

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第1期

Vol.38 No.1

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

南京北郊冬季挥发性有机物来源解析及苯系物健康评估	张玉欣, 安俊琳, 林旭, 王俊秀, 师远哲, 刘静达 (1)
南京冬季重污染过程中黑碳气溶胶的混合态及粒径分布	蒋磊, 汤莉莉, 潘良宝, 刘丹彤, 花艳, 张运江, 周宏仓, 崔玉航 (13)
基于 GAM 模型分析影响因素交互作用对 PM _{2.5} 浓度变化的影响	贺祥, 林振山 (22)
模拟烹饪油烟的粒径分布与扩散	李双德, 徐俊波, 莫胜鹏, 李文辉, 高佳佳, 曹亚裙, 陈运法 (33)
基于光谱分析仪的通量-梯度法测量小型池塘水-气界面温室气体交换通量	赵佳玉, 张弥, 肖薇, 王伟, 吴红艳, 张圳, 肖启涛, 胡诚, 于洲, 曹正达, 徐敬争, 刘寿东, 李旭辉 (41)
闽江口短叶茳茅 + 芦苇沼泽湿地大、小潮日土壤间隙水溶解性 CH ₄ 与 CO ₂ 浓度日动态	谭立山, 杨平, 何露露, 黄佳芳, 胡智强, 全川 (52)
河南鸡冠洞 CO ₂ 季节和昼夜变化特征及影响因子比较	张萍, 杨琰, 孙喆, 梁沙, 张娜, 田宁, 李建仓, 凌新有, 张志钦 (60)
蠡湖表层沉积物荧光溶解性有机质 (FDOM) 荧光光谱特征	陈俊伊, 王书航, 姜霞, 黄晓峰, 赵丽 (70)
滇池沉积物有机质沉积特征与来源解析	韩秀秀, 黄晓虎, 余丽燕, 杨浩, 黄昌春, 黄涛, 余艳红, 罗玉 (78)
紫色土小流域浅层井水中胶体颗粒的季节变化	张维, 唐翔宇, 鲜青松 (87)
太湖湖滨带春季悬浮物沉降特征与水体营养盐响应	祁闯, 王国祥, 吴馨婷, 许晓光, 韩睿明, 吴松峻 (95)
基于 LDI 的土地利用类型与湿地水质的相关性: 以苏州太湖三山岛国家湿地公园为例	杨朝辉, 苏群, 陈志辉, 白俊武, 钱新强, 张志敏 (104)
基于分位数回归的洱海藻类对氮、磷及水温的响应特征	陈小华, 李小平, 钱晓雍, 胡双庆 (113)
深水型水库藻形态功能组 (MBFG) 的季节演替特征	杨毓, 卢金锁, 张颖 (121)
三峡库区水体中可溶性 C、N 变化及影响因素	范志伟, 郝庆菊, 黄哲, 柴雪思, 江长胜 (129)
三峡库区古夫河小流域氮磷排放特征	华玲玲, 李文超, 翟丽梅, 崔超, 刘宏斌, 任天志, 张富林, 雷秋良 (138)
黄土高原坝系流域干湿季交替下氮输出特征及其源解析: 以羊圈沟为例	贾璐杰, 高扬, 陈维梁, 郝卓, 汪亚峰, 陈利顶 (147)
5 种沉水植物的氮、磷吸收和水质净化能力比较	金树权, 周金波, 包薇红, 陈君, 李丹丹, 李洋 (156)
骆马湖表层水体中 32 种 PPCPs 类物质的污染水平、分布特征及风险评估	张芹, 张圣虎, 汪贞, 郭敏, 刘济宁, 石利利, 古文 (162)
大冶湖表层沉积物-水中多环芳烃的分布、来源及风险评价	张家泉, 胡天鹏, 邢新丽, 郑煌, 张丽, 占长林, 刘红霞, 肖文胜, 祁士华 (170)
pH 和络合剂对五价锑在水钠锰矿和水铁矿表面吸附行为的影响	王华伟, 李晓月, 李卫华, 孙英杰 (180)
紫外辐射对高岭土混凝过程的影响机制	王文东, 王昌鑫, 刘荟, 韩雨 (188)
水环境中溶解态腐殖酸对锌抗甲状腺激素干扰效应的影响	艾扬, 孔东东, 于畅, 沈扬, 李剑 (195)
污水中常见违禁药物分析方法优化及验证	高婷婷, 杜鹏, 徐泽琼, 杨军, 张华方, 李喜青 (201)
阴极电场增强活性炭纤维-臭氧体系去除水中硝基苯	赵纯, 张帅, 周宇, 李琨, 周炜, 黎鹏宇, 杨广, 孙志华, 郑怀礼 (212)
