

城市污泥中合成麝香的分布特征

郭亚文¹, 张晓岚^{1*}, 钱光人², 王珺¹, 刘仲哲², 梁高峰¹, 盛国英^{1,3}, 傅家谟^{1,3}

(1. 上海大学环境与化学工程学院, 环境污染与健康研究所, 上海 200072; 2. 上海大学环境与化学工程学院环境科学与工程系, 上海 200072; 3. 中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室, 广州 510640)

摘要: 对上海市 15 个污水处理厂外排污泥中合成麝香的污染水平及分布特征进行了研究, 发现污泥中普遍存在佳乐麝香(HHCB)和吐纳麝香(AHTN), 干污泥中的平均浓度和浓度范围分别为 2.92、0.81~6.39 和 1.96、0.35~3.11 mg·kg⁻¹; 萨利麝香(ADBI)、粉檀麝香(AHMI)、酮麝香(MK)则为次要组分; 这与日化产品中合成麝香的使用模式一致。污泥中 8 种合成麝香的总量在 1.16~9.57 mg·kg⁻¹, 与国外其它地区相比上海污泥中合成麝香的污染水平较低; 污泥中合成麝香的浓度与进水中生活污水的比例、污水处理量以及污水处理工艺等因素有关。HHCB、AHTN 和 ADBI 间存在良好的线性相关性, 显示污泥中合成麝香有共同的来源特征。利用污泥中合成麝香的浓度估算了上海地区人均贡献量, 并与欧洲的人均使用情况进行了比较; 评估了污泥农用后对土壤可能产生的影响。

关键词: 合成麝香; 污水处理厂; 污泥; 分布

中图分类号: X132 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2009)05-1493-06

Distribution Character of Synthetic Musks in Urban Sewage Sludges

GUO Ya-wen¹, ZHANG Xiao-lan¹, QIAN Guang-ren², WANG Jun¹, LIU Zhong-zhe², LIANG Gao-feng¹, SHENG Guo-ying^{1,3}, FU Jia-mo^{1,3}

(1. Institute of Environmental Pollution and Health, School of Environmental and Chemical Engineering, Shanghai University, Shanghai 200072, China; 2. Department of Environmental Science and Engineering, School of Environmental and Chemical Engineering, Shanghai University, Shanghai 200072, China; 3. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The characteristics of occurrence and distribution of 8 synthetic musks in 15 sewage sludges in Shanghai were studied. The results indicated that HHCB and AHTN were the two main components in all sludges, with the mean concentration of 2.92 mg·kg⁻¹ (0.81-6.39 mg·kg⁻¹) and 1.96 mg·kg⁻¹ (0.35-3.11 mg·kg⁻¹), respectively; and the concentrations of ADBI, AHMI, MK were less. The distributions detected in sludges are in accordance with the usage patterns in China. Total concentrations of 8 synthetic musks were ranged from 1.16-9.57 mg·kg⁻¹, which were lower than the results in previous studies. Concentrations in sludges are influenced by ratio of domestic wastewater in influent, sewage load and sewage treatment methods. The good linear relationships among HHCB, AHTN and ADBI indicate that these components have the same source: domestic wastewater. The consumption rates of HHCB and AHTN connected to per inhabitant in Shanghai region were estimated, which are low compared with those found in European. The potential impacts on agricultural soil were also assessed.

Key words: synthetic musk; sewage treatment plant; sludge; distribution

合成麝香作为添香物被广泛应用于化妆品、个人护理用品等日化产品中。由于使用的普遍性, 这类物质在各环境介质中广泛分布, 成为新型的环境污染物^[1~4]。合成麝香分多环、硝基和大环麝香三大类, 硝基麝香具有一定的生态毒性^[5,6], 而大环麝香的生产成本高, 因此这两类麝香的使用量较少。目前生产和使用量最大的是多环麝香中的佳乐麝香(4, 6, 6, 7, 8, 8-六甲基异色满, HHCB)和吐纳麝香(1, 1, 3, 4, 4, 6-六甲基-7-乙酰基-萘满, AHTN)^[7]。大量研究工作表明合成麝香随日化产品的使用进入生活污水, 并通过污水收集处理系统到达污水处理厂; 由于其亲脂憎水性较强, 在污水处理过程中主要通过吸附作用富集至污泥^[4,8,9]。但目前国内的相关研究开

