

DOI: 10.11835/j.issn.2096-6717.2021.186



开放科学(资源服务)标识码OSID:



三峡库区御临河邻苯二甲酸酯类的空间分布特征 及关键环境影响因子

王瑞霖^{1,2}, 冉艳³, 黄维³, 何强³, 李宏³

(1. 北京首创生态环保集团股份有限公司, 北京 100044; 2. 首创爱华(天津)市政环境工程有限公司 天津 300060; 3. 重庆大学三峡库区生态环境教育部重点实验室, 重庆 400045)

摘要: 为了解三峡库区内支流水体中邻苯二甲酸酯(PAEs)的来源、空间分布规律及影响其分布的主要环境因子, 选取三峡库区库尾一级支流御临河上的5个断面: 河口区、回水区(排花、舒家、梅溪)和不受三峡库区调度影响的上游来水区(东河)对PAEs进行了原位调研。基于皮尔逊相关性分析和主成分分析法确定御临河水体中6种PAEs的来源以及主要PAEs与环境因子的关系。结果表明: 所监测断面中6种PAEs(DEP、DMP、DBP、BBP、DEHP和DnOP, US EPA)的总浓度为0.42~0.77 μg/L, 5个监测断面PAEs平均总浓度依次为: 河口(0.771 μg/L) > 排花(0.638 μg/L) > 梅溪(0.613 μg/L) > 东河(0.566 μg/L) > 舒家(0.421 μg/L)。通过对6种优先控制PAEs的解析发现, 御临河水体中主要污染物为DBP、DMP和DEHP。皮尔逊相关性分析和主成分分析结果表明, DBP和DEHP显著正相关, 可能与工农业生产活动及其过程中产生的“三废”有关; DMP和DEP具有中等强度的相关性, 可能与当地居民的人为活动有关。

关键词: 三峡库区; 御临河; 邻苯二甲酸酯; 主成分分析; 环境因子

中图分类号: X522

文献标志码: A

文章编号: 2096-6717(2022)06-0193-08

Spatial distribution Characteristics of PAEs and key environmental factors in Yulin River in the Three Gorges Reservoir

WANG Ruilin^{1,2}, RAN Yan³, HUANG Wei³, HE Qiang³, LI Hong³

(1. Beijing Capital Eco-Environment Protection Group Co., Ltd., Beijing 100044, P. R. China; 2. Capital Aihua (Tianjin) Municipal and Environmental Engineering Co., Ltd., Tianjin 300060, P. R. China; 3. Key Laboratory of the Three Gorges Reservoir Eco-Environment, Ministry of Education, Chongqing University, Chongqing 400045, P. R. China)

Abstract: In order to understand the source and spatial distribution regularities of PAEs and the main environmental factors affecting their distribution in the tributary of the Three Gorges Reservoir, Five sections in

收稿日期: 2021-08-06

基金项目: 国家自然科学基金(41877472)

作者简介: 王瑞霖(1988-), 男, 主要从事流域综合治理及污水处理技术研究, E-mail: wz912076@qq.com。

李宏(通信作者), 男, 副教授, 博士生导师, E-mail: hongli@cqu.edu.cn。

Received: 2021-08-06

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (No. 41877472)

Author brief: WANG Ruilin (1988-), main research interests: integrated water basin management and waste water treatment technology, E-mail: wz912076@qq.com.

LI Hong (corresponding author), associate professor, doctoral supervisor, E-mail: hongli@cqu.edu.cn.

Yulin River, the first level tributa at the end of the Three Gorges Reservoir, were selected: the Estuary, the backwater area (Paihua, Shujia, Meixi) and the upsteam inflow area (Donghe), which was not affected by the operation of the Three Gorges Reservoir, to conduct an in-situ investigation on PAEs. Based on Pearson correlation analysis and principal component analysis, the sources of six PAEs in Yulin River and the relationship between the main PAEs and environmental factors were identified. The results of in-situ investigations of 6 kinds of PAEs (DEP, DMP, DBP, BBP, DEHP and DnOP, according to US EPA) in five monitoring section of the Yulin River revealed that the total concentration of PAEs was in the range of 0.42~0.77 $\mu\text{g/L}$. The average total concentrations of PAEs in the five monitoring sections were: Estuary (0.771 $\mu\text{g/L}$) > Paihua (0.638 $\mu\text{g/L}$) > Meixi (0.613 $\mu\text{g/L}$) > Donghe (0.566 $\mu\text{g/L}$) > Shujia (0.421 $\mu\text{g/L}$), with DMP, DBP and DEHP being the primary monomers. Based on the correlation analysis and principal component analysis, it was found that there was a significant positive correlation between DBP and DEHP, which may be related to industrial and agricultural production activities and the “three wastes” generated in the process. The moderate correlation between DMP and DEP indicated that these pollutants may be attributed from the anthropogenic activities of local residents.

