在污水处理厂可被有效去除,去除率均大于 90%^[35].中国广州^[68]和德国科布伦茨^[25]的污水处理厂 进出水检出了这3种ATVs,但出水浓度远低于进水 浓度.Aminot等^[50]检测到这3种药物在法国波尔多1 条河流和污水处理厂出水中浓度范围分别为 nd~33 ng·L⁻¹和 6.5~191 ng·L⁻¹,其中 3TC 检出浓度最高. EFV和NVP在目前采用的各种污水处理技术中去除效率较低,中国广州市污水处理厂进出水中EFV和 NVP检测浓度高达数千 ng·L^{-1[68]}. Rimayi等^[42]在南非 Hartbeespoort 大坝采集的所有水样中都检测到了 EFV和 NVP,浓度范围为 2~191 ng·L⁻¹. NVP在中 国^[27]、肯尼亚^[49,69]、赞比亚^[70]、西班牙^[64]、法国^[50] 和芬兰^[24]等国家的部分水环境中也有检出,说明其 在水体中持久存在,在环境监测中应优先考虑.

| | | : Table 2 Prese | 衣 Z 国内 nce of anti | 小小小馬 viral drug | モー 九 丙 毎 约 物 (A I V S) 的子・ s (ATVs) in aquatic environm | 住私元 ⁵⁷ ents at home and abroad | | | |
|--------|----------------------|----------------------|--|---|--|--|------------------------------|----|------|
| | 国家或地区 | 采样时间 | 采样类 | 专型 | 范围 | ATVs缩写 | 文献 | | |
| | | | 污水处 | 进水 | $177 \sim 406 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | | | | |
| | 珠江三角洲 | 2010年7月和 | 理厂 | 出水 | $144 \sim 205 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | ACV | [13] | | |
| | | 2011 - 275 | 河济 | ĩ* | 113 ng•L ⁻¹ | - | | | |
| | 长江三角洲 | 2016年4月 和5月 | 河流和 | 湖泊* | $10\ 290\ ng\cdot L^{-1}$ | | [58] | | |
| | n는 111 vite | 2017年9月 | 海刀 | ĸ | 12.6~73.6 ng·L ⁻¹ | | - Leco | | |
| | 胶州湾 | 2017年8月 | 沉积物 | | $0.01 \sim 0.13 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ | AMI COD | [66] | | |
| | 包头地区黄河支 流 2019年7月 | | 河济 | | 35.4 $ng \cdot L^{-1}$ | PIL P | [65] | | |
| 国内 | 湘江长沙段 | 2017年4月 | 河流 | | 0.25~2.56 ng·L ⁻¹ | ACV、GCV 和 NVP | [27] | | |
| | 广州 | 2020年11月 | 污水处 进水 理厂 出水 河流和湖泊 地表水 流积物 地表水 | | $0.97 \sim 3\ 043\ \mathrm{ng} \cdot \mathrm{L}^{-1}$ | ABC EFV NVP RTV LPV 3TC LDT # ZDV | [68] | | |
| 1 | 江东 | 2019年12日 | | | $6.81 \times 17.46 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | ADC, EFV, IVF, KIV, LFV, LDI #HZDV | [57] | | |
| S | 14% | 2017年6月和 | | | $1.04 \sim 184 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | BRV | 5 | | |
| | IGL | 10月 | | | $1.11 \sim 2.26 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ | a all and | [59] | | |
| \sim | 武汉 - | 2020年 | | | < LOQ~19 µg·L ⁻¹ | 8 1 | r | | |
| R | NYS | | 地下 | 水 | < LOD~105 ng·L ⁻¹ | CHQ、LPV 和 RTV | [7] | | |
| -1 | 日本 | 2007~2008年 | 河流 污水处 <u>理厂</u> 出水 河流 | | nd~58 ng·L ⁻¹ | | [60] | | |
| (| 日本京都市 | 2008年12月和 | | | 9.0~293.3 ng ⋅ L ⁻¹ | OC | [30] | | |
| | | 2009年2月 | | | $6.6 \sim 19.6 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | | | | |
| | 日本淀川 | 2015年11月至 2016年7月 | 污水处 理厂 | 出水 | nd~89 ng \cdot L ⁻¹ | LAN、OS、OC、AMT、ZAN、FAV、PER 和 LANO | [67] | | |
| | | | 河汐 | $nd\sim 672 ng \cdot L^{-1}$ | | LANO | | | |
| | 韩国首尔 | 2017年4月 | 污水处 | 进水 | $3 \sim 25 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | OS和OC | [23] | | |
| | | | 理厂 | 出水 | $5 \sim 10 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | 004000 | [23] | | |
| | | | 污水处 | 进水 | $LOQ\sim 2$ 070 ng·L ⁻¹ | | | | |
| | 英国 | 2009年11月 | 2009年11月 | 2009年11月 | 理厂 | 出水 | LOQ~1 130 ng·L ⁻¹ | OC | [63] |
| 国外 | | | 河流 | | $33 \sim 62 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | | | | |
| 固刀 | 挪威 | 2009年9~12月 | 污水处 | 进水 | 5~1 213 ng·L ⁻¹ | OS和OC | [71] | | |
| | | 2003 3 1233 | 理厂 | 出水 | $3.3 \sim 38 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | | L' 1 | | |
| | | 2015年9月和 2016年3月 | 污水处 | 进水 | $13 \sim 62 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | | | | |
| | 芬兰 | | 理厂 | 出水 | 8~37 ng•L ⁻¹ | 3TC、NVP和ZDV | [24] | | |
| | | | 湖泊** | | $nd \sim 12 ng \cdot L^{-1}$ | | | | |
| | 西班牙巴塞罗那 | 2019年12月 | 河流 | | 22~100 ng·L ⁻¹ | OE 和 OC | [64] | | |
| | 西班牙维多利亚 | 2020年4~7月 | 污水处 | 进水 | $2 \sim 38 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | HCQ 、LPV 和 RTV | [72] | | |
| | - 川 | | 埋/ | 出水 | 1~71 ng•L ⁻¹ | - | | | |
| | 法国波尔多 | 2011年11月和 | 汚水处 理厂 | 、处 □ 出水 nd~191 ng·L ⁻¹ ABC、IDV、3TC、NV | | ABC、IDV、3TC、NVP、SQV、RTV和ZDV | - [50] | | |
| | 法国波尔多 | 2012年6月 | 河汐 | i | nd~33 ng·L ⁻¹ | ABC、3TC、NVP、RTV 和 ZDV | [30] | | |
| | | | 沉积 | 物 | $nd \sim 1.4 ng \cdot g^{-1}$ | ABC、NFV 和 RTV | | | |

| | 国家或地区 | 采样时间 | 采样类型 | | 范围 | ATVs缩写 | 文献 |
|-----|---------------------|-----------|------------|---------------|---|---|------|
| | 俄罗斯阿尔汉格 | | N= 1. (1 | 进水 | 730~830 ng·L ⁻¹ | | |
| | | | 汚水处 理厂 | 出水 | $430 \sim 490 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | | |
| | | 2021年3月 | 垤) | 污泥 | $1.3 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ | UFV | [19] |
| | 小州元 | | 河流 | | $11 \sim 15 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | _ | |
| | | | 沉积 | 物 | $2.9 \sim 3.5 \ \mu g \cdot kg^{-1}$ | | |
| _ | | | 污水处 | 进水 | 21~980 ng·L ⁻¹ | ABC、EMT、LMV、ZDV、GCV、ABC-COOH和 ZDV-COOH | |
| | 使日均大小士 | | 埋 | 出水 | — | ABV-COOH、ACV-COOH和LMV-COOH | [25] |
| | 德国科布伦次 | | 河泊 | 秔 | 16~780 ng•L ⁻¹ | ZDV、EMT-COOH、ACV-COOH 和 LMV- COOH | [25] |
| | | | 自来 | 水 | $41 \sim 84 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | EMT-COOH、ACV-COOH和LMV-COOH | |
| | 油 兰 | 2013年4月至 | 自来 | 水 | $< 0.03 \sim 3.4 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | DPV | [56] |
| | <i>极</i> 三 | 2014年12月 | 河流 | | $< 0.03 \sim 169 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | | [30] |
| | 南非夸祖鲁-纳 | 2016年8月 | 污水处 | 进水 | $< LOD \sim 53~000 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | ABC \ATV \DRV \IDV \MVC \3TC \NFV \ | [35] |
| | 塔尔省 | | 理厂 | 出水 | $< LOD \sim 34\ 000\ ng \cdot L^{-1}$ | LPV 、NVP 、RAL 、RTV 和 SQV | [55] |
| 国外 | 南非 | 2014年11月至 | 地表水 地下水 | | $3 \sim 303 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | | |
| | Hartbeespoort 大坝 | 2015年9月 | | | $2 \sim 13 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ | NVP 和 EFV | [42] |
| | 肯尼亚马查科斯 | 2019年1月 | 污水处 理厂 | 出水 | $1.4 \sim 847.1 \ \mu g \cdot L^{-1}$ | | [40] |
| | 镇 | 和9月 | 河流 | | $0.9 \sim 228.3 \ \mu g \cdot L^{-1}$ | SIC ZDV AH NVP | [49] |
| | | | 沉积 | 物 🥜 | 95~510 μg·kg ⁻¹ | | 1 |
| | | | SE W M | 进水 | < LOD~1 160 µg·L ⁻¹ | | 1 |
| | 肯尼亚 Juja 地区 | | 理厂 | 出水 | < LOD~1 810 µg·L ⁻¹ | VIN GE | e – |
| _ | | 2019年8月 | 114 | 污泥 | < LOD~5 593 μg·kg ⁻¹ | 3TC、ZDV 和 NVP | [69] |
| 6 | | | 河泊 | 売 物 | $1.4 \sim 913 \ \mu g \cdot L^{-1}$ $125 \sim 10\ 200 \ \mu g \cdot kg^{-1}$ | FUP A | 2 |
| | 1 71 | 5 | 污水办 | 进水 | 680~118 970 ng·L ⁻¹ | 8 3 4 4 | di . |
| | 赞比亚卢萨卡 | | 理厂** | 出水 | 1 720~55 760 ng · L ⁻¹ L | 3TC、ZDV 和 NVP | 1 |
| Ca | | 2016年6月 | 河流 | 11 | < L0Q~49 700 ng·L ⁻¹ | × 1 | [70] |
| Ng. | VIAI | F | 地下水 | | $nd\sim410 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ | NVP | |