展很少^[10,11]。

上海作为超大型城市常住人口超过 1800 多万, 生活污水排放量是工业污水排放量的 2 倍, 因此污水处理厂污泥中合成麝香的污染状况值得关注。本实验选择上海地区 15 家污水处理厂的污泥进行研究, 分析了主要合成麝香的污染水平和分布特点, 并简要评价了它们的人均贡献和对环境的影响。

收稿日期: 2008-06-11; 修订日期: 2008-07-30

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(973)项目(2008CB418200); 国家自然科学基金项目(40830744); 上海市科委创新行动计划项目(072312002); 上海市重点学科三期项目(S30109)

作者简介: 郭亚文(1982~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为水体和沉积物中有机污染物, E-mail: guoyawen@shu.edu.cn

* 通讯联系人, E-mail: zhangxiaolan@staff.shu.edu.cn

1 材料与方法

1.1 样品采集

采集污水处理厂的外排脱水污泥带回实验室，在-20℃保存，采样时间2006年12月。污水处理厂的位置和相关信息见图1、表1。

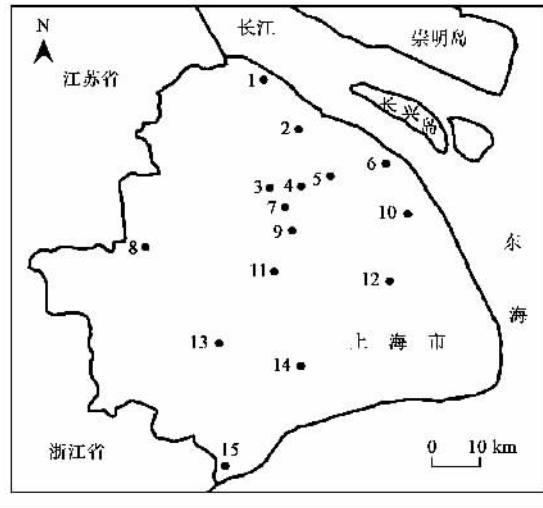


图1 污水处理厂采样点位

Fig. 1 Sampling map of wastewater treatment plant

1.2 标样与试剂

标准样品购于英国Promochem公司，包括6种多环麝香：开许梅龙(1,1,2,3,3-五甲基-1,2,3,5,6,7-六氢-4-茚酮，DPMI)、萨利麝香(1,1-二甲基-4-乙酰基-6-叔丁基蔡满，ADBI)、粉檀麝香(1,1,2,3,3,6-六甲基-5-乙酰基-茚满，AHMI)、特拉斯(1,1,2,6-四甲基-3-异丙基-5-乙酰基-茚满，ATII)、佳乐麝香(HHCB)、吐纳麝香(AHTN)；2种硝基麝香：二甲苯麝香(1-叔丁基-3,5-二甲基-2,4,6-三硝基苯，MX)、酮麝香(4-叔丁基-3,5-二硝基-2,6-二甲基苯乙酮，MK)，除HHCB纯度为75%外，其余物质纯度均为99%。六甲基苯(HMB)和D₃-AHTN购于德国Dr. Ehrenstorfer。

溶剂均为分析纯，经重蒸后使用。硅胶和中性氧化铝索氏抽提72 h，溶剂挥发后分别于180℃和250℃烘干12 h，以3%双蒸水去活化，再平衡12 h后浸于正己烷中待用。滤纸、脱脂棉均经抽提后待用；无水硫酸钠450℃灼烧6 h，活化后待用^[11]。