Keywords: Three Gorges Reservoir; Yulin River; PAEs; principal component analysis; environmental factors

邻苯二甲酸酯(PAEs)俗称酞酸酯,因其在环境中具有较高的检出率,又被称为“第二个全球性多氯联苯(PCB)污染物”^[1]。PAEs常被用作聚氯乙烯材料的增塑剂,广泛应用于玩具、食品包装材料、地板以及个人护理用品等数百种产品中。PAEs用作增塑剂时与材料结合不紧密,因此很容易从材料中释放,进入环境中,当材料老化和分解时,其释放速率会大大增加^[2-4]。大量研究表明,包括PAEs在内的持久性有机污染物会随着食物链传递且具有生物富集效应,对人类健康造成威胁^[5-7]。进入环境中的PAEs可通过食物摄入、呼吸和皮肤接触等方式进入生物体内,PAEs具有较高的脂溶性,致使其长期累积在生物体内^[8-9]。甚至有相关研究表明,PAEs的部分单体,如邻苯二甲酸二(2-乙基己基)酯(DEHP)、邻苯二甲酸二乙酯(DEP)、邻苯二甲酸二正丁酯(DBP)等能自由跨越胎盘屏障,进而直接对胎儿产生健康威胁^[10]。中国作为PAEs最大的制造国和消费国之一,各类环境介质,如空气、大气降尘、土壤、水体、生物、沉积物和悬移质泥沙等,均有不同程度的PAEs被检出^[11]。有关PAEs在环境中的存在水平是近年来的研究热点。

三峡库区是中国重要的淡水资源库。据报道,在三峡大坝正式投入运行前,PAEs是水体中主要污染物之一,其中DBP和DEHP的浓度分别高达9.48、5.42 $\mu\text{g/L}$ ^[12]。自三峡大坝正式投入运行并采用非汛期“蓄清”、汛期“排浊”的调度方式以来,三峡库区内水文情势发生了巨大变化。在非汛蓄水

期水流速度进一步放缓,并且受长江回水的影响,库区内一些支流出现上游为来水区、下游为回水区的复杂水动力现象。三峡库区内农田和河岸表层土壤PAEs污染水平无明显差异,分别为0.62、0.56 $\mu\text{g/g}$,其中DBP是两类土壤中主要PAEs污染物类型^[13]。结合健康风险评估模型研究发现,DBP日均摄入量占总PAEs摄入量的60%~84%,因此,在三峡库区消落带区域,应预防DBP带来的潜在健康风险^[14]。有学者对三峡库区水体和沉积物中PAEs的时空分布特征和来源进行研究,结果显示,蓄水期三峡库区水体中PAEs含量均高于泄水期,蓄水期水体中主要污染物为DBP和DEHP,其含量分别为0.01~0.72、0.01~0.39 $\mu\text{g/L}$,而沉积物中DEHP含量则略高于DBP含量,其含量分别为0.08~4.05、0.01~1.11 $\mu\text{g/g}$ ^[15]。这可能与泄水期水体流速快、悬移质泥沙对PAEs的吸附有关^[16]。而在蓄水期,水体流态相对稳定,PAEs在河流内部的输移相对缓慢,这一时期水体中PAEs的含量能更准确地反映汛期赋存特征及生态环境风险。此外,三峡库区支流水环境中污染物的赋存现状既可能受流域人为活动影响,也可能与长江干流回水有关。因此,解析蓄水期三峡库区支流水体中主要PAEs污染水平、识别其主要来源、阐明其空间分布规律及影响其分布的主要环境因子,将为评估PAEs的健康风险及PAEs污染防治工作提供数据支撑与理论依据,对保障三峡库区水生态环境安全具有重要意义。

1 材料与方 法

1.1 实验试剂与仪器设备

实验试剂:6种PAEs混合标准品(200 mg/L, 99%, AccuStandard 公司);甲醇(色谱纯);正己烷(分析纯);水(Milli-Q超纯水);二氯甲烷(色谱纯, 美国 Fisher Chemical 公司)。

主要仪器设备:总有机碳分析仪(TOC-L, 日本岛津制作所株式会社);紫外可见近红外分光光度计(UV-3600, 日本岛津);三重四极杆气质联用仪(GCMS-TQ8040, 日本岛津);便携式多参数水质测量仪(YSI 556MPS, 美国维塞公司);固相萃取装置(AgilentYKS-V1, 美国 Agilent)。