1) nd 表示未检出,LOD 表示检测限,LOQ 表示定量限,*表示检出浓度最大值,**表示浓度平均值,"一"表示没有相关数据;ATV 为阿扎那韦、FCV 为泛昔洛韦、FAV 为法匹拉韦、RBV 为利巴韦林、LAN 为拉尼米韦、LANO 为辛酸拉尼米韦、MVC 为马拉韦罗、OE 为奥司他韦酯、PER 为帕拉米韦、HCQ 为羟氯喹、UFV 为乌米诺韦、ZAN 为扎那米韦和 ACV-COOH 为羧基阿昔洛韦,其余同表1

3.2 抗病毒药物的分布特征

环境水体中ATVs的分布在很大程度上受疾病的季节性、ATVs的使用量以及环境因素的影响. Peng等^[13]分析了珠江及其支流中7种ATVs浓度的季 节变化,发现ACV的浓度最大值和平均值在冬季最 高(分别为113 ng·L⁻¹和54 ng·L⁻¹).冬季人体免疫力 往往较低,是流感发生的高峰期,在寒冷地区,病 毒感染病例和ATVs的使用量增加.Azuma等^[67]在 2015年11月~2016年6月(包括2~3月的流感季节) 监测了日本Yodo河中ATVs的季节变化,结果表明 在流感季节前,河水中未检测到OS、OC、帕拉米 韦(PER)和扎那米韦(ZAN);然而随着流感患者数 量的增加,ATVs的浓度以ng·L⁻¹同步增加;流感结 束后,ATVs的浓度迅速下降至无法检出.相似地, 拉尼米韦(LAN)、辛酸拉尼米韦(LANO)和法匹拉韦 (FAV)只能在流感季节检测到.可见,疾病的季节 性变化会影响ATVs在水环境中的分布.

降水、河流的流量和流速、阳光穿透率、温度 以及生物活动等环境因素会随着季节变化显著变 化,其中降水稀释效应被认为是影响河流季节变化 的最重要因素^[73].南非Hartbeespoort大坝附近的河流 中NVP和EFV的浓度呈现春季>冬季>秋季>夏季的 变化规律,在夏季以最低浓度存在可能是强降雨稀 释造成的^[42].而NVP作为地下水中最丰富的ATV, 在4个季节的浓度相当稳定,分别为8、10、13和 13 ng·L⁻¹,相对标准偏差仅为2%^[42].可见,不同类 型水体中ATVs的季节变化有所差异.

在同一水域不同介质间 ATVs 的分配也不一致. Aminot 等^[50]通过监测法国波尔多北郊一条河流的水 相、悬浮物和沉积物中 ATVs 的存在状况,发现利 托那韦(RTV)检出率最高,其含量呈现悬浮物中>水 相中>沉积物中,这可能与 RTV 具有较强的疏水性

·+ + -

有关.

此外,不同国家和地区的水环境中ATVs的存 在也具有显著差异,没有特定的规律可循,这归因 于各地经济发展水平、医疗需求、地理位置以及流 行病发生率的不同^[6].根据已有的研究(表2),发现 非洲一些国家水环境中ATVs含量比中国、日本等 亚洲国家以及德国、法国、英国等欧洲国家高出几 十甚至几百个数量级,这可能是非洲地区水资源短 缺、污水处理设施不完善和艾滋病流行率高等原因 造成的.

综上可知,水环境中ATVs具有一定的分布规 律,其时空分布状况存在显著差异.目前,仅有少 部分国家监测了水环境中ATVs的存在状况.为了更 准确地理解水环境中ATVs的时空分布规律,仍需 加大调查监测力度,分季节、分区域长期开展ATVs 的分布特征研究,更要深入探究人文活动、水文条 件变化及水体物化特性(pH、有机质含量等)对其分 布的影响与作用机制.

4 水环境中抗病毒药物的环境行为

ATVs类污染物可在水、悬浮物、沉积物和生物 等不同介质间发生迁移转化,深入了解这类污染物 的环境行为,对开展 ATVs 污染防治和风险防控具 有重要意义. **4.1** 吸附

ATVs在河流沉积物或污泥等复杂基质上的吸附 机制尚未被完全阐明,这对其环境行为的研究或生 态风险的准确预测具有一定的限制.迄今为止,仅 有少数研究报道了水环境固相基质对它们的吸附. Xu等^[74]研究发现6种 COVID-19相关ATVs在太湖贡 湖湾沉积物上的主要吸附机制可能包括疏水分配、 范德华力、阳离子交换、表面络合、静电相互作用



和氢键作用.而Azuma等^[67]研究发现河流沉积物对 OS、OC、ZAN、FAV、LAN、LANO、PER和AMT 的吸附量可忽略不计,这是由于这些ATVs的lg Kow 在-7.1~2.7之间,lg Kow < 2.5时被固相基质吸附能 力低^[75,76].沉积物本身的性质也会影响ATVs的吸附, 如颗粒大小和类型、酸碱度、阳离子强度和有机质 含量等.细颗粒沉积物粘土含量较高,与粗砂粒沉 积物相比具有更好的有机污染物吸附特性.Rimayi 等^[42]通过实验解释了这一现象,还发现有机碳含量 高的沉积物具有较大的污染物吸附能力.并且,有 研究表明,相对于颗粒类型,有机碳含量对沉积物 吸附量影响较大^[77].此外,水相pH、阳离子强度和 温度的升高会减弱沉积物对ATVs的吸附能力^[74].

由于污水污泥(SSLs)组成成分和ATVs结构的差 异,大部分ATVs在SSLs中的吸附和解吸行为复杂. Krasucka 等^[78]研究表明,波兰3个污水处理厂产生 的 SSLs 对 RTV 和洛匹那韦(LPV)具有很高的吸附能 力, K₄在2076~3449 L·kg⁻¹之间, 但2种药物共存 时会降低 SSLs 的吸附能力, K_d在 1903~2731 L·kg⁻¹ 范围内[图2(a)],这是由于ATVs对SSLs中吸附活 性位点相互竞争造成的.从图 2(b)可以看出 RTV 和 LPV从所有SSLs中的解吸率都低于15%,且RTV比 LPV 高出 2%~5%,表明 RTV 与 SSLs 的结合能力弱 于LPV. 这一研究证实了 SSLs 对 ATVs(lg Kow > 2.5)的 高吸附能力以及ATVs-SSLs结合的持久性.可见这些 ATVs一旦以ATVs-SSLs结合的形式进入环境会长期 存在,对生态系统产生不利影响.因此,有必要进 一步研究 ATVs-SSLs 结合在模拟和真实环境中(尤其 是土壤中)的归宿及其对生物的影响;并明确 ATVs 在不同类型 SSLs上的吸附机制,制定策略以应对其 可能产生的负面影响.



改自文献[78]; I 为克拉科夫 Plaszów 污水处理厂, II 为华沙 Czajka 污水处理厂, II 为卢布林 Hajdów 污水处理厂 **图 2 3种污水污泥中相同浓度(6 mg·L⁻¹)的利托那韦(RTV)和洛匹那韦(LPV)的分配系数(K_d)与解吸率** Fig. 2 Distribution coefficients (K_d) and desorption rates of Ritonavir (RTV) and Lopinavir (LPV) at the same concentration (6 mg·L⁻¹) in three types of sewage sludge

4.2 降解

ATVs 在水环境和污水处理过程中的生物降解 依赖于酶催化反应^[79.80]. Azuma 等^[67]研究发现抗流 感药物之间的生物降解性具有明显差异,例如,在 日本淀川流域中 LANO和 OS 可被生物有效降解, 半减期分别为 0.5~2 d和 112~139 d,而 OC、ZAN、 FAV、PER和 AMT 难以被生物降解. Liu 等^[81]推测 了活性污泥中利巴韦林(RBV)可能的生物降解途 径,在核苷酶作用下 RBV 首先分解为三唑环 (TCONH₂)和含氧五元杂环(图3).TCONH₂再通过酰 胺水解反应生成三唑羧酸(TCOOH)^[82,83],与哺乳动 物体内降解过程一致,而含氧五元杂环可能是戊糖 衍生物,在脱氢酶、加氧酶和异构酶的作用下可生 成草酸盐和其他物质,但这一路径的产物不明确.