1.3 合成麝香测定

1.3.1 样品前处理

分析前冻干、磨细、过30目筛，称取若干用重蒸

表1 污水处理厂基本资料¹⁾

Table 1 Basic data of wastewater treatment plant

| 采样点 | 污水厂简称 | 日处理量 × 10 ⁴ /t | 生活污水比例 /% | 负责地区人口 × 10 ⁴ /人 | 主要处理工艺 | 年产干泥量 × 10 ⁴ /t | 污泥处置方法 |
|-----|-------|------------------------------|--------------|--------------------------------|----------|-------------------------------|---------|
| 1 | SDK | 34.43 | 60 | 70 | 序批式活性污泥 | 2.34 | 焚烧 |
| 2 | WS | 3.65 | 100 | 39 | 厌氧-好氧 | 0.01 | 填埋 |
| 3 | TP | 5.56 | 20 | 5 | 序批式活性污泥 | 0.17 | 填埋/焚烧 |
| 4 | QY | 5.67 | 100 | 25 | 厌氧-缺氧-好氧 | 0.24 | 填埋 |
| 5 | DQ | 3.11 | 100 | 80 | 活性污泥 | 0.02 | 填埋 |
| 6 | ZY | 149.67 | 70 | 293 | 化学一级强化 | 18.98 | 填埋→绿化肥料 |
| 7 | TS | 7.47 | 90 | 33 | 活性污泥 | 0.04 | 填埋 |
| 8 | QP | 1.62 | 90 | 8 | 氧化沟 | 0.03 | 填埋 |
| 9 | LH | 10.04 | 70 | 20 | 活性污泥 | 0.02 | 填埋 |
| 10 | BLG | 124.8 | 70 | 355 | 厌氧-缺氧-好氧 | 3.41 | 填埋→绿化肥料 |
| 11 | MH | 5.05 | 80 | 15 | 活性污泥 | 0.26 | 农用 |
| 12 | NH | 1.96 | 25 | 12 | 活性污泥 | 0.07 | 填埋 |
| 13 | SJ | 3.5 | 50 | 22 | 厌氧-缺氧-好氧 | 0.14 | 填埋 |
| 14 | FX | 0.93 | 90 | 4 | 厌氧-缺氧-好氧 | 0.05 | 填埋→绿化肥料 |
| 15 | JS | 13 | 80 | 10 | 厌氧-好氧 | 0.03 | 焚烧 |

1) 部分数据来源于文献[12]

后的二氯甲烷作溶剂进行索氏抽提，加入活化铜片脱硫，抽提物浓缩后经硅胶/氧化铝混合柱分离净化、收集目标组分后浓缩定容，加入内标六甲基苯，进行GC/MS分析^[11]。

1.3.2 仪器分析

目标化合物的定性和定量通过Platform II色谱-质

谱联用仪完成。气相色谱仪为HP5890，质谱仪HP6890，色谱柱HP-5熔融石英毛细管柱(30 m × 0.25 mm × 0.25 μm)，载气高纯氮，流速1 mL·min⁻¹。手动无分流进样，进样体积为1 μL。进样口温度290℃，升温程序：100℃保留1 min，7 °C·min⁻¹升至160℃，再以3 °C·min⁻¹升至180℃，0.5 °C·min⁻¹升至190℃，最后以

$30^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升至 290°C 保留10 min. 质谱检测采用 EI-SIM模式, 离子源温度 180°C . 通过保留时间和特征离子定性; DPMI、ADBI、AHMI、ATII、HHCB、AHTN的特征离子和参照离子分别为191、206、168 u; 229、244、173 u; 229、244、187 u; 215、258、173 u; 243、258、173 u; 243、258、201 u; MX、MK的特征离子和参照离子分别为282、128、297 u; 279、294、128 u.

1.4 质量控制(QA/QC)

按照美国 EPA 的规范, 在每个样品中均加入了回收率指示物(D_3 -AHTN)以控制整个分析流程的回收率, 回收率范围 $76.70\% \pm 16.68\%$. 通过空白加标和基质加标, 控制整个分析流程中目标化合物的损失, 加标回收率($88.51\% \pm 3.55\%$)~($113.24\% \pm 4.82\%$). 通过空白实验确定实验室的背景干扰, 在空白实验中未检出目标化合物. 以信噪比5:1作为定性检测限(LOD), 信噪比10:1作为定量检测限(LOQ). DPMI、MX、MK、ATII、HHCB 和 AHTN 的 LOQ 为 $1 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, ADBI 和 AHMI 的 LOQ 为 $0.6 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$.