1.2 研究区域

实验研究区域设置在三峡库区库尾一级支流御临河。御临河(29°34'45"N~30°07'22"N, 106°27'30"E~106°57'58"E)位于重庆市境内,全长约218.2 km,流域面积约3 861 km²,河口多年平均流量约50.72 m³/s。御临河长江入河口处距下游三峡大坝约548 km,是三峡水库库尾重要一级支流,受库区周期性调度影响较大。自2003年三峡大坝蓄水以来,水位周期性变化成为三峡库区运行后的主要特征,即夏季出现低水位(145 m),冬季出现高水位(175 m)。如图1所示,原位调研实验选取御临河5个断面,分别为河口区、长江回水延伸至40 km外的回水区(排花、舒家、梅溪)和不受三峡库区调度影响的上游来水区(东河)。

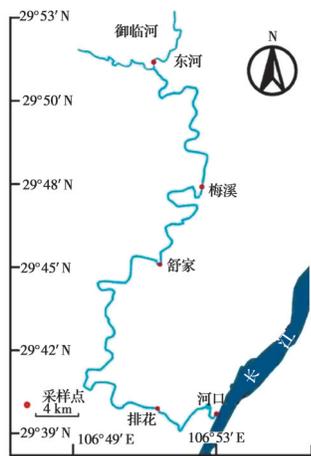


图1 采样点分布图

Fig.1 Distribution map of sampling points

1.3 样品采集

御临河原位调研实验开展始于2019年12月(蓄水稳定期)。具体采样方法为:首先,将采水器和聚四氟乙烯棕色样品瓶分别用预采集的水样清

洗3次,借助采样船,用采水器在御临河5个监测断面采集表层(0~0.5 m)水样10 L,按左、中、右3点等比例混合。随后,将现场采集的水样缓慢转移到样品瓶中,用冰袋保存运输。回到实验室后,立即将水样过0.45 μm微孔滤膜并继续避光保存。样品的萃取于72 h内完成,并在萃取后40 d内完成分析。此外,用便携式多参数水质测量仪测定水体DO、pH值和水温,并用多普勒仪测定水体流速。

1.4 样品检测方法

1.4.1 常规水质指标检测方法 其他环境因子总氮、氨氮、硝态氮、总磷、磷酸盐、叶绿素a、水中悬浮物、悬浮物中总有机碳、水中总有机碳的含量检测方法如表1所示。

表1 测试指标及分析方法

Table 1 Test index and analysis method

分析项目	分析方法
总氮(TN)	紫外分光光度法(HJ/T 346—2007)
氨氮(NH ₄ ⁺)	纳氏试剂光度法(HJ/T 535—2009)
硝态氮(NO ₃ ⁻)	紫外分光光度法(HJ/T 346—2007)
总磷(TP)	钼酸铵分光光度法(HJ/T 670—2013)
磷酸盐(PO ₄ ³⁻)	钼酸铵分光光度法(HJ/T 670—2013)
水中总有机碳(TOC _w)	总有机碳分析仪
叶绿素a(Chla)	分光光度法(HJ 897—2017)
水中悬浮物(SS)	重量法(GB/T 11901—1989)
悬浮物中总有机碳(TOC _{ss})	总有机碳分析仪

1.4.2 水中PAEs含量的检测方法 选用固相萃取的方法对水体中PAEs进行富集浓缩^[17-18]。

1)水样的预处理 将需要富集的水样过0.45 μm玻璃纤维滤膜,以去除原位水样中悬浮颗粒物,其中,玻璃纤维滤膜事先在马弗炉中400 °C条件下煅烧3 h,以降低空白值,再采取固相萃取方法对水中的PAEs进行萃取,具体操作步骤如下:

a. 活化。依次使用10 mL二氯甲烷活化固定相、10 mL甲醇置换固定相中的二氯甲烷并充满填料的微孔、10 mL超纯水置换C₁₈小柱滞留的甲醇,以保证憎水性的萃取剂表面与水样有良好的接触。此外,在整个活化过程中不能将C₁₈小柱抽干,从而避免填料床出现裂缝,保证PAEs检测的回收率和重现性。

b. 富集。在需要富集的1 000 mL水样中加入10 mL甲醇和PAEs回收率指示物菲-D10(Phe-D10),在充分混匀后,调节循环水式多用真空泵的真空度,使水样以5.7 mL/min的流速均匀通过活