碳纳米管改性 PVDF 中空纤维超滤膜处理二级出水抗污染性能研究	王利颖, 石洁, 王凯伦, 关羽琪, 郭瑾 (220)
曝气生物滤池 (Fe ²⁺) - 臭氧组合工艺强化处理石化二级出水	徐敏, 吴昌永, 周岳溪, 郭明昆, 王翼 (229)
4 种反应器中厌氧氨氧化菌完整梯烷脂的特异性	王晗, 方芳, 李凯, 邢晖, 郭劲松, 陈猷鹏, 曾前松 (238)
疏自养填充床反应器降解水中高浓度高氯酸盐的特性及菌群分析	张超, 陶华强, 宋圆圆, 逯彩彩, 郭延凯, 廉静, 郭建博 (247)
CANON 在 SBAF 中的快速启动及其微生物特征	刘竹寒, 岳秀, 于广平, 金腊华, 唐嘉丽, 吉世明 (253)
高浓度游离氨冲击负荷对生物硝化的影响机制	季民, 刘灵婕, 翟洪艳, 刘京, 苏晓 (260)
有机物对亚硝化颗粒污泥中功能菌活性的影响	王书永, 钱飞跃, 王建芳, 沈耀良 (269)
一种新型生物膜法除磷工艺中聚磷菌的富集培养过程	郑莹, 潘杨, 周晓华, 廖炬弘, 孟璇, 夏健伟 (276)
应用于矿山修复的高效菌株鉴定与溶岩机制: 基于增强回归树分析	吴雁雯, 张金池, 郭晓平, 刘鑫 (283)
镉对铜绿假单胞菌降解水体中壬基酚的影响	史广宇, 程媛媛, 施维林 (294)
华北平原不同农田管理措施对于土壤碳库的影响	石小霞, 赵诣, 张琳, 吴文良, 孟凡乔 (301)
缙云山柑橘林土壤微生物磷脂脂肪酸 (PLFAs) 及酶活性的季节变化特征	李南洁, 曾清苹, 何丙辉, 周飞 (309)
中条山十八河铜尾矿库微生物群落组成与环境适应性	刘晋仙, 李鑫, 景炬辉, 贾彤, 刘兴港, 王小云, 柴宝峰 (318)
安徽省部分城市土壤中全氯化物空间分布及来源解析	李法松, 倪卉, 黄涵宇, 徐志兵, 张倩, 李长霞, 黄文秀, 金陶胜 (327)
不同温度制备的生物质炭对土壤有机碳及其组分的影响: 对土壤活性有机碳的影响	赵世翔, 于小玲, 李忠徽, 杨艳, 刘丹, 王旭东, 张阿凤 (333)
水分管理模式与土壤 Eh 值对水稻 Cd 迁移与累积的影响	田桃, 曾敏, 周航, 徐璐, 杨文强, 辜娇峰, 邹佳玲, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (343)
砒、镉单一及复合污染胁迫下土壤生态功能稳定性的影响机制	陈欣瑶, 杨惠子, 李敏, 牛晓丛, 苏雨轩, 张园 (352)
生物炭、蒙脱石及其混合添加对复合污染土壤中重金属形态的影响	高瑞丽, 唐茂, 付庆灵, 郭光光, 李晚, 胡红青 (361)
某电镀厂六价铬污染土壤还原稳定化试剂筛选与过程监测	李培中, 吕晓健, 王海见, 杨苏才, 魏文侠, 宋云 (368)
多孔 SBA-15 颗粒对 Cd(II) 的吸附缝合及其对土壤 Cd(II) 的修复潜力	黄辉, 宁西翠, 郭瞻宇, 郭堤, 张增强, 李荣华, 王力, Ali Amjad (374)
卤系阻燃剂在东江鱼体中的生物富集	何明靖, 杨婷, 李琦, 王登祥, 赵佳渊 (382)
广州市蔬菜中重金属污染特征研究与评价	陈志良, 黄玲, 周存宇, 钟松雄, 王欣, 戴玉, 蒋晓璐 (389)
蔬菜镉 (Cd) 富集因子变化特征及其影响因素	杨阳, 李艳玲, 陈卫平, 王美娥, 彭驰 (399)
施用污泥堆肥品对土壤和植物总汞及甲基汞的影响	余亚伟, 杨雨洽, 张成, 易建婷, 安思危, 王定勇 (405)
大气臭氧污染对冬小麦气孔吸收通量的影响机制及其时空格局	赵辉, 郑有飞, 曹嘉晨, 徐静馨, 黄积庆, 袁月 (412)
《环境科学》征稿简则 (12) 《环境科学》征订启事 (194) 信息 (21, 51)	