2 结果与讨论

2.1 含量特征和污染水平

污泥中合成麝香的存在非常普遍, HHCB 和

AHTN 在全部 15 个样品中被检出; 其次为 ADBI, 检出率 93%; AHMI 和 MK 的检出率则为 53%; 而 DPMI、ATII、MX 在所有的污泥样品中都未检测到. 15 个污泥样品中检测到 4 种(含 4 种)以上合成麝香物质的有 10 个; 其中 WS、QY、ZY、TP、QP 和 FX 样品中发现了 5 种合成麝香物质, 占总量的 40%. 这说明合成麝香在日化产品中的使用相当普遍, 使用的种类也很多. 不同采样点污泥的浓度差异很大, 干污泥中合成麝香的总含量在 $1.16 \sim 9.57 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间, HHCB 和 AHTN 的浓度变化范围分别为 $0.81 \sim 6.39 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $0.35 \sim 3.11 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 最大值与最小值相差一个数量级(图 2). MK 的检出率虽然低于 ADBI, 但浓度变化幅度($< \text{LOQ} \sim 0.22 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)高于 ADBI ($< \text{LOQ} \sim 0.04 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$), AHMI 的检出浓度最低($< \text{LOQ} \sim 0.01 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$). 污泥中合成麝香的浓度分布特征与国内日化产品中合成麝香的使用特点是一致的, 以 HHCB 和 AHTN 为主要加香物质, 而且目前仍有相当量的 MK 被使用^[13].

利用频度分布图计算了干污泥中 HHCB、AHTN、ADBI、AHMI 和 MK 的平均浓度(图 3), 分别为 2.92 、 1.56 、 0.024 、 0.004 和 $0.096 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 浓度大小的变化顺序与欧美地区报道的结果一致^[14, 15],

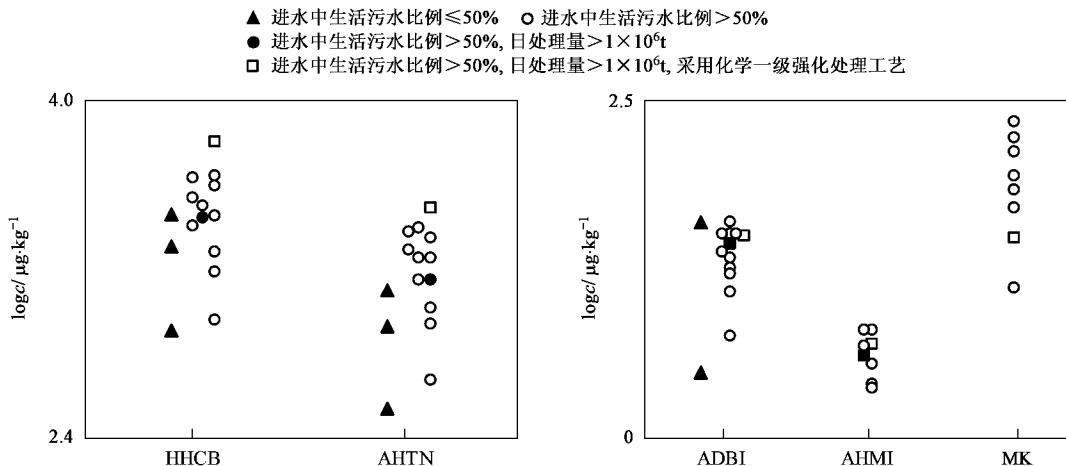


图 2 不同污水处理厂污泥中合成麝香的浓度

Fig. 2 Synthetic musk concentrations in sludges

$\text{HHCB} > \text{AHTN} > \text{MK} > \text{ADBI} > \text{AHMI}$, 但污染水平略低于欧洲. 英国 HHCB 和 AHTN 的平均含量分别为 27 和 $4.70 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; 德国为 8.26 和 $3.56 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$; 瑞士为 20.3 和 $7.3 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[16~18]; 香港地区为 7 和 $4.70 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^[10]; 总体来说上海污泥中合成麝香的含量处于较低水平. 这种差异与不同国家不同地区的生活习惯有关. 欧洲地区日化产品的加香量普遍

高于中国, 人均合成麝香的使用量较大^[17]; 而香港国际化程度较高, 地域狭小, 而且人口密度大, 相比上海地区而言生活污水中合成麝香的含量比较高.