化后的C₁₈小柱。

c. 淋洗。用6 mL超纯水淋洗C₁₈小柱中弱保留的亲水性组分,以保证后续分析结果的准确性。将淋洗后的C₁₈小柱真空干燥3~5 min,去除多余水分。

d. 洗脱。PAEs为弱极性有机污染物,选择弱极性的二氯甲烷和正己烷(体积比1:1)作为洗脱剂,使用18 mL混合洗脱剂分3次将目标物洗脱下来,洗脱速率为1.1 mL/min。

e. 浓缩。将收集的目标物-洗脱剂混合溶液用高纯度氮气缓慢吹至近干,用正己烷定容至1 mL,并在4℃下避光保存,直至后续的分析。

2)样品的检测 采用三重四极杆气质联用仪(GC-MS)对6种PAEs进行定量分析。定量方式:一级采用SIM模式;色谱柱:Rtx-5MS色谱柱;进样方式:液体进样;测试条件:进样体积1 μL,不分流,排气时间0.75 min,以高纯度氮气(≥99.999%)作为载气,流速1.0 mL/min,升温程序为:60℃保持2 min,以8℃/min升温至300℃,保持15 min。进样口温度280℃、传输线温度300℃、离子源温度246℃。并采用外标法定量分析。

3)质量保证与控制

a. 标准曲线。对6种PAEs标准色谱峰峰面积建立相对应的回归曲线,通过测定6个不同浓度梯度(0、50、100、200、300、500 μg/L)的PAEs标准溶液,计算出PAEs浓度(C)与色谱峰峰面积(S)之间的相关系数,得到定量标准曲线及其相关系数,其中,DMP标准曲线回归方程为 $C_{DMP} = 1006.83S + 2122.59 (R^2 = 0.9996)$;DEP标准曲线回归方程为 $C_{DEP} = 1017.28S + 383.15 (R^2 = 0.9996)$;DBP标准曲线回归方程为 $C_{DBP} = 1511.26S + 3712.09 (R^2 = 0.9999)$;BBP标准曲线回归方程为 $C_{BBP} = 549.88S + 3640.51 (R^2 = 0.9994)$;DEHP标准曲线回归方程为 $C_{DEHP} = 802.23S + 5350.27 (R^2 = 0.9995)$;DnOP标准曲线回归方程为 $C_{DnOP} = 1284.67S + 10992.52 (R^2 = 0.9994)$

b. 回收率。6种PAEs在水样中的加标回收率为80.25%~102.50%,Phe-D10回收率指示物的回收率为63.44%~90.54%,相对于标准偏差,各采样点的平行样品测定均小于10%,方法空白无PAEs检出,各采样点PAEs最终浓度均经过方法空白扣除并进行回收率的校正。

c. 方法检出限。参考美国EPA,通过已知加标的方法计算方法检出限。即重复分析5个基质加标

样品,加标浓度为5倍仪器检出限(IDL),按实际样品的处理步骤对其进行富集、浓缩测定等步骤,通过GC-MS测定,得出基质加标回收率,计算其标准偏差(SD),方法检出限(MDL)即为3.75倍SD的值。实验水样中6种PAEs的方法检出限为0.14~0.83 ng/L。

1.5 数据分析

主成分分析(Principal Component Analysis, PCA)主要基于降维数据处理方法,找到多个复杂变量中对研究对象影响较大的少数几个变量^[19]。这种方法在减少工作量、提高处理效率的同时,极大地保留了各数据信息的准确性和完整性。因此,通过IBM SPSS Statistics(20.0)软件对御临河PAEs原位调研实验数据进行分析:对6种PAEs单体之间、PAEs单体与环境因子之间的检测值进行皮尔逊相关性分析,从而确定与御临河天然水体中PAEs污染物来源及与污染水平相关性较强的环境因子。

2 结果与讨论

2.1 水体中PAEs的空间分布及来源

2.1.1 水体中PAEs的空间分布 如图2(a)所示,在御临河5个监测断面中,6种优先控制PAEs(USEPA)总浓度为0.421~0.771 μg/L(均值为0.596 μg/L),其浓度水平低于三峡库区干流(0.635~2.885 μg/L,均值为0.956 μg/L)和三峡库区其他支流(0.754~0.984 μg/L,均值为0.843 μg/L)^[20]。不同监测断面之间PAEs浓度水平存在较为明显的差异,其中,各断面6种优先控制污染物平均总浓度从大到小依次为:河口(0.771 μg/L) > 排花(0.638 μg/L) > 梅溪(0.613 μg/L) > 东河(0.566 μg/L) > 舒家(0.421 μg/L)。6类优先控制PAEs中,主要为DBP(0.126~0.411 μg/L)、DMP(0.086~0.203 μg/L)和DEHP(0.090~0.177 μg/L)(图2(b)),其中,水体中DBP和DEHP的含量分别满足《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002)对DBP(≤3.00 μg/L)和DEHP(≤8.00 μg/L)的浓度限制要求。如图2(c)所示,各监测断面中,PAEs相对含量也存在显著差异($P < 0.05$),在距离长江干流较近、受水库回水影响相对较大的河口和排花监测断面中主要PAEs污染物依次为DBP(52.38%~53.33%) > DEHP(23.07%~23.56%) > DMP(13.51%~17.80%);距离长江干流较远、受水库回水影响相对较小的舒家、梅溪和上游来水区的东河3个监测断面,其各类PAEs