光降解是ATVs在表层水体中重要的消减途径 主要包括直接光解、间接光解和自敏化光解 ATVs因理化性质的差异,其光解途径与速率快慢大 不相同. 徐法浩^[84]研究发现在模拟太阳光照射下 磷酸氯喹(CHQ)和ABD在发生直接光解的同时也存 在活性氧物种参与的自敏化光解. Zhou 等^[85]通过光 解实验发现自然水体中 ZDV 以直接光解为主,而 ACV和3TC以间接光解为主,3种ATVs光解都能生 成胸腺嘧啶和呋喃类产物.FAV和LAN可通过光降 解迅速消失(半减期分别为1和8h)^[67],而ZAN在地 表水中的光降解缓慢^[86]. ATVs的光解速率还会受到 河流、近海等天然水体中溶解性有机质(DOM)以及 不同离子的影响^[3,85,87]. 在淡水中, HCO₃-对ACV的光 解具有促进作用; NO₃⁻通过产生·OH 促进 ZDV、 ACV和3TC的光解: DOM也可促进ACV和3TC的光 解,但通过光屏蔽、静态和动态淬灭作用抑制了 ZDV 的光解;在海水中,卤素离子(Cl^{-} 和 Br⁻)对 ACV的光解无明显影响,对ZDV和3TC的光解分别 表现为抑制和促进作用[88].一般来说,光降解产物 比母体 ATVs 更能抵抗进一步的光降解. Goncalves 等^[4]在监测西班牙埃布罗河时发现了OE及其光降 解产物OC、TP330和TP312,在太阳光辐照下OE的 光解半减期约为15d,而0C约为150d(图4). Bartels 等^[89]研究表明,可通过生物降解和间接光解

结合的方式去除河水中的OC.此外,添加5%的河流 沉积物会加快OC的降解^[11].可见,ATVs的光降解复 杂,且受多种共存物质的影响.因此需要综合考虑 污水和天然水体中复杂组分对ATVs光化学转化的 影响以及多种降解途径的复合作用.

水解也可以促进ATVs的转化,目前有关水环 境中ATVs水解机制的研究鲜有报道.大部分ATVs 的分子量较高,并且其酮基团上的羰基氧能与水分 子形成氢键,使大多数ATVs易溶于水.在一般的情 况下,酯类以及含有酰胺和苷键的ATVs容易发生 水解反应^[90],其在水环境中的水解及降解产物是否 会引发环境风险需要纳入未来研究的考虑范围内.

生物降解、光降解和水解等转化行为会降低水 环境中ATVs的浓度,并导致这些化合物的消减或 部分矿化.但ATVs在降解过程中不是直接矿化,而 是转化为某些中间产物,其生物毒性也会发生相应 的变化^[91].例如,ABC和ZDV的某些光解产物毒性 高于母体,而司他夫定(D4T)、EMT和3TC的光解 产物毒性低于母体^[3].鉴于ATVs已成为一类重要的 新污染物,因此有必要阐明其在环境介质中的转化 产物,并揭示ATVs的光修饰毒性和光敏化毒性.

4.3 生物积累

水环境中残留的 ATVs 及其转化产物可通过表 皮穿透或食物链等方式进入水生生物体内,在肌肉



组织中积累.ATVs的生物蓄积性与其暴露环境中的 浓度直接相关,这些微污染物在水体中的浓度可 能会随着时间的推移而升高, 生物积累量也逐渐 增加^[54]. Fernández 等^[54,92]研究表明, 蝌蚪(Rhinella arenarum) 短期暴露在4种抗逆转录病毒药物 (ARVs)的亚致死浓度和环境相关浓度下,其体内 的 ARVs 会发生生物积累, ARVs 的浓度越高, 积 累量越高. Swanepoel 等^[93]在非洲鲶鱼(Clarias gariepinus) 血液中检测到ρ(ARVs)范围在 27~135 ng·L⁻¹之间,这使得更高营养级的生物(如食鱼鸟 类)体内含有更高浓度的ARVs. Mlunguza等^[33]研究 发现在纳污水体中,水葫芦中替诺福韦酯(TDF)、 EMT 和 EFV 的 生物浓缩系数远高于 1, 且 3 种 ARVs在不同部位(根、茎和叶)的累积情况不同, 主要富集在根部.可见水生植物能在受污染的水体 中积累 ATVs 污染物.换言之,植物可能在水污染 修复中发挥重要作用. Akenga 等^[94]通过水培实验观 察到 3TC、NVP、EFV 和 OS 以不同浓度积累在生 菜(Lactuca sativa)的根和叶中.动植物体内积累的 ATVs可以随着食物链传递到人体中,长期摄入会 对人体健康造成潜在危害.

5 水环境中抗病毒药物残留的危害及风险评估

5.1 抗病毒药物的危害

ATVs的逐渐释放和长期暴露或与其他药物共存 会影响水生生物以及人类的生命健康^[95].一些ATVs 具有高度生物活性,它们可能会对非目标生物产生 负面影响^[4].水环境中残留的ATVs可持续存在,具 有一定的生态毒性效应,已被认为是最具危害性的 药物之一^[96].例如,一定浓度的EFV(10.3 ng·L⁻¹)和 NVP(1.48 μ g·L⁻¹)可导致罗非鱼(*Oreochromis mossambicus*)的肝脏组织学损伤,例如脂肪变性、直 接坏死、肝细胞凋亡和空泡化^[97,98].NVP和抗生素在 水中的共存会导致罗非鱼生殖功能受损^[99].3TC(4.0 μ g·mL⁻¹)、D4T(1.0 μ g·mL⁻¹)、ZDV(1.0 μ g·mL⁻¹)和 NVP(0.5 μ g·mL⁻¹)通过增加谷胱甘肽-S-转移酶的活 性诱导蝌蚪(*Rhinella arenarum*)的氧化应激损伤^[54]. 地拉韦定(DLV)、茚地那韦(IDV)、恩替卡韦 (ETV)、NVP、DDC、ABC、EMT、ZDV、D4T和 3TC 对小鼠具有致癌作用^[3,100].ATVs长期暴露对人类 健康造成的不良影响包括免疫力降低、过敏反应、 神经毒性和器官病变等^[16,101].

此外,环境水域中ATVs的存在可能会导致特定野生动物体内产生ATVs抗性病毒株^[102].当动物宿 主不断摄入高浓度ATVs及其代谢物时,体内的病 毒可能会通过快速突变产生抗药性.值得注意的是, 病毒长期接触ATVs,基因组会发生变化,也会对药 物产生耐药性^[63,102,103].

5.2 抗病毒药物的风险评估

目前,尽管有关水体中ATVs的风险评估研究 较少且尚未成熟,但仍可以从仅有的数据中看出 ATVs的生态和人类健康风险.环境水体中污染物的 生态风险常用风险商法评估,基于水生生物的毒性 数据可计算风险商值(risk quotient, RQ),其中毒性 数据是根据准确性、相关性和可靠性的原则从生态 毒理学数据库中收集的.计算公式如下:

$$RQ = \frac{MEC}{PNEC}$$
(1)

$$RQ_{sum} = \sum RQ \tag{2}$$

式中,MEC为实测环境浓度,µg·L⁻¹;PNEC为每种 化学物质对水生生物的预测无效应浓度,µg·L⁻¹; RQ_{sum}为联合毒性风险商,可通过简单的叠加模型 (CA)计算.

根据得出的 RQ 可以评估每种污染物对水生生物的风险, RQ 分为4个等级: 无(0 < RQ < 0.01)、低(0.01 < RQ < 0.1)、中(0.1 < RQ < 1.0)和高(RQ > 1.0)^[104]. Ngumba 等^[55]采用风险商法对肯尼亚内罗毕河流域中的 ZDV、3TC 和 NVP进行了风险评估,发现 ZDV 对藻类表现出高生态风险, NVP 对藻类、鱼类和水蚤具有高生态风险. Almeida 等^[105]研究表明 EFV 对网纹溞(*Ceriodaphnia dubia*)和近头状尖胞藻(*Raphidocelis subcapitata*)两个物种的 RQ 都大于 1.0,表现出高生态风险. Cid 等^[17]研究发现阿扎那韦

(ATV)、EFV和NVP对巴西桑托斯湾水域中的藻类、 甲壳类动物、鱼类以及棘皮动物有潜在风险. Omotola等^[106]通过不同生物测定方法,评估发现环 境中残留的3TC对不同营养级的动植物具有生态风 险.Kuroda等^[10]利用定量构效关系(QSAR)模型确定 了COVID-19大流行期间10种ATVs与其代谢产物在 环境水域中产生的生态毒理学效应,其中T705M1、 LPV及其4种代谢产物、阿比多尔(UFV)的残留可 能会对受纳水体造成较高的生态毒理学风险(图5). Kumari等^[107]评估了5种治疗COVID-19感染药物 LPV、RTV、CHQ、RBV和雷帕霉素(RAP)暴露的 生态风险,LPV、RTV和CHQ对藻类、水蚤和鱼类 均构成高风险.从图6可以看出藻类是对ATVs最敏 感的物种,而且同一种ATVs对不同受试物种表现 出不同的风险.