骆马湖表层水体中 32 种 PPCPs 类物质的污染水平、分布特征及风险评估

张芹, 张圣虎, 汪贞, 郭敏, 刘济宁*, 石利利, 古文

(环境保护部南京环境科学研究所, 国家环境保护农药环境评价与污染控制重点实验室, 南京 210042)

摘要: 为评价骆马湖水体中药品和个人护理品 (PPCPs) 的污染水平、空间分布特征及生态风险, 利用高效液相色谱-串联质谱测定了骆马湖水体中 22 个采样点的 32 种 PPCPs。结果表明, 骆马湖表层水体中共检出了 23 种 PPCPs, 总浓度范围为 $892 \sim 1\,536 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 其中浓度最高的为诺氟沙星 ($256 \sim 707 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$), 其次是酮洛芬 ($85 \sim 438 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)、安赛蜜 ($101 \sim 290 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) 及萘普生 ($1.9 \sim 112 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)。不同采样位点的 PPCPs 浓度存在一定的空间差异, 呈现湖东北部地区较高, 西南部地区较低的趋势。房亭河入湖口处 PPCPs 浓度较高, 崮山闸出湖口处浓度较低。对 13 种药物类 PPCPs 生态风险评价结果表明, 诺氟沙星 RQ_s 为 $0.26 \sim 0.72$, 对于骆马湖水生生态系统表现为中风险, 吉非罗齐在大部分采样点 $RQ_s > 0.01$, 表现为低风险, 其余的化合物 $RQ_s < 0.01$ 未表现出生态环境风险。采用简单叠加模型计算 PPCPs 的联合毒性风险熵范围为 $0.29 \sim 0.75$, 整体上看, 骆马湖 PPCPs 对于水生生物表现出中风险。对 6 种 PPCPs 的人体健康风险结果表明, RQ_s 均小于 1, 表明骆马湖 PPCPs 对人体健康无直接风险。

关键词: 药品和个人护理品 (PPCPs); 骆马湖; 地表水; 生态风险评估; 健康风险评估; 污染

中图分类号: X131.2; X52; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)01-0162-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201606184

Pollution Level, Distribution Characteristics and Risk Assessment of 32 PPCPs in Surface Water of Luomahu Lake

ZHANG Qin, ZHANG Sheng-hu, WANG Zhen, GUO Min, LIU Ji-ning*, SHI Li-li, GU Wen

(Key Laboratory of Pesticide Environmental Assessment and Pollution Control of National Environmental Protection, Nanjing Institute of Environmental Sciences, Ministry of Environmental Protection, Nanjing 210042, China)