污染物相对含量较为相似,主要 PAEs 污染物为 DBP (30.13%~42.44%)>DMP(27.07%~39.80%)>DEHP(20.96%~21.21%)。御临河 PAEs 污染物含量与组成的影响因素可能有:长江干流回水及上游来水所带来的外源输入 PAEs 的影响;各类环境因子

的综合作用影响水相中 PAEs 的迁移转化过程,进而造成 PAEs 含量与组成的差异。为探讨上述影响因素,对 6 种 PAEs 之间及其与各类环境因子进行相关性分析和主成分分析,研究御临河水相中 PAEs 来源和影响其迁移转化过程的主要环境因子。

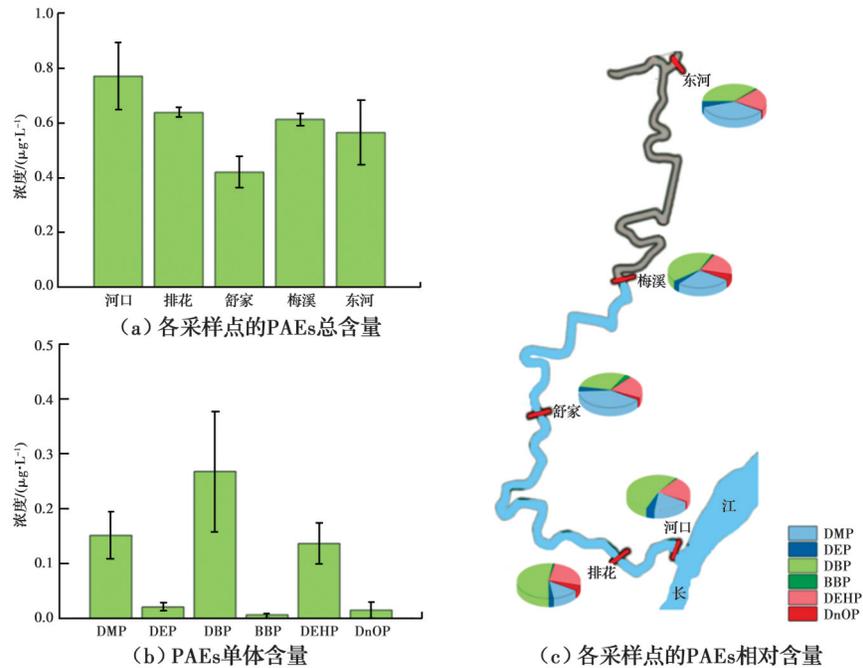


图 2 御临河水体中 6 种 PAEs 的分布特征

Fig. 2 Distribution characteristics of PAEs monomers in water of the Yulin River

2.1.2 水体中 PAEs 的来源 通过 IBM SPSS Statistics 软件对御临河水体中 6 种 PAEs 含量进行皮尔逊相关性分析,结果如表 2 所示。御临河水体中 DBP 和 DEHP 具有极显著的正相关($P < 0.01$),皮尔逊相关系数为 0.768,具有高强度的相关性,而 DMP 与 DEP 具有中等强度的相关性。

进一步采用主成分分析法来分析御临河水体中 PAEs 的来源,结果如图 3 所示,对御临河水体样

品提取出 2 个主成分,第一主成分(PC1)和第二主成分(PC2)的方差贡献率分别为 51.60% 和 33.23%,累积总方差贡献率为 84.83%,其中,PC1 中的 DEHP 和 DBP 载荷相对最高,PC2 中 DEP 和 DMP 相对载荷最高。由表 2 可知,DBP 和 DEHP 可能具有相同来源,DMP 与 DEP 的来源可能具有一定程度的同源性。DBP 和 DEHP 被广泛用于 PVC 产品、医疗器械、黏合剂、油漆、油墨和肠溶片等生产制造^[21],此外,Li 等^[22]研究发现,DBP 和 DEHP 与农业活动也具有显著相关性,如农用塑料薄膜、杀虫剂和除草剂等的使用。由于 DMP 和 DEP 特殊的理化性质,常被用作香料、化妆品添加剂和个人护理产品中的溶剂和固定剂^[21]。综上推断,PC1 反映了御临河的 PAEs 主要源自工农业生产活动及其过程中产生的“三废”,PC2 反映了御临河的 PAEs 污染物来源主要与当地居民的人为活动有关。