1 000 ■ 绿藻 ● 水蚤
 ▲ 鱼 100 10 1 Š 0.1 0.01 0.001 1E-4洛匹那韦 利托那韦 氯喹 利巴韦林 雷帕霉素 改自文献[107] 图 6 4种抗病毒药物(ATVs)和1种抗生素对绿藻、 水番和鱼的风险商(RO) Fig. 6 Risk quotient of four antiviral drugs (ATVs)

and an antibiotic in green algae, daphnia, and fishes

综上可知,即使浓度很低的ATVs也会对水生 生物构成一定的生态风险,并可能通过食物链传递 对人体自身及其后代构成潜在的健康风险.单个 ATVs存在的健康风险常用危害商(hazard quotient, HQ)表示,联合ATVs的危害指数(hazard index, HI) 可由单个ATVs的HQ值求和所得^[106,108],计算公式 如下:

$$HQ = \frac{PEC}{PNEC}$$
(3)

$$HI = \sum HQ \tag{4}$$

式中,HI为危害指数,表示ATVs的累积健康风险. 当HQ < 1时,表明ATVs对人体健康造成的风险可 忽略不计,当HQ > 1时,表明ATVs对人体健康造 成风险.Kumar等^[95]评估了5种治疗COVID-19感染 药物(LPV、RTV、RBV、CHQ和RAP)暴露的人类 健康风险,结果表明,同时食用受污染的地表水和 鱼会造成重大风险,单个药物的HQ在11.83~337.68 之间,药物两两共存的HI在1.20~295.42之间.虽然 目前仅有少量研究表明水环境中ATVs的存在会危 害人体健康,但其风险不容忽视,应定期监测水环 境中的ATVs类污染物,科学评估其环境风险,精 准识别环境风险较大的ATVs,针对其产生环境风险 的主要环节,采取合理的管控措施.

6 展望

(1)我国针对水环境中ATVs的监测研究较少且 主要集中在东南地区,且大多数为实验室检测研 究.为了解我国水环境ATVs污染现状与时空分布规 律,对这些污染物的环境行为和风险进行深入研 究,亟需开发ATVs母体及其转化产物的高灵敏高 精度的分析方法,分季节、分区域长期监测环境多 介质中的残留浓度.进一步,由于ATVs吸附、降解 等环境行为复杂,有必要结合多介质逸度模型、 SWAT、EFDC等模型探索ATVs在受纳水体内的动 态迁移过程以及归趋,预测各环境介质中ATVs的 转化形式与赋存形态,并进一步认识其对生态系统 的影响.

(2)水环境中ATVs的生态和人类健康风险尚未 被完全阐明.鉴于ATVs的生物蓄积性、生物毒性以 及风险隐蔽性,有必要深入研究此类污染物的生物 效应与危害机制、食物链安全和健康风险.通过识 别出危害较大的ATVs污染物,预测其对生物体的 暴露水平,进而判别其对生态环境造成的风险程 度,筛选优先控制ATVs污染物清单加以防治,降 低环境风险.其中,在毒理学研究中,对于急慢性 毒性试验中受试物种的选择,应着重考虑与人类食 物链的联系.

(3)污水处理厂是ATVs及其转化产物的主要储存库,活性炭吸附、臭氧氧化、光催化、电化学高级氧化工艺、活性污泥法和膜生物反应器等处理技术已用于去除废水中的ATVs^[5,109,110].现有的技术多集中于对单个或少数ATVs的去除,并且去除效果不佳,处理过程还受多种因素的影响,如环境因素和工艺操作条件,以及ATVs的分子结构与理化特性(如挥发性、水溶性、吸附能力、可生物降解性)等.因此,开发高效降解技术势在必行,应通过优化现有污水处理技术,使用新技术或升级原有技术,实现从源头控制ATVs污染.

7 结论

中国高度重视新污染物.当前,ATVs被大量使

用,通过各种途径排放到水环境中,已成为一类新 污染物.本文通过收集全球不同区域水体中ATVs的 数据,对其污染途径、分析方法、环境存在、行为 与风险进行了总结,对比了水中ATVs常用的前处 理和仪器分析方法,重点探讨了其在地表水环境中 的污染现状、分布特征与迁移转化行为,评述了其 对环境水域生态和人类健康的潜在风险.水环境中 ATVs的分布因季节、地区、水体类型和介质而异, 可在水、悬浮物、沉积物和生物等不同介质间发生 吸附、降解、生物积累等环境行为,并对水生生物 以及人类产生危害和风险.ATVs类新污染物的研究 方兴未艾,未来可从高灵敏分析、生态和人类健康 风险、高效降解技术等方面开展深入研究.

参考文献:

- [1] 李淑敏,崔成红.药物化学[M].济南:山东人民出版社,2014.
- [2] 刘建文.药理学[M].(第二版).上海:华东理工大学出版社, 2020.
- [3] 汪涛.五种抗病毒药物在水环境中的光解动力学研究及其毒性预测评估[D].天津:天津师范大学,2022.
- [4] Jain S, Kumar P, Vyas R K, et al. Occurrence and removal of antiviral drugs in environment: a review [J]. Water, Air, & Soil Pollution, 2013, 224(2), doi: 10.1007/s11270-012-1410-3.
 [5] Eryildiz B, Yavuzturk Gul B, et al. A sustainable approach for the
- [5] Eryildiz B, Yavuzturk Gul B, et al. A sustainable approach for the removal methods and analytical determination methods of antiviral drugs from water/wastewater: a review[J]. Journal of Water Process Engineering, 2022, 49, doi: 10.1016/j.jwpe.2022.103036.
- [6] Nannou C, Ofrydopoulou A, Evgenidou E, et al. Antiviral drugs in aquatic environment and wastewater treatment plants: a review on occurrence, fate, removal and ecotoxicity[J]. Science of the Total Environment, 2020, 699, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.134322.
- [7] He J, Feng T, Tao L, et al. Distribution and impacts on the geological environment of antiviral drugs in major waters of Wuhan, China[J]. China Geology, 2022, 5(3): 402-410.
- [8] Jia T C, Guo J T, Wang Z, et al. Photodegradation mechanisms of acyclovir in water and the toxicity of photoproducts [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2019, 320(3): 823-830.
- [9] Kumar M, Kuroda K, Dhangar K, et al. Potential emergence of antiviral-resistant pandemic viruses via environmental drug exposure of animal reservoirs [J]. Environmental Science & Technology, 2020, 54(14): 8503-8505.
- [10] Kuroda K, Li C, Dhangar K, et al. Predicted occurrence, ecotoxicological risk and environmentally acquired resistance of antiviral drugs associated with COVID-19 in environmental waters [J]. Science of the Total Environment, 2021, 776, doi: 10.1016/j. scitotenv.2021.145740.
- [11] Saccà M L, Accinelli C, Fick J, et al. Environmental fate of the antiviral drug Tamiflu in two aquatic ecosystems [J]. Chemosphere, 2009, 75(1): 28-33.
- [12] Prasse C, Wagner M, Schulz R, et al. Biotransformation of the antiviral drugs acyclovir and penciclovir in activated sludge treatment [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45 (7): 2761-2769.
- [13] Peng X Z, Wang C W, Zhang K, et al. Profile and behavior of antiviral drugs in aquatic environments of the Pearl River Delta, China [J]. Science of the Total Environment, 2014, 466 - 467: 755-761.
- [14] Wood T P, Basson A E, Duvenage C, et al. The chlorination behaviour and environmental fate of the antiretroviral drug nevirapine in South African surface water [J]. Water Research, 2016, 104: 349-360.
- [15] Wooding M, Rohwer E R, Naudé Y. Determination of endocrine disrupting chemicals and antiretroviral compounds in surface

water: a disposable sorptive sampler with comprehensive gas chromatography-Time-of-flight mass spectrometry and large volume injection with ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Journal of Chromatography A, 2017, **1496**: 122-132.