Abstract: A total of 22 water samples collected from Luomahu Lake were determined using high performance liquid chromatography tandem mass spectrometry (HPLC-MS/MS) to evaluate the pollution level, spatial distribution and ecological risk of 32 PPCPs. 23 PPCPs were detected in surface water of Luomahu Lake and the total concentrations of 22 samples were $892 \sim 1\,536 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$. The concentration of norfloxacin ($256 \sim 707 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) was the highest among the detected PPCPs, followed by ketoprofen ($85 \sim 438 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$), acesulfame ($101 \sim 290 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) and naproxen ($1.9 \sim 112 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$). Spatial differences were found in concentrations of PPCPs in various sampling sites. Concentrations of PPCPs in northeast of Luomahu Lake were higher than those of southwest. Concentration of PPCPs in Fangtinghe River was high and that of Zhangshanzha River was relatively low. The risk assessment of 13 pharmaceutical PPCPs showed that risk quotients (RQ_s) of norfloxacin were $0.26 \sim 0.72$, posing medial risk to aquatic ecosystem. Gemfibrozil posed low ecological risks with $RQ_s > 0.01$ in most sampling sites. RQ_s of other 11 PPCPs were less than 0.01, posing no ecological risks. The combined risk quotients of 12 PPCPs in water of Luomahu Lake were $0.29 \sim 0.75$, indicating that those compounds posed an medial risk to aquatic ecosystem. Human health risk assessment showed that the RQ_s were less than one for 6 selected PPCPs, indicating that these compounds did not appear to pose an appreciable risk to human health by potential environmental exposure from drinking water.

Key words: pharmaceuticals and personal care products (PPCPs); Luomahu Lake; surface water; ecological risk assessment; human health risk assessment; pollution

药品和个人护理品 (pharmaceuticals and personal care products, PPCPs) 涵盖所有人用和兽用的医药品、诊断、保健品、麝香、化妆品、遮光剂、消毒剂以及在 PPCPs 生产制造中添加的组分, 如赋形剂、防腐剂等, 包含了很多近年来环境高关注的新型污染物^[1]。大部分 PPCPs 类物质具有生物活性、高极性、光学活性^[2]。PPCPs 类物质持续进入环境, 在地表水、饮用水、土壤、底泥等环境介质中普遍检出, 通常在 $\text{ng} \cdot \text{L}^{-1} \sim \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 水平^[3~6], 影响水

生生物等的正常生命活动, 并通过食物链最终影响到人类健康^[7]。如长期滥用抗生素类 PPCPs 会导致动物体内及环境中耐药菌 (ARB) 大量繁殖, 诱导产生抗生素抗性基因 (ARGs), 一旦传递进入人类致病

收稿日期: 2016-06-27; 修订日期: 2016-08-22

基金项目: 科技部科技基础性工作专项 (2015FY110900); 国家自然科学基金项目 (21407055); 江苏省自然科学基金项目 (BK20140115)

作者简介: 张芹 (1987~), 女, 硕士, 助理研究员, 主要研究方向为环境化学, E-mail: zhangqin@nies.org

* 通信作者, E-mail: ljin@nies.org

菌中,将降低感染性疾病治愈的可能,对人类健康产生严重影响^[8,9]. 我国是 PPCPs 生产与使用大国,对 PPCPs 物质在环境中的分布及污染开展调查具有十分重要的意义. 目前关于 PPCPs 污染水平的研究多集中在生活污水处理厂^[6,10,11],地表水作为污染物的重要的汇,近年来也有相关报道. 徐维海^[12]报道了珠江广州河段较为严重的抗生素药物类污染,含量大多在几百 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. 南方某水库水体中检出了 8 种抗生素,浓度范围在 $1.20 \sim 130.00 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[13]. 同时,北京、常州和深圳河流中检出了 28 种 PPCPs^[14]. 表明抗生素药物在水环境中的普遍存在.

骆马湖位于江苏省北部,是江苏省四大湖泊之一,也是国家南水北调线路水库之一. 本研究使用高效液相色谱-串联三重四级杆质谱 (HPLC-MS/MS) 对于骆马湖中的 32 种 PPCPs 进行了测定,对其

分布特征及生态风险进行了分析. 本研究对于了解我国地表水中 PPCPs 的赋存特征以及生态风险具有重要意义,以期为国家环境部门 PPCPs 管控提供数据支持.