表 2 御临河水体中 6 种 PAEs 单体的相关关系

Table 2 Correlations of PAEs monomers in water of the Yulin River

PAEs 种类	DMP	DEP	DBP	BBP	DEHP	DnOP
DMP	1					
DEP	0.352	1				
DBP	-0.493	0.419	1			
BBP	0.310	-0.321	-0.453	1		
DEHP	-0.261	0.551	0.768**	-0.322	1	
DnOP	-0.516	-0.608	0.198	-0.156	0.050	1

注:**表示在 0.01 级别(双尾),相关性极显著。

2.2 水体中 PAEs 空间分布的影响因素

在研究御临河水体中 PAEs 与环境因子的关系时拟定并监测了水温(TEMP)、水体酸碱度(pH 值)、水体中溶解氧(DO)、水体流速(V_{el})、总磷

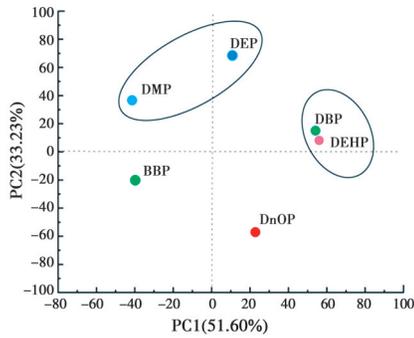


图3 御临河6种PAEs单体主成分的分析因子载荷值

Fig. 3 Factor loadings values of six PAEs monomers in water in the Yulin River, by principal component analysis

(TP)、总氮(TN)、磷酸盐(PO_4^{3-})、硝氮(NO_3^-)、氨氮(NH_4^+)、水体中总有机碳(TOC)、水体中悬浮颗粒物(SS)、叶绿素a(Chla)等12个环境因子,对12个环境因子之间及其与御临河3种主要PAEs(DBP、DEP和DEHP)之间进行皮尔逊相关性分析,发现TP和 PO_4^{3-} 与3种主要PAEs的皮尔逊相关系数的绝对值为0.098~0.320,呈现出较弱的相关性;TN和 NO_3^- 则呈现出极显著正相关($P < 0.01$),因此,后续的主成分分析中排除了TP、 PO_4^{3-} 和TN等3个环境因子。

如图4所示,PC1和PC2的方差贡献率分别为41.91%和26.35%,累积总方差贡献率为68.26%,说明御临河3种主要PAEs的响应关系信息一定程度上可以由主成分因子表达,并由二者构成的向量体系来表征系统变化的主成分以及独立变量的相关关系。第一主成分表达式为 $\text{PC1} = 0.152\text{DMP} - 0.076\text{DBP} - 0.386\text{DEHP} - 0.419\text{水温} + 0.370\text{水体酸碱度} + 0.348\text{水体中溶解氧} - 0.252\text{水体流速} + 0.026\text{硝氮} + 0.141\text{氨氮} + 0.268\text{水体中总有机碳} - 0.287\text{水体中悬浮颗粒物} + 0.386\text{叶绿素a}$;第二主成分表达式为 $\text{PC2} = 0.408\text{DMP} + 0.233\text{DBP} - 0.045\text{DEHP} - 0.016\text{水温} + 0.068\text{水体酸碱度} + 0.141\text{水体中溶解氧} + 0.013\text{水体流速} + 0.484\text{硝氮} - 0.010\text{氨氮} - 0.364\text{水体中总有机碳} + 0.347\text{水体中悬浮颗粒物} + 0.178\text{叶绿素a}$ 。PC1中水体酸碱度、水体中溶解氧和叶绿素a具有较高的正权重,但对水温、DEHP、水体流速、水体中悬浮颗粒物量具有较高程度的负权重;PC2中硝氮、DMP、水体中悬浮颗粒物和DBP具有较高的正权重,对水中总有机碳具有较高程度的负权重。第一主成分主要表征水环境指标(除叶绿素a),如水体酸碱度、水体中溶解氧、水温和水体流速等;第二主

成分主要表征水质指标,如硝酸盐、水体中总有机碳、水体中悬浮颗粒物和PAEs。

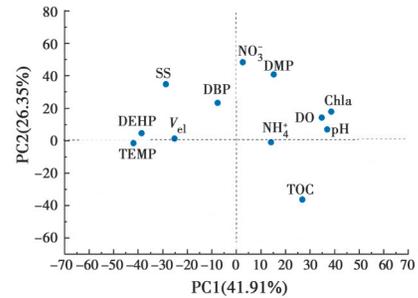


图4 御临河3种PAEs单体与9个环境因子主成分的分析因子载荷值

Fig. 4 Factor loadings values of three PAEs monomers and nine environmental variables in the Yulin River by principal component analysis