污泥中合成麝香的浓度与进水中生活污水的比例、污水处理量以及处理工艺等因素有关^[10, 11, 15]. 生活污水是合成麝香污染的主要来源, 生活污水进水量大, 污泥中合成麝香的浓度相对就比较高. 上海地

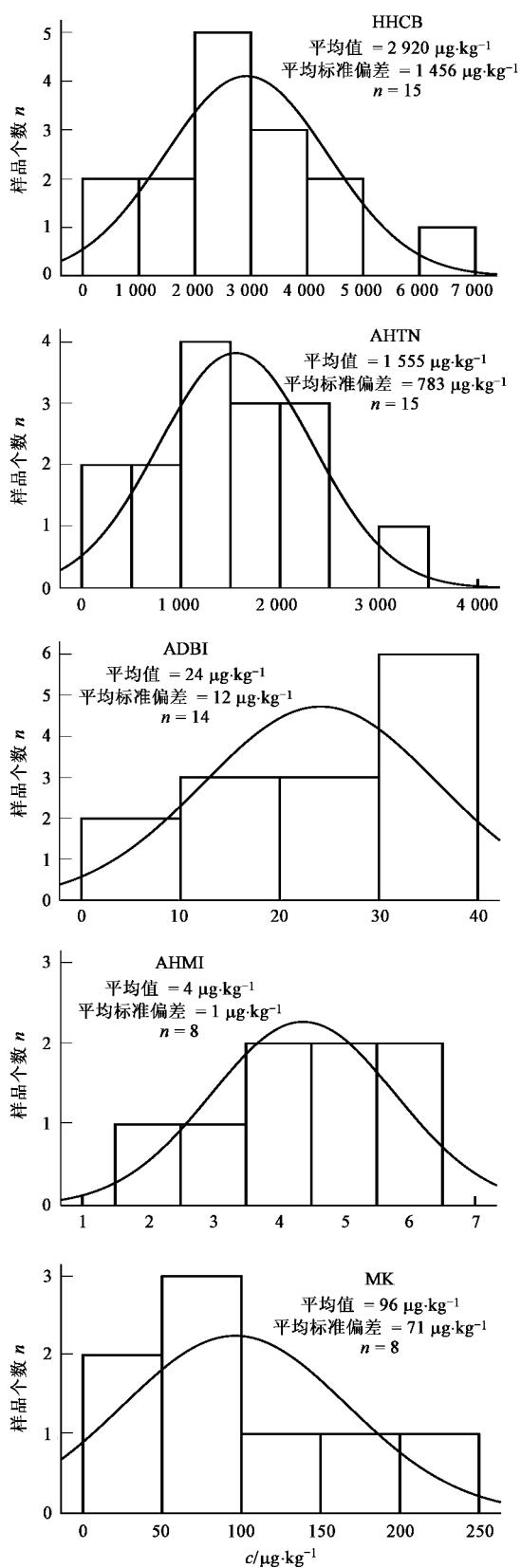


图3 频度分布图

Fig.3 Frequency distribution of HHCB, AHTN, ADBI, AHMI and MK

区生活污水接纳比例超过50%的污水厂,合成麝香

浓度(平均值: $5.00 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)明显高于其他采样点(平均值: $2.74 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$).日处理量大的污水厂污泥中合成麝香浓度也比较高,ZY 和 BLG 两家污水处理厂污水日处理量超过 10^6 t ,其污泥中合成麝香的污染水平明显偏高,这和国外的大量研究结果是一致的^[16~18].Shek 等^[10]和 Carballa 等^[20]提出污泥中合成麝香浓度与污水处理厂处理工艺有一定的关系,经化学一级强化处理的污泥往往能吸附更多的合成麝香,在上海地区不同污水处理厂污泥样品中也存在类似情况,采用化学一级强化处理工艺的 ZY 污泥中合成麝香的含量比较高.