1 材料与方法

1.1 仪器与试剂

HPLC-MS/MS (LC: Agilent Technologies 1290 Infinity; MS/MS: AB SCIEX QTRAP 4500, 美国); 色谱柱 (Poroshell 120 EC-C18 $2.7 \mu\text{m}$ $2.1 \times 75 \text{ mm}$ Column, Agilent Technologies); 旋转蒸发仪 (BUCHI, 瑞士); 电子天平 (MS105DU, 瑞士); 氮吹仪 (ANPEL, 安谱); 固相萃取装置 (Waters, 美国); HLB 固相萃取柱 (5 mg, 6cc, Waters, 美国); 甲醇 (色谱纯, MERCK, 德国). 32 种 PPCPs 标准品均购自百灵威科技,纯度均 $>99.0\%$, 具体的物质名称见表 1.

表 1 32 种 PPCPs 的质谱测定条件
Table 1 MS parameters of 32 PPCPs

物质	CAS 号	母离子	子离子	去簇电压 (DP)	入口电压 (EP)	碰撞能量 (CE)	出口电压 (CXP)
红霉素	114-07-8	734.5	576.5; 522.5	72	10	27; 31	10
氯霉素	56-75-7	322.8	152.0	-56	-10	-21	-10
布洛芬	15687-27-1	204.7	159.0	-46	-10	-9	-10
酮洛芬	22071-15-4	252.9	209.0; 196.9	-28	-10	-12; -11	-10
萘普生	22204-53-1	229.0	184.9; 170.2	-40	-10	-10; -17	-7
水杨酸	69-72-7	136.8	93.0	-68	-10	-24	-10
氧氟沙星	82419-36-1	362.2	318.1; 261.1	35	10	25; 36	10
阿替洛尔	29122-68-7	267.1	190.1; 145.1	31	10	29; 42	10
诺氟沙星	70458-96-7	318.5	256.4	36	10	32	6
卡马西平	298-46-4	237.2	194.2	76	10	25	7
克拉霉素	81103-11-9	748.5	590.6; 558.4	74	10	26; 28	17; 28
罗红霉素	80214-83-1	837.6	679.6	75	10	25	8.7
甲氧苄啶	738-70-5	291.1	229.9; 123.1	62	10	35; 31	12; 11
阿奇霉素	83905-01-5	749.6	591.6	134	10	39	21
吡哌美辛	53-86-1	355.8	311.7; 296.7	-29	-10	-10; -23	-8; -6
洛美沙星	98079-51-7	352.2	334.2; 265.2	116	10	24; 34	10; 10
菲诺洛芬	31879-05-7	241.0	197.0	-46	-10	-12	-9
吉非罗齐	25812-30-0	249.1	120.8	-42	-10	-24	-5
苯扎贝特	41859-67-0	360.0	274.0; 153.9	-74	-10	-23; -42	-10
吉他霉素	1392-21-8	772.4	558.4; 215.1; 174.4	150	10	37	7
氟苯尼考	73231-34-2	355.9	336.2; 184.6	-68	-10	-14; -22	-7; -6
恩诺沙星	93106-60-6	360.2	316.2; 244.7	40	8	27; 35	12
磺胺二甲嘧啶	122-11-2	310.7	244.9; 156	90	10	27	7
磺胺醋酰	144-80-9	215.0	197.0; 156.0	127; 59	10	9; 16	7
磺胺甲噻唑	57-68-1	279.0	186; 124.10	70	10	21; 28	7
磺胺吡啶	144-83-2	250.1	156.0; 108.2	70	10	19; 34	7.4; 3.4
磺胺甲基恶唑	723-46-6	252.1	155.9; 92.0	-59	-10	-16; -36	-10
安赛蜜	33665-90-6	161.7	81.9	-39	-10	-21	-9.8
吐纳麝香	21145-77-7	259.2	175.2	77	10	20	12
三氯卡班	101-20-2	312.9	160.0; 125.8	-48	-10	-17; -29	-7
阿斯巴甜	22839-47-0	292.9	199.8; 260.9	-65	-10	-18; -13	-6; -6

1.2 样品采集

骆马湖地处江苏省北部,地跨宿迁、徐州市,共辖9个乡镇57个行政村。湖区北起堰头村(徐州市)圩堤,南至洋河滩闸口(宿迁市),直线长27 km,西连中运河(宿迁段),东临马陵山南麓——嶂山岭(徐州市),平均宽13 km,总面积375 km²。地理位置在北纬34°00′~34°14′,东经118°06′~118°16′,位于陇海经济带、沿海经济带、沿江经济带交叉辐射区。本研究于2016年4月6~7日对于骆马湖表层水进行了采集,共设置22个采样点(14个湖体样点,6个入湖河流样点、2个出湖河流样点),采样点的分布如图1,表层水采样点的采集深度为100~150 cm。