- [16] Ncube S, Madikizela L M, Chimuka L, et al. Environmental fate and ecotoxicological effects of antiretrovirals: a current global status and future perspectives[J]. Water Research, 2018, 145: 231-247.
- [17] Cid R S, Roveri V, Vidal D G, et al. Toxicity of antiretrovirals on the Sea Urchin Echinometra lucunter and its predicted environmental concentration in seawater from Santos Bay (Brazilian Coastal Zone) [J]. Resources, 2021, 10 (11), doi: 10.3390/ resources10110114.
- [18] 汪艳萍.改性二氧化铅电极用于降解水中拉米夫定和磺胺甲恶唑的研究[D].广州:华南理工大学,2020.
 Wang Y P. Electrochemical degradation of lamivudine and sulfamethoxazole in water by modified lead dioxide electrode[D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2020.
- [19] Ul'yanovskii N V, Kosyakov D S, Sypalov S A, et al. Antiviral drug Umifenovir (Arbidol) in municipal wastewater during the COVID-19 pandemic: estimated levels and transformation [J]. Science of the Total Environment, 2022, 805, doi: 10.1016/j. scitotenv.2021.150380.
- [20] Mukhopadhyay A, Duttagupta S, Mukherjee A. Emerging organic contaminants in global community drinking water sources and supply: a review of occurrence, processes and remediation [J]. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2022, 10(3), doi: 10.1016/j.jece.2022.107560.
- [21] 高英杰.蛋壳负载材料及其复合膜活化 PMS处理水中药物污染物研究[D]. 兰州: 兰州大学, 2021.
 Gao Y J. Efficient activation of PMS by eggshell supported catalysts and their composite membrane to remove pharmaceutical contaminants in water[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2021.
- [22] Kannouma R E, Hammad M A, Kamal A H, et al. A dispersive liquid-liquid microextraction method based on solidification of floating organic droplet for determination of antiviral agents in environmental water using HPLC/UV [J]. Microchemical Journal, 2021, 171, doi: 10.1016/j.microc.2021.106790.
- [23] Hong Y, Lee I, Lee W, et al. Mass-balance-model-based evaluation of sewage treatment plant contribution to residual pharmaceuticals in environmental waters [J]. Chemosphere, 2019, 225: 378-387.
- [24] Ngumba E, Kosunen P, Gachanja A, et al. A multiresidue analytical method for trace level determination of antibiotics and antiretroviral drugs in wastewater and surface water using SPE-LC-MS/MS and matrix-matched standards [J]. Analytical Methods, 2016, 8(37): 6720-6729.
- [25] Funke J, Prasse C, Ternes T A. Identification of transformation products of antiviral drugs formed during biological wastewater treatment and their occurrence in the urban water cycle [J]. Water Research, 2016, 98, doi: 10.1016/j.watres.2016.03.045.
- [26] Prasse C, Schlüsener M P, Schulz R, et al. Antiviral drugs in wastewater and surface waters: a new pharmaceutical class of environmental relevance? [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(5): 1728-1735.
- [27] 刘先军,罗波,冯家力,等.固相萃取/液相色谱-串联质谱法 测定地表水中10种抗病毒药物[J].分析测试学报,2018,37 (7):849-853.
 Liu X J, Luo B, Feng J L, *et al.* Determination of 10 antiviral drugs in surface water by ultra performance liquid chromatographytandem mass spectrometry with solid phase extraction[J]. Journal of
- Instrumental Analysis, 2018, 37(7): 849-853.
 [28] Xu Y J, Ren C B, Han D F, et al. Analysis of amantadine in Laminaria Japonica and seawater of Daqin Island by ultra high performance liquid chromatography with positive electrospray ionization tandem mass spectrometry [J]. Journal of Chromatography B, 2019, 1126-1127, doi: 10.1016/j.jchromb. 2019.06.024.
- [29] Mosekiemang T T, Stander M A, de Villiers A. Simultaneous

quantification of commonly prescribed antiretroviral drugs and their selected metabolites in aqueous environmental samples by direct injection and solid phase extraction liquid chromatography-tandem mass spectrometry[J]. Chemosphere, 2019, **220**: 983-992.

- [30] Ghosh G C, Nakada N, Yamashita N, et al. Oseltamivir carboxylate, the active metabolite of oseltamivir phosphate (Tamiflu), detected in sewage discharge and river water in Japan [J]. Environmental Health Perspectives, 2010, 118 (1) : 103-107.
- [31] Yao L, Dou W Y, Ma Y F, et al. Development and validation of sensitive methods for simultaneous determination of 9 antiviral drugs in different various environmental matrices by UPLC-MS/MS
 [J]. Chemosphere, 2021, 282, doi: 10.1016/j.chemosphere.2021. 131047.
- [32] Wood T P, Duvenage C S J, Rohwer E. The occurrence of antiretroviral compounds used for HIV treatment in South African surface water[J]. Environmental Pollution, 2015, 199: 235-243.
- [33] Mlunguza N Y, Ncube S, Mahlambi P N, et al. Determination of selected antiretroviral drugs in wastewater, surface water and aquatic plants using hollow fibre liquid phase microextraction and liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Journal of Hazardous Materials, 2020, 382, doi: 10.1016/j.jhazmat.2019. 121067.
- [34] Boulard L, Dierkes G, Ternes T. Utilization of large volume zwitterionic hydrophilic interaction liquid chromatography for the analysis of polar pharmaceuticals in aqueous environmental samples: benefits and limitations [J]. Journal of Chromatography A, 2018, 1535: 27-43.
- [35] Abafe O A, Späth J, Fick J, et al. LC-MS/MS determination of antiretroviral drugs in influents and effluents from wastewater treatment plants in KwaZulu-Natal, South Africa [J]. Chemosphere, 2018, 200: 660-670.
- [36] Schoeman C, Mashiane M, Dlamini M, et al. Quantification of selected antiretroviral drugs in a wastewater treatment works in South Africa using GC-TOFMS[J]. Journal of Chromatography & Separation Techniques, 2015, 6(4), doi: 10.4172/2157-7064. 1000272.
- [37] Pérez-Lemus N, López-Serna R, Pérez-Elvira S 1, et al. Analytical methodologies for the determination of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in sewage sludge: a critical review[J]. Analytica Chimica Acta, 2019, 1083: 19-40.
- [38] Zhou T Y, Ding L, Che G B, et al. Recent advances and trends of molecularly imprinted polymers for specific recognition in aqueous matrix: preparation and application in sample pretreatment [J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2019, 114: 11-28.
- [39] Xia L, Yang J N, Su R H, et al. Recent progress in fast sample preparation techniques [J]. Analytical Chemistry, 2020, 92(1): 34-48.
- [40] Payán M R, López M Á B, Fernández-Torres R, et al. Hollow fiber-based liquid phase microextraction (HF-LPME) as a new approach for the HPLC determination of fluoroquinolones in biological and environmental matrices [J]. Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis, 2011, 55(2): 332-341.
- [41] Dolar D, Gros M, Rodriguez-Mozaz S, et al. Removal of emerging contaminants from municipal wastewater with an integrated membrane system, MBR-RO[J]. Journal of Hazardous Materials, 2012, 239-240: 64-69.
- [42] Rimayi C, Odusanya D, Weiss J M, et al. Contaminants of emerging concern in the Hartbeespoort Dam catchment and the uMngeni River estuary 2016 pollution incident, South Africa [J]. Science of the Total Environment, 2018, 627: 1008-1017.
- [43] Selcuk O, Demir Y, Erkmen C, et al. Analytical methods for determination of antiviral drugs in different matrices: recent advances and trends[J]. Critical Reviews in Analytical Chemistry, 2022, 52(7): 1662-1693.
- [44] Zhang L, Dai Q, Qiao X Q, et al. Mixed-mode chromatographic stationary phases: recent advancements and its applications for high-performance liquid chromatography [J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2016, 82: 143-163.