2.2 分布特征和相互关系

污泥中不同合成麝香物质的分布情况有很大区别,HHCB 和 AHTN 是其中的主要成分,约占总量的 96%~100%(图 4).这和其他地区污泥中合成麝香的分布特征基本类似^[14,16~18].污泥中合成麝香的分布情况反映了相关物质的生产和使用模式.据统计,全世界合成麝香的年产量约为 8 000 t,其中 HHCB 和 AHTN 的市场占有率达到 93%^[19],HHCB 和 AHTN 的广泛使用导致了它们在污泥中的大量积累.污泥中 MK、ADBI、AHMI 为次要组分,分布情况为 MK > ADBI > AHMI,这些物质的分布特征和其他地区有一定区别.德国和英国地区污泥中 ATII 的浓度比较高,分别占总量的 1.0% 和 1.4%;AHMI 和 ADBI 在以上两地和瑞士地区污泥中的浓度为 AHMI > ADBI^[16~18].这说明对于次要加香型物质的使用不同国家和地区差异较大,欧洲国家对 ATII 的生产和使用较多,中国则较少;中国对硝基麝香 MK 的使用比较普遍,但欧洲则几乎不使用 MK.

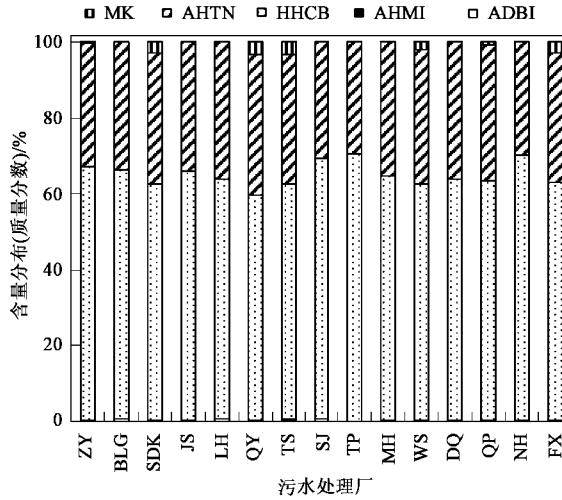


图4 合成麝香的分布特征

Fig.4 Distribution pattern in sludges

对检出率超过 70% 的 HHCB、AHTN 和 ADBI 进行了浓度相关性分析(图 5),结果表明 AHTN 和 HHCB 的浓度满足: $y = 0.526x + 19.019$, 两者的 Pearson 线性相关系数达到 0.978 6, 极显著线性相关 ($p < 0.001$). 它们和 ADBI 的 Pearson 线性相关系数分别为 0.731 1 和 0.751 7, 线性正相关 ($p < 0.05$). 这

说明污泥中 HHCB、AHTN、ADBI 具有共同的来源特征, 主要来源于进入生活污水的日化用品. 合成麝香在环境中传输的主要途径为日化产品→生活污水→生活污水收集系统→污水处理厂→污泥. HHCB 和 AHTN 的 $\log K_{ow}$ 比较大^[18], 在污水处理后会大量富集到污泥中.

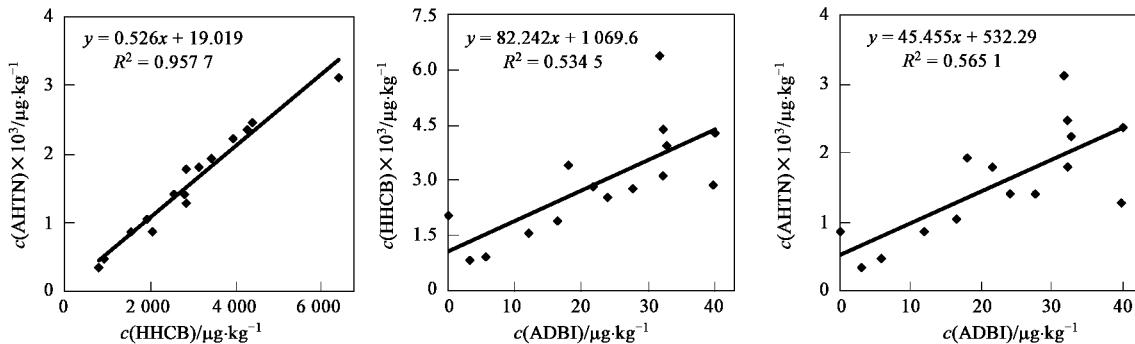


图 5 相关性分析 ($n = 15$)

Fig. 5 Correlation analysis ($n = 15$)

3 人均贡献和环境影响评估

3.1 人均贡献

根据污泥中合成麝香的平均浓度,估算上海地区 HHCB 和 AHTN 的人均年贡献量,计算公式如下:

$$L_{SP} = \frac{c_{ss} \times P_{ss}}{R \times n} \quad (1)$$

式中, L_{SP} 为人均年贡献值 [$\text{mg} \cdot (\text{a} \cdot \text{人})^{-1}$]; c_{ss} 为污水处理厂外排泥中的平均浓度 ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$); P_{ss} 为年产泥量 ($\text{kg} \cdot \text{a}^{-1}$); R 为平均去除率 (HHCB: 75%; AHTN: 80%)^[17,21]; n 为服务地区的总人口数.