3 结论

对御临河河口、排花、舒家、梅溪和东河等5个断面水相中6种优先控制PAEs(DMP、DEP、DBP、DnOP、BBP和DEHP,US EPA)的空间分布特征进行原位调研,并通过相关性分析和主成分分析法探讨6种PAEs的潜在来源以及主要PAEs与环境因子的关系,得到以下主要结论:

1)5个监测断面中,6种优先控制污染物平均总浓度从大到小依次为:河口($0.771 \mu\text{g/L}$)>排花($0.638 \mu\text{g/L}$)>梅溪($0.613 \mu\text{g/L}$)>东河($0.566 \mu\text{g/L}$)>舒家($0.421 \mu\text{g/L}$);主要PAEs为DBP($0.126 \sim 0.411 \mu\text{g/L}$)、DMP($0.086 \sim 0.203 \mu\text{g/L}$)和DEHP($0.090 \sim 0.177 \mu\text{g/L}$),其中,DBP和DEHP的含量分别满足《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002)对DBP($\leq 3.00 \mu\text{g/L}$)和DEHP($\leq 8.00 \mu\text{g/L}$)的浓度限制要求。

2)不同断面之间PAEs组成存在显著差异,其中靠近长江干流的河口和排花监测断面各PAEs相对含量无显著差异,主要PAEs污染物依次为DBP>DEHP>DMP;距离长江干流较远、受水库回水影响相对较小的舒家、梅溪和上游来水区的东河3个监测断面中PAEs相对含量相似,主要PAEs污染物依次为DBP>DMP>DEHP。

3)通过对6种PAEs潜在来源的相关性分析和主成分分析,发现DBP和DEHP显著正相关,可能与工农业生产活动及其过程中产生的“三废”有关;DMP和DEP具有中等强度的相关性,可能与当地居民的人为活动有关,如香料、化妆品和个人护理

产品的广泛使用。

4)御临河3种主要PAEs的空间分布主要与两类环境因子有关,第一类为水体酸碱度、水体中溶解氧、水温、和水体流速等水环境指标,第二类为含氮营养盐、水体中总有机碳、水体中悬浮颗粒物等水质指标。