- [45] Žuvela P, Skoczylas M, Liu J J, et al. Column characterization and selection systems in reversed-phase high-performance liquid chromatography [J]. Chemical Reviews, 2019, 119(6): 3674-3729.
- [46] Jandera P, Janás P. Recent advances in stationary phases and understanding of retention in hydrophilic interaction chromatography. A review [J]. Analytica Chimica Acta, 2017, 967: 12-32.
- [47] Muscalu A M, Górecki T. Comprehensive two-dimensional gas chromatography in environmental analysis [J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2018, 106: 225-245.
- [48] Matamoros V, Jover E, Bayona J M. Part-per-trillion determination of pharmaceuticals, pesticides, and related organic contaminants in river water by solid-phase extraction followed by comprehensive two-dimensional gas chromatography time-of-flight mass spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 2010, 82(2): 699-706.
- [49] Kairigo P, Ngumba E, Sundberg L R, et al. Contamination of surface water and river sediments by antibiotic and antiretroviral drug cocktails in low and middle-income countries: occurrence, risk and mitigation strategies [J]. Water, 2020, 12(5), doi: 10. 3390/w12051376.
- [50] Aminot Y, Litrico X, Chambolle M, et al. Development and application of a multi-residue method for the determination of 53 pharmaceuticals in water, sediment, and suspended solids using liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2015, 407(28): 8585-8604.
- [51] Muriuki C, Kairigo P, Home P, et al. Mass loading, distribution, and removal of antibiotics and antiretroviral drugs in selected wastewater treatment plants in Kenya [J]. Science of the Total Environment, 2020, 743, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140655.
- [52] Yang L, He J T, Su S H, et al. Occurrence, distribution, and attenuation of pharmaceuticals and personal care products in the riverside groundwater of the Beiyun River of Beijing, China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2017, 24(18): 15838-15851.
- [53] Anand U, Adelodun B, Cabreros C, et al. Occurrence, transformation, bioaccumulation, risk and analysis of pharmaceutical and personal care products from wastewater: a review[J]. Environmental Chemistry Letters, 2022, 20(6): 3883-3904.
- [54] Fernández L P, Brasca R, Attademo A M, et al. Bioaccumulation and glutathione S-transferase activity on Rhinella arenarum tadpoles after short-term exposure to antiretrovirals [J]. Chemosphere, 2020, 246, doi: 10.1016/j. chemosphere. 2020. 125830.
- [55] Ngumba E, Gachanja A, Tuhkanen T. Occurrence of selected antibiotics and antiretroviral drugs in Nairobi River Basin, Kenya [J]. Science of the Total Environment, 2016, 539: 206-213.
- [56] Giebułtowicz J, Tyski S, Wolinowska R, et al. Occurrence of antimicrobial agents, drug-resistant bacteria, and genes in the sewage-impacted Vistula River (Poland) [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2018, 25(6): 5788-5807.
- [57] 赵美美,范德玲,古文,等.环境持久性药物在江苏省地表水中的污染水平、分布特征及生态风险评估[J].环境科学,2021,42(9):4222-4233.
 Zhao M M, Fan D L, Gu W, et al. Pollution level, distribution characteristic, and ecological risk assessment of environmentally persistent pharmaceutical pollutants in surface water of Jiangsu Province[J]. Environmental Science, 2021,42(9):4222-4233.
- [58] Peng Y, Fang W D, 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: 484-493.
- [59] Chen X P, Lei L, Liu S T, et al. Occurrence and risk assessment of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) against COVID-19 in lakes and WWTP-river-estuary system in Wuhan, China[J]. Science of the Total Environment, 2021, **792**, doi: 10. 1016/j.scitotenv.2021.148352.
- [60] Söderström H, Järhult J D, Olsen B, et al. Detection of the

antiviral drug oseltamivir in aquatic environments [J]. PLoS One, 2009, **4**(6), doi: 10.1371/journal.pone.0006064.

- [61] Fick J, Lindberg R H, Tysklind M, et al. Antiviral oseltamivir is not removed or degraded in normal sewage water treatment: implications for development of resistance by influenza a virus [J]. PLoS One, 2007, 2(10), doi: 10.1371/journal.pone.0000986.
- [62] Azuma T, Nakada N, Yamashita N, et al. Synchronous dynamics of observed and predicted values of anti-influenza drugs in environmental waters during a seasonal influenza outbreak [J]. Environmental Science & Technology, 2012, 46 (23) : 12873-12881.
- [63] Singer A C, Järhult J D, Grabic R, et al. Intra- and interpandemic variations of antiviral, antibiotics and decongestants in wastewater treatment plants and receiving rivers [J]. PLoS One, 2014, 9(9), doi: 10.1371/journal.pone.0108621.
- [64] Gonçalves C, Pérez S, Osorio V, et al. Photofate of oseltamivir (Tamiflu) and oseltamivir carboxylate under natural and simulated solar irradiation: kinetics, identification of the transformation products, and environmental occurrence [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(10): 4307-4314.
- [65] 胡萌, 吕琛山, 穆哓茜, 等. LC-HRMS非靶标筛查8个地表水样品中有机污染物[J].中国法医学杂志, 2022, 37(2): 164-168.

Hu M, Lv C S, Mu X X, *et al.* Nontarget detection of organic pollutants in 8 surface water samples by liquid chromatography coupled with high resolution mass spectrometry[J]. Chinese Journal of Forensic Medicine, 2022, **37**(2): 164-168.

- [66] 彭全材.胶州湾典型药物活性化合物(PhACs)的环境生物地 球化学特征解析[D].青岛:中国科学院海洋研究所, 2020.
 Peng Q C. Environment biogeochemical characteristics of pharmaceutically active compounds (PhACs) in the Jiaozhou Bay, North China [D]. Qingdao: Institute of Oceanology, Chinese Academy of Sciences, 2020.
- [67] Azuma T, Ishida M, Hisamatsu K, et al. Fate of new three antiinfluenza drugs and one prodrug in the water environment [J]. Chemosphere, 2017, 169: 550-557.
- [68] Yao L, Chen Z Y, Dou W Y, et al. Occurrence, removal and mass loads of antiviral drugs in seven wastewater treatment plants with various treatment processes [J]. Water Research, 2021, 207, doi: 10.1016/j.watres.2021.117803.
- [69] Muriuki C W, Home P G, Raude J M, et al. Occurrence, distribution, and risk assessment of pharmerciuticals in wastewater and open surface drains of peri-urban areas: case study of Juja town, Kenya [J]. Environmental Pollution, 2020, 267, doi: 10. 1016/j.envpol.2020.115503.
- [70] Ngumba E, Gachanja A, Nyirenda J, et al. Occurrence of antibiotics and antiretroviral drugs in source-separated urine, groundwater, surface water and wastewater in the peri-urban area of Chunga in Lusaka, Zambia [J]. Water SA, 2020, 46 (2) : 278-284.
- [71] Leknes H, Sturtzel I E, Dye C. Environmental release of oseltamivir from a Norwegian sewage treatment plant during the 2009 influenza A (H1N1) pandemic [J]. Science of the Total Environment, 2012, 414: 632-638.
- [72] Domingo-Echaburu S, Irazola M, Prieto A, et al. Drugs used during the COVID-19 first wave in Vitoria-Gasteiz (Spain) and their presence in the environment [J]. Science of the Total Environment, 2022, 820, doi: 10.1016/j.scitotenv.2022.153122.
- [73] Kumar M, Mazumder P, Mohapatra S, et al. A chronicle of SARS-CoV-2: seasonality, environmental fate, transport, inactivation, and antiviral drug resistance [J]. Journal of Hazardous Materials, 2021, 405, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.124043.
- [74] Xu X, Zhu R, Zhang Y, et al. COVID-19 related antiviral drugs are less adsorbable on sediment under alkaline and high cation conditions[J]. Science of the Total Environment, 2023, 883, doi: 10.1016/j.scitotenv.2023.163736.
- [75] Rogers H R. Sources, behaviour and fate of organic contaminants during sewage treatment and in sewage sludges [J]. Science of the Total Environment, 1996, 185(1-3): 3-26.

- [76] Chmiel T, Mieszkowska A, Kempińska-Kupczyk D, et al. The impact of lipophilicity on environmental processes, drug delivery and bioavailability of food components [J]. Microchemical Journal, 2019, 146: 393-406.
- [77] Sangster J L, Oke H, Zhang Y, et al. The effect of particle size on sorption of estrogens, androgens and progestagens in aquatic sediment [J]. Journal of Hazardous Materials, 2015, 299: 112-121.
- [78] Krasucka P, Rombel A, Yang X J, et al. Adsorption and desorption of antiviral drugs (ritonavir and lopinavir) on sewage sludges as a potential environmental risk [J]. Journal of Hazardous Materials, 2022, 425, doi: 10.1016/j.jhazmat.2021.127901.
- [79] Helbling D E, Hollender J, Kohler H P E, et al. High-throughput identification of microbial transformation products of organic micropollutants [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(17): 6621-6627.
- [80] Ebele A J, Abdallah M A E, Harrad S. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in the freshwater aquatic environment[J]. Emerging Contaminants, 2017, 3(1): 1-16.
- [81] Liu Q X, Feng X, Chen N, et al. Occurrence and risk assessment of typical PPCPs and biodegradation pathway of ribavirin in wastewater treatment plants [J]. Environmental Science and Ecotechnology, 2022, 11, doi: 10.1016/j.ese.2022.100184.
- [82] Lin C C, Yeh L T, Luu T, et al. Pharmacokinetics and metabolism of [¹⁴C] ribavirin in rats and cynomolgus monkeys [J]. Antimicrobial Agents and Chemotherapy, 2003, 47 (4): 1395-1398.
- [83] Wu J Z, Lin C C, Hong Z. Ribavirin, viramidine and adenosinedeaminase-catalysed drug activation: implication for nucleoside prodrug design[J]. Journal of Antimicrobial Chemotherapy, 2003, 52(4): 543-546.
- [84] 徐法浩.COVID-19 典型抗病毒药物在水环境中光降解行为研究[D].武汉:华中科技大学,2021.
 Xu F H. Photodegradation behavior of typical antiviral drugs for COVID-19 in water environment [D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2021.
- [85] Zhou C Z, Chen J W, Xie Q, et al. Photolysis of three antiviral drugs acyclovir, zidovudine and lamivudine in surface freshwater and seawater[J]. Chemosphere, 2015, 138: 792-797.
- [86] Zonja B, Gonçalves C, Pérez S, et al. Evaluation of the phototransformation of the antiviral zanamivir in surface waters through identification of transformation products [J]. Journal of Hazardous Materials, 2014, 265: 296-304.
- [87] Zhou C Z, Xie Q, Wang J Q, et al. Effects of dissolved organic matter derived from freshwater and seawater on photodegradation of three antiviral drugs [J]. Environmental Pollution, 2020, 258, doi: 10.1016/j.envpol.2019.113700.
- [88] 周成智.黄河三角洲水体中有机微污染物的光解动力学模型 构建[D].大连:大连理工大学,2018.
 Zhou C Z. Modeling photodegradation kinetics of organic micropollutants in the Yellow River Estuary water bodies [D].
 Dalian: Dalian University of Technology, 2018.
- [89] Bartels P, von Tümpling Jr W. The environmental fate of the antiviral drug oseltamivir carboxylate in different waters [J]. Science of the Total Environment, 2008, 405(1-3): 215-225.
- [90] 张小庆.抗病毒药物利巴韦林在蛋鸡体内代谢产物探究[D]. 北京:中国农业科学院,2017.
 Zhang X Q. Metabolic study of antiviral drug ribavirin in Laying Hens[D]. Beijing: Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2017.
- [91] An T C, An J B, Gao Y P, et al. Photocatalytic degradation and mineralization mechanism and toxicity assessment of antivirus drug acyclovir: experimental and theoretical studies [J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2015, 164: 279-287.
- [92] Fernández L P, Brasca R, Repetti M R, et al. Bioaccumulation of abacavir and efavirenz in *Rhinella arenarum* tadpoles after exposure to environmentally relevant concentrations [J]. Chemosphere, 2022, 301, doi: 10.1016/j.chemosphere.2022.134631.
- [93] Swanepoel C, Bouwman H, Pieters R, et al. Presence,