上海地区 HHCB 和 AHTN 的人均年贡献值分别是 0.099 和 0.051 $\text{g} \cdot (\text{a} \cdot \text{人})^{-1}$, 远低于欧洲国家的人均贡献值, 是欧洲的 1/6 ~ 1/4^[17,19]. 但上海作为常住人口超过 1 800 多万的超大型城市, 每年通过污泥带入环境的合成麝香量还是非常可观的, 根据 2006 年的干污泥产量 $2.9 \times 10^5 \text{ t}$ 计算^[22], 每年大约有 845 kg、450 kg 的 HHCB 和 AHTN 随污泥进入环境. 大量持续排放的合成麝香将会给上海地区带来一定的环境负荷, 虽然合成麝香的环境毒性和生态效应还在进一步研究中, 但由此引起的环境污染问题值得关注.

3.2 环境影响评估

污泥中携带的合成麝香如果直接农用可能会影响土壤生态系统. Balk 等^[19]对农用土壤中微生物和蚯蚓等小型动物进行追踪分析后提出当土壤中

HHCB 和 AHTN 浓度分别超过 $320 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 时将严重影响土壤微生物及蚯蚓等小型动物的正常活动; 而且 AHTN 和 MK 在土壤中的残留时间可以达到 1 年^[23]. 上海污泥中 HHCB 和 AHTN 的污染水平为 2.92 、 $1.56 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 是最低影响浓度的 5 ~ 9 倍, 如果直接农用或者作为绿化介质肥料使用, 可能会对土壤的微生态环境造成较长时间的不利影响; 污泥中的合成麝香通过雨水冲刷和淋溶作用进入水体还会引起水体环境负荷的增加, 应引起重视.

4 结论

(1) 上海地区 15 家污水处理厂污泥中合成麝香的污染情况比较普遍, HHCB 和 AHTN 是其中的主要污染物, 平均浓度分别为 $2.92 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $1.56 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; 其次是 ADBI、AHMI 和 MK. 与其它国家相比, 上海地区污泥中合成麝香处于较低污染水平.

(2) 污泥中合成麝香的浓度与进水中生活污水的比例、污水处理量以及处理工艺等因素有关. 生活污水比例高、污水处理量大、处理工艺为化学一级强化处理工艺的污水处理厂合成麝香污染物的浓度较高.

(3) 污泥中 HHCB、AHTN 和 ADBI 的浓度之间存在显著相关性, 特别是 HHCB 和 AHTN, 说明它们具有共同的来源特征.

(4) 上海地区 HHCB 和 AHTN 的人均贡献值低于欧洲, 但大量持续排放的污泥仍会带来相当的环境负

荷,污泥中 HHCB 和 AHTN 浓度严重超过了影响土壤微生物和小型动物的最低浓度,直接农用可能会对土壤的微生态环境造成较长时间的不利影响。

参考文献:

- [1] Nakata H, Sasaki H, Takemura A, et al. Bioaccumulation, Temporal Trend, and Geographical Distribution of Synthetic Musks in the Marine Environment [J]. Environ Sci Technol, 2007, **41**: 2216-2222.
- [2] Wan Y, Wei Q W, Hu J Y, et al. Levels, Tissue Distribution, and Age-Related Accumulation of Synthetic Musk Fragrances in Chinese Sturgeon (*Acipenser sinensis*): Comparison to Organochlorines [J]. Environ Sci Technol, 2007, **41**: 424-430.
- [3] Kannan K, Reiner J L, Yun S H, et al. Polycyclic musk compounds in higher trophic level aquatic organisms and humans from the United States [J]. Chemosphere, 2005, **61**: 693-700.
- [4] Artola-Garcieno E, Borkent I, Joop L M, et al. Removal of Two Polycyclic Musks in Sewage Treatment Plants: Freely Dissolved and Total Concentrations [J]. Environ Sci Technol, 2003, **37**: 3111-3116.
- [5] Schmeiser H H, Gminski R, Mersch-Sundermann V. Evaluation of health risks caused by musk ketone [J]. Int J Hyg Environ Health, 2001, **203**: 293-299.
- [6] Gatermann R, Hellou J, Hiihnerfuss H, et al. Polycyclic and nitro musks in the environment: a comparison between Canadian and European aquatic biota [J]. Chemosphere, 1999, **38**(14): 3431-3441.
- [7] Sommer C. The Handbook of Environmental Chemistry [M]. Berlin: Springer Berlin/Heidelberg, 2004, 1-16.
- [8] Bester K. Retention characteristics and balance assessment for two polycyclic musk fragrances (HHCB and AHTN) in a typical German sewage treatment plant [J]. Chemosphere, 2004, **57**: 863-870.
- [9] Terres T A, Herrmann N, Bonerz M, et al. A rapid method to measure the solid-water distribution coefficient (K_d) for pharmaceuticals and musk fragrances in sewage sludge [J]. Water Res, 2004, **38**: 4075-4084.
- [10] Shek W M, Murphy M B, James C W, et al. Synthetic polycyclic musks in Hong Kong sewage sludge [J]. Chemosphere, 2008, **71**: 1241-1250.
- [11] Zeng X Y, Sheng G Y, Xiong Y, et al. Determination of polycyclic musks in sewage sludge from Guangdong, China using GC-EI-MS [J]. Chemosphere, 2005, **60**: 817-823.
- [12] <http://lhj.sh.gov.cn:7002/lhj/fileDownload.do?attachmentId=509001> [EB/OL].
- [13] Zhang X L, Yao Y, Zeng X Y, et al. Synthetic musks in the aquatic environment and personal care products in Shanghai, China [J]. Chemosphere, 2008, **72**: 1553-1558.
- [14] Horii Y, Reiner J, Bommamma G, et al. Occurrence and fate of polycyclic musks in wastewater treatment plants in Kentucky and Georgia, USA [J]. Chemosphere, 2007, **68**: 2011-2020.
- [15] Herren D, Berset J D. Nitro musks, nitro musk amino metabolites and polycyclic musks in sewage sludges Quantitative determination by HRGC-ion-trap-MS/MS and mass spectral characterization of the amino metabolites [J]. Chemosphere, 2000, **40**: 565-574.
- [16] Stevens J, Northcott G, Stern G, et al. PAHs, PCBs, PCNs, Organochlorine Pesticides, Synthetic Musks, and Polychlorinated *n*-Alkanes in U. K. Sewage Sludge: Survey Results and Implications [J]. Environ Sci Technol, 2003, **37**: 462-467.
- [17] Kupper T, Berset J D, Etter-Holzer R, et al. Concentrations and specific loads of polycyclic musks in sewage sludge originating from a monitoring network in Switzerland [J]. Chemosphere, 2004, **54**: 1111-1120.
- [18] Heberer T. Tracking persistent pharmaceutical residues from municipal sewage to drinking water [J]. Journal of Hydrology, 2002, **266**: 175-189.
- [19] Balk F, Ford R A. Environmental risk assessment for the polycyclic musks AHTN and HHCB II. Effect assessment and risk characterization [J]. Tox Lett, 1999, **111**: 81-94.
- [20] Carballa M, Omil F, Lema J M. Removal of cosmetic ingredients and pharmaceuticals in sewage primary treatment [J]. Water Res, 2005, **39**: 4790-4796.
- [21] Simonich S, Federle T W, Eckhoff W S, et al. Removal of fragrance materials during US and European wastewater treatment [J]. Environ Sci Technol, 2002, **36**: 2839-2847.
- [22] 上海市政设计院.上海市污泥处理处置专项规划[R].2006.
- [23] Difrancesco A, Chiu P, Standley, et al. Dissipation of Fragrance Materials in Sludge-Amended Soils [J]. Environ Sci Technol, 2004, **38**: 194-201.