参考文献

- [1] LIU Q, YANG H J, SHI Y X, et al. Research progress on phthalate esters (PAEs) organic pollutants in the environment [J]. Chinese Journal of Eco-Agriculture, 2012, 20(8): 968-975.
- [2] 张琳. 袋装牛奶中邻苯二甲酸酯的检测及迁移规律研究[D]. 河北保定: 河北农业大学, 2013.
ZHANG L. The determination and migration of phthalate ester in plastic bagged milk [D]. Baoding, Hebei: Hebei Agricultural University, 2013. (in Chinese)
- [3] GIOVANOU LIS G, BUI T, XU F C, et al. Multi-pathway human exposure assessment of phthalate esters and DINCH [J]. Environment International, 2018, 112: 115-126.
- [4] SUN C Z, ZHANG G, ZHENG H, et al. Fate of four phthalate esters with presence of *Karenia brevis*: Uptake and biodegradation [J]. Aquatic Toxicology, 2019, 206: 81-90.
- [5] WANIA F, MACKAY D. Tracking the distribution of persistent organic pollutants [J]. Environmental Science & Technology, 1996, 30(9): 390-396.
- [6] SCHERINGER M, SALZMANN M, STROEBE M, et al. Long-range transport and global fractionation of POPs: Insights from multimedia modeling studies [J]. Environmental Pollution, 2004, 128(1/2): 177-188.
- [7] CORSOLINI S, ADEMOLLO N, ROMEO T, et al. Persistent organic pollutants in edible fish: A human and environmental health problem [J]. Microchemical Journal, 2005, 79(1/2): 115-123.
- [8] 熊希瑶, 贺聪聪, 焦啸宇, 等. 水生态环境中邻苯二甲酸酯(PAEs)塑化剂的赋存及行为归趋[J]. 中南民族大学学报(自然科学版), 2021, 40(3): 238-245.
XIONG X Y, HE C C, JIAO X Y, et al. Occurrence, behavior and fate of phthalate esters (PAEs) plasticizers in aquatic environmental systems [J]. Journal of South-Central University for Nationalities (Natural Science Edition), 2021, 40(3): 238-245. (in Chinese)
- [9] BENJAMIN S, MASAI E J, KAMIMURA N, et al. Phthalates impact human health: Epidemiological evidences and plausible mechanism of action [J]. Journal of Hazardous Materials, 2017, 340: 360-383.
- [10] TRANFO G, PACI E, PIGINI D, et al. Phthalate metabolites in amniotic fluid and maternal urine samples [J]. Journal of Environmental Protection, 2014, 5(14): 1411-1418.
- [11] ZHANG L L, LIU J L, LIU H Y, et al. The occurrence and ecological risk assessment of phthalate esters (PAEs) in urban aquatic environments of China [J]. Ecotoxicology, 2015, 24(5): 967-984.
- [12] 许川, 舒为群, 罗财红, 等. 三峡库区水环境多环芳烃和邻苯二甲酸酯类有机污染物健康风险评价[J]. 环境科学研究, 2007, 20(5): 57-60.
XU C, SHU W Q, LUO C H, et al. Water environmental health risk assessment of PAHs and PAEs in the Three Gorges reservoir [J]. Research of Environmental Sciences, 2007, 20(5): 57-60. (in Chinese)
- [13] HE M J, YANG T, YANG Z H, et al. Current state, distribution, and sources of phthalate esters and organophosphate esters in soils of the Three Gorges reservoir region, China [J]. Archives of Environmental Contamination and Toxicology, 2018, 74(3): 502-513.
- [14] 杨婷, 何明靖, 杨志豪, 等. 邻苯二甲酸酯在三峡库区消落带非淹水期土壤中污染特征及健康风险[J]. 环境科学, 2017, 38(10): 4187-4193.
YANG T, HE M J, YANG Z H, et al. Occurrence, distribution and health risk of the phthalate esters in riparian soil in the fluctuating zone of the Three Gorges Reservoir [J]. Environmental Science, 2017, 38(10): 4187-4193. (in Chinese)
- [15] LIN L, DONG L, MENG X Y, et al. Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons and phthalic acid esters in water and surface sediment from the Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Environmental Sciences, 2018, 69(7): 271-280.
- [16] 冉艳, 何强, 袁若愚, 等. 不同粒径悬移质泥沙对邻苯二甲酸二正丁酯的吸附特性[J]. 土木与环境工程学报(中英文), 2021, 43(5): 178-186.
RAN Y, HE Q, YUAN R Y, et al. Adsorption characters of dibutyl phthalate in different grain-size suspended particulate matter [J]. Journal of Civil and Environmental Engineering, 2021, 43(5): 178-186. (in Chinese)
- [17] HE Y, WANG Q M, HE W, et al. The occurrence, composition and partitioning of phthalate esters (PAEs) in the water-suspended particulate matter (SPM) system of Lake Chaohu, China [J]. Science of the Total Environment, 2019, 661: 285-293.
- [18] 杜娴. 重庆主城两江水体与沉积物中邻苯二甲酸酯和多环芳烃污染水平及特征[D]. 重庆: 重庆大学, 2012.

- DU X. Levels and characteristics of phthalate esters and polycyclic aromatic hydrocarbons in the Yangtze River and Jialing River from Chongqing's urban areas [D]. Chongqing: Chongqing University, 2012. (in Chinese)
- [19] 吴亚非, 李科. 基于SPSS的主成分分析法在评价体系中的应用[J]. 当代经济, 2009(3): 166-168.
- WU Y F, LI K. Application of SPSS based primary component analysis in comprehensive evaluation [J]. Contemporary Economics, 2009(3): 166-168. (in Chinese)
- [20] 林莉, 董磊, 李青云, 等. 三峡库区水体和底泥中多环芳烃和邻苯二甲酸酯类分布和来源[J]. 湖泊科学, 2018, 30(3): 660-667.
- LIN L, DONG L, LI Q Y, et al. Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons and phthalic acid esters in water and surface sediment from the Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Lake Sciences, 2018, 30(3): 660-667. (in Chinese)
- [21] 沈思, 王晓瑜, 王海霞, 等. 细菌降解邻苯二甲酸酯的研究进展[J]. 生物工程学报, 2019, 35(11): 2104-2120.
- SHEN S, WANG X Y, WANG H X, et al. Advances in biodegradation of phthalates esters [J]. Chinese Journal of Biotechnology, 2019, 35(11): 2104-2120. (in Chinese)
- [22] LI Y Y, HE W, LIU W X, et al. Impacts of anthropogenic activities on spatial variations of phthalate esters in water and suspended particulate matter from China's lakes [J]. Science of the Total Environment, 2020, 724: 138281.

(编辑 王秀玲)