concentrations and potential implications of HIV-anti-retrovirals in selected water resources in South Africa [R]. Potchefstroom: Research Unit for Environmental Sciences and Management, North-West University, 2015.

- [94] Akenga P, Gachanja A, Fitzsimons M F, et al. Uptake, accumulation and impact of antiretroviral and antiviral pharmaceutical compounds in lettuce [J]. Science of the Total Environment, 2021, 766, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.144499.
- [95] Kumari M, Kumar A. Can pharmaceutical drugs used to treat COVID-19 infection leads to human health risk? A hypothetical study to identify potential risk [J]. Science of the Total Environment, 2021, 778, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.146303.
- [96] Sanderson H, Johnson D J, Reitsma T, et al. Ranking and prioritization of environmental risks of pharmaceuticals in surface waters [J]. Regulatory Toxicology and Pharmacology, 2004, 39 (2): 158-183.
- [97] Nibamureke U M C, Barnhoorn I E J, Wagenaar G M. Nevirapine in African surface waters induces liver histopathology in Oreochromis mossambicus: a laboratory exposure study[J]. African Journal of Aquatic Science, 2019, 44(1): 77-88.
- [98] Robson L, Barnhoorn I E J, Wagenaar G M. The potential effects of efavirenz on Oreochromis mossambicus after acute exposure [J]. Environmental Toxicology and Pharmacology, 2017, 56: 225-232.
- [99] Nibamureke U M C, Wagenaar G M. Histopathological changes in Oreochromis mossambicus (Peters, 1852) ovaries after a chronic exposure to a mixture of the HIV drug nevirapine and the antibiotics sulfamethoxazole and trimethoprim[J]. Chemosphere, 2021, 274, doi: 10.1016/j.ehemosphere.2021.129900.
- [100] Brambilla G, Mattioli F, Robbiano L, et al. Studies on genotoxicity and carcinogenicity of antibacterial, antiviral, antimalarial and antifungal drugs[J]. Mutagenesis, 2012, 27(4): 387-413.
- [101] Adeola A O, Forbes P B C. Antiretroviral drugs in African surface waters: prevalence, analysis, and potential remediation [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2022, 41(2): 247-262.
- [102] Kumar M, Taki K, Gahlot R, et al. A chronicle of SARS-CoV-2: Part-I-Epidemiology, diagnosis, prognosis, transmission and treatment[J]. Science of the Total Environment, 2020, 734, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.139278.
- [103] Nannou C, Ofrydopoulou A, Evgenidou E, et al. Analytical strategies for the determination of antiviral drugs in the aquatic environment [J]. Trends in Environmental Analytical Chemistry, 2019, 24, doi: 10.1016/j.teac.2019.e00071.
- [104] Hernando M D, Mezcua M, 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.
- [105] Almeida L C, Mattos A C, Dinamarco C P G, et al. Chronic toxicity and environmental risk assessment of antivirals in *Ceriodaphnia dubia* and *Raphidocelis subcapitata* [J]. Water Science and Technology, 2021, 84(7): 1623-1634.
- [106] Omotola E O, Genthe B, Ndlela L, et al. Environmental risk characterization of an antiretroviral (ARV) lamivudine in ecosystems [J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2021, 18(16), doi: 10.3390/ijerph18168358.
- [107] Kumari M, Kumar A. Environmental and human health risk assessment of mixture of Covid-19 treating pharmaceutical drugs in environmental waters [J]. Science of the Total Environment, 2022, 812, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.152485.
- [108] Kumari M, Kumar A. Human health risk assessment of antibiotics in binary mixtures for finished drinking water [J]. Chemosphere, 2020, 240, doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.124864.
- [109] Fedorova G, Grabic R, Nyhlen J, et al. Fate of three anti-influenza drugs during ozonation of wastewater effluents-degradation and formation of transformation products [J]. Chemosphere, 2016, 150: 723-730.
- [110] Zhou C Z, Wang Y P, Chen J, et al. High-efficiency electrochemical degradation of antiviral drug abacavir using a penetration flux porous Ti/SnO₂-Sb anode [J]. Chemosphere, 2019, 225: 304-310.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

CONTENTS

| Spatio-temporal Evolution, Dynamic Transition, and Convergence Trend of Urban Carbon Emission Intensity in China | ······YANG Qing-ke, WANG Lei, ZHU Gao-li, et al. | (1869) |
|--|---|----------|
| Spatio-temporal Evolution and Trend Prediction of Transport Carbon Emission Efficiency | ······ZHENG Yan, JIANG Xue-mei, XIAO Yu-jie | (1879) |
| Research on Carbon Emission Decoupling Factors Based on STIRPAT Model and LMDI Decomposition | ·····ZHANG Jiang-yan | (1888) |
| Carbon Peak Pathways of Industrial Parks Based on the LEAP Model: A Case Study of a National Development Zone in Nanjing | LI Hui-peng, LI Li, YIN Yin, et al. | (1898) |
| Accounting and Analysis of Carbon Emissions in Universities: A Case Study of Beijing A University | CAO Rui, FENG Li, ZHANG Li-qiu | (1907) |
| Synergy Effects and Driving Factors of Pollution and Carbon Emission Reduction in Manufacturing Industry in Beijing | ······YU Shan, HAN Yu-hua, MU Jie, et al. | (1917) |
| Carbon Emissions Trading Prices and Total Factor Productivity: Evidence from China | WU Xue-ping | (1926) |
| Analysis of Spatio-temporal Distribution Characteristics and Influencing Factors of $PM_{2.5}$ and PM_{10} in Chinese Cities | LI Jiang-su, DUAN Liang-rong, ZHANG Tian-jiao | (1938) |
| Spatial-temporal Characteristics and Influencing Factors of PM _{2.5} and Ozone in the Border Area of Jiangsu, Anhui, Shangdong, and Hen | an from 2017 to 2021 | (1050) |
| A - Lois - Charles - Charles - Company - Compa | CHEN Wei, AU Aue-zne, LIU Wen-qing | (1930) |
| PM Chamical Composition and Spatial Variability in the Five Cities of Southern Jiangen During Foll and Winter | TUAN Alao-hong, ZHANG Qiang, El QI, et al. | (1903) |
| 1 m _{2.5} Chemical Composition and Spatial variability in the Five Cities of Southern frangsu During Fan and winter | TENG WEI, DING FENG, SHANG TUE, et al. | (1973) |
| Source Appendomment of Fine Fatters in Ataning, Huber Soillover Renafits of Ammonia Emission Reduction in Vinetai Area to the Improvement of Atmospheric PM Concentration in the Rejijing | r-Tianiin-Hehei Region | (1905) |
| Spinorer benefits of Animonia Emission reduction in Aringan Area to the improvement of Atmospheric Par _{2.5} concentration in the beijing | ·····BIAN Ze-iun, WEN Chao-yu, LANG Jian-lei, et al. | (1994) |
| Characteristics, Risk Assessment, and Sources of the Polluted Metallic Elements in PM., During Winter in Liaocheng City | | (2003) |
| Composition Characteristics of Typical VOCs Sources in the Highland City of Lhasa | GUO Shu-zheng, YE Chun-xiang, LIN Wei-li, et al. | (2011) |
| VOCs Pollution Characteristics and Health Risk Assessment in Typical Industrial Parks in Beijing : Environmental Impact of High and No | ew Technology Industries | (=) |
| | WANG Jie, YAO Zhen, WANG Min-van, et al. | (2019) |
| Analysis of a Typical Ozone Pollution Process in the Chengdu Plain Under the Influence of High Temperature Extremes | LEI Li-juan, ZHANG Yi, LUO Yi-na, et al. | (2028) |
| Presence, Behavior, and Risk of Antiviral Drugs in the Aqueous Environment | GE Lin-ke, LI Xuan-yan, CAO Sheng-kai, et al. | (2039) |
| Spatio-temporal Variation and Probability Health Risk of Heavy Metals in Surface Water of Xiaolangdi Reservoir in the Yellow River | WANG Liang, DENG Xue-jiao, WANG Xiao-lei, et al. | (2054) |
| Hydrochemical Characteristics and Control Factors of Strontium Enrichment of the Duoqu River Basin in Eastern Xizang | LI Jing-jie, LIAN Sheng, WANG Ming-guo, et al. | (2067) |
| Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Its Moisture Sources in the Inland Regions of Northwest China | "ZHANG Yan-yan, XIN Cun-lin, GUO Xiao-yan, et al. | (2080) |
| Recharge Source and Evolution Process of Karst Groundwater in Tai'an Urban Area Based on Hydrochemistry and Hydrogen and Oxygen J | Isotopes ·····MENG Ling-hua | (2096) |
| Hydrochemical Characteristics and Influencing Factors of Surface Water and Groundwater in the Mountainous Area of Danjiang River Bas | sin | |
| | ZHANG Zi-yan, FU Yong-peng, WANG Ning-tao, et al. | (2107) |
| Hydrochemical Characteristics and Control Factors of Groundwater in Yuanyangchi Irrigation Area, Jinta BasinWANG | Xiao-yan, HAN Shuang-bao, ZHANG Meng-nan, $\mathit{et al.}$ | (2118) |
| Hydrochemical Characteristics and Health Risk Assessment of Shallow Groundwater in the Plain Zone of Deyang City | LIU Nan, CHEN Meng, GAO Dong-dong, et al. | (2129) |
| Spatial and Temporal Distribution of Microplastics in the Sediments of Typical Urban River Network | ·····XU Wan-lu, FAN Yi-fan, QIAN Xin | (2142) |
| Construction of Nitrogen Emission Inventory at Sub-basin Scale and Analysis of Key Sources in Fuxian Lake Watershed | WANG Yan-jie, LIANG Qi-bin, WANG Yan-xia, et al. | (2150) |
| Preparation of Lanthanum Crosslinked Calcium Peroxide/Sepiolite/Sodium Alginate Composite Hydrogels and Their Elimination Performan | nce for Endogenous Phosphorus | (|
| ייייין און איז | "QU Si-tong, SHAN Su-jie, WANG Chong-ming, et al. | (2160) |
| Formation Mechanism, Structural Characteristics of Ultratine Mineral Particles, and Their Environmental Effects | LIU Zhen-hai, ZHANG Zhan-hua, YUAN Yu-xin, et al. | (21/1) |
| Research Progress in Application of Biochar-immobilized Bacteria Composites in Environmental Remediation | "SUN Shu-yu, HUANG Meng-xin, KUNG Qiang, et al. | (2185) |
| Effect of Microplastics on Ammonia Nitrogen Adsorption by Zeolite in water and its Mechanism | LIAN Jian-Jun, AIE Shi-ting, WU Pei, et al. | (2193) |
| Mechanism of Offraviolet Aging Effect on the Adsorption of Opronoxacin by Nano-Diochar | | (2203) |
| Response of Environmentation Communities and Environmental Factors Under the Influence of Land Use in the Watland of Powang Lake | | (2211) |
| Bacterial Community Structure and Its Relationship with Heavy Metals in Sediments of Diannong River | "LIU Shuang-vu, MENG Jun-ije, OIII Xiao-cong, et al. | (2223) |
| Impacts of Treated Wastewater on Bacterial and Fungal Microbial Communities in Beceiving Rivers | GUO You-shun, YU Zhong, HAO Wen-bin, et al. | (2246) |
| Metagenomics Reveals the Characteristics and Functions of Bacterial Community in the Advanced Wastewater Treatment Process | ······HU Jian-shuang, WANG Yan, ZHOU Zheng, et al. | (2259) |
| Spatio-temporal Characteristics of Habitat Quality and Natural-human Driven Mechanism in Dabie Mountain AreaZH | IENG Ya-ping, ZHANG Jun-hua, TIAN Hui-wen, et al. | (2268) |
| Hyperspectral Inversion of Soil Organic Matter Content Based on Continuous Wavelet Transform, SHAP, and XGBoost | YE Miao, ZHU Lin, LIU Xu-dong, et al. | (2280) |
| Effects of Straw Retention, Film Mulching, and Nitrogen Input on Soil Quality in Dryland Wheat Field | ······YE Zi-zhuang, WANG Song-yan, LU Xiao, et al. | (2292) |
| Effects of Long-term Application of Organic Fertilizer on the Occurrence and Migration Characteristics of Soil Microplastics | "WANG Chang-yuan, MA Xiao-chi, GUO De-jie, et al. | (2304) |
| Effect of Different Soil Salinities on N2O Emission: A Meta-analysis | ······HUANG Yi-hua, SHE Dong-li, SHI Zhen-qi, et al. | (2313) |
| Assessment and Prediction of Carbon Storage Based on Land Use/Land Cover Dynamics in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Ba | y Area ······ZHENG Hui-ling, ZHENG Hui-feng | (2321) |
| Simulation of Temporal and Spatial Changes in Ecosystem Carbon Storage in Funiu Mountains Based on InVEST Model | ZHANG Zhe, SHI Zhen-qin, ZHU Wen-bo, et al. | (2332) |
| Relationship Between Microbial Nutrient Limitation and Soil Organic Carbon Fraction During Shelterbelts Construction | ···XU Feng-jing, HUANG Yi-mei, HUANG Qian, et al. | (2342) |
| Characteristics and Driving Forces of Organic Carbon Mineralization in Brown Soil with Long-term Straw Returning | ·····ZHAO Yu-hang, YIN Hao-kai, HU Xue-chun, et al. | (2353) |
| Effects of Winter Green Manure Mulching on Soil Aggregates, Organic Carbon, and AMF Diversity | LU Ze-rang, CHEN Jia-yu, LI Zhi-xian, et al. | (2363) |
| Spatial and Temporal Distribution of Nitrogen in the Liaohe River Basin and Its Responses to Land Use and Rainfall | ZHOU Bo, LI Xiao-guang, TONG Si-chen, et al. | (2373) |
| Nitrous Oxide Emissions from Ponds in Typical Agricultural Catchment with Intensive Agricultural Activity | ZHANG Xin-yue, XIAO Qi-tao, XIE Hui, et al. | (2385) |
| Effects of Biochar Combined with Different Types of Nitrogen Fertilizers on Denitrification Bacteria Community in Vegetable Soil | ····LIU Xiao-wan, LIU Xing-ren, GAO Shang-jie, et al. | (2394) |
| Investigation of Soil Microbial Characteristics During Stand Development in <i>Pinus tabuliformis</i> Forest in Taiyue Mountain | MA Yi-shu, CAO Ya-xin, NIU Min, et al. | (2406) |
| Simulation of Heavy Metal Content in Soil Based on Sparse Sample Sites | ····ZHANG Jia-qi, PAN Yu-chun, GAO Shi-chen, et al. | (2417) |
| Identification Priority Source of Heavy Metal Pollution in Greenspace Soils Based on Source-specific Ecological and Human Health Kisk A | Analysis in the Yellow River Custom Tourist Line of Lanzh | 100 |
| ייסי מי מי יסיי וסדייסיו סוימני במניס מו | LI Jun, LI Xu, LI Kai-ming, et al. | (2428) |
| reavy metal Accumulation and Assessment of Potential Leological Risk Gaused by Soil pH Changes in Different Types of Purple Soils in 3 | Sounwest Unina | (2440) |
| Assessment and Source Analysis of Heavy Metal Pollution in Arable Land Around on Iron Oro Mining Area in Changeing | LIANG Dar-III, LIANG IU, WANG Ding, et al. | (2440) |
| Health Rick Assessment of Heavy Metals in Farmland Soils and Crons Around Matal Minas | | (2461) |
| Effect of Red Mud-based Nano Zero-valent Iron on Remediation of Polymetallic Contaminated Soil | IU Long-vu. YANG Shi-li, ZHAO Huang-shi-vu et al | (2474) |
| Effects of Zinc Application on Cadmium Accumulation in Alkaline Soil-Wheat Seedling Systems | ZHANG Yao, WANG Tian-qi, NIU Shuo, et al. | (2480) |