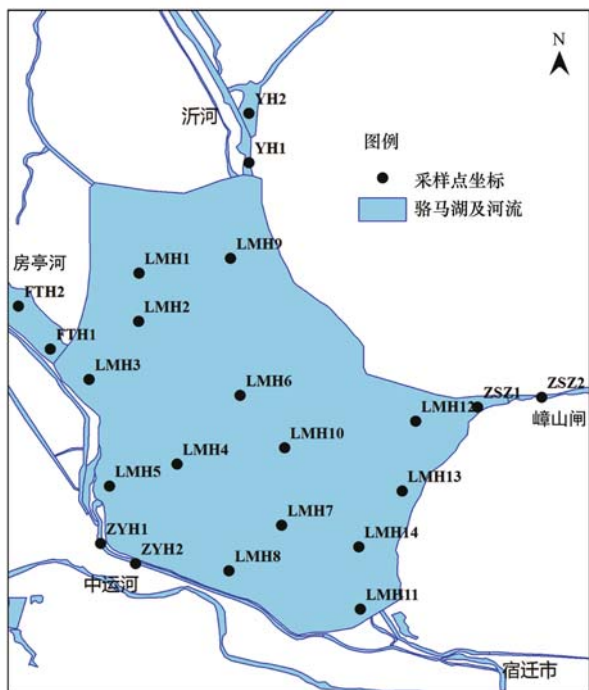


图1 骆马湖采样点分布示意

Fig. 1 Location of sampling sites in Luomahu Lake

1.3 样品前处理

所采水样预先用盐酸调节pH 2~4左右。将水样过0.45 μm孔径玻璃纤维膜后,准确量取500 mL抽滤后的水样过预先用甲醇活化的Oasis HLB小柱进行固相萃取,上样速度约为5 mL·min⁻¹。上样后,用10 mL的超纯水淋洗HLB小柱,并在负压条件下抽真空30 min使其干燥,用10.0 mL甲醇洗脱,洗脱液经氮吹至干,然后用甲醇定容到1 mL,涡旋振荡1 min,用HPLC-MS/MS分析。

1.4 样品测定

质谱测定条件:采用电喷雾离子源(ESI)、负离子模式和正离子模式、多反应离子监测扫描定量分

析目标物。HPLC条件:柱温:30℃;流速0.3 mL·min⁻¹;流动相:正离子模式使用乙腈(A)和0.1%甲酸/水(体积比)(B),负离子模式使用乙腈和0.2%氨水/水(体积比),梯度洗脱条件如表2所示,质谱测定条件如表1所示。

表2 32种PPCPs的正负离子模式下的梯度洗脱条件

Table 2 Gradient elution condition of 32 PPCPs

in positive and negative ion modes					
时间 /min	正离子		时间 /min	负离子	
	A/%	B/%		A/%	B/%
0	90	10	0	99	1
2	90	10	2	99	1
3	70	30	3	70	30
5	70	30	6	60	40
10	65	35	9	60	40
12	60	40	15	40	60
15	50	50	19	20	80
18	40	60	24	20	80
22	30	70	28	1	99
24	20	80	33	1	99
26	90	10	33.1	99	1
28	90	10	35	99	1

1.5 质量保证和控制(QA/QC)

实验的准确性由回收率实验和空白实验保证。在不含目标化合物的空白水样中添加PPCPs标样溶液,按照前述方法对样品进行前处理和仪器分析,采用外标法进行定量分析。水样中PPCPs回收率为85.6%~106%,相对标准偏差为5.9%~9.8%,各目标化合物的检出限为0.5~8.6 ng·L⁻¹。

空白实验的目的是识别并定量采样、前处理及仪器分析等阶段目标化合物的污染,包括现场空白和程序空白。采样时,将500 mL高纯水置于棕色玻璃采样瓶中,携带至取样现场,采样时暴露于周围环境,采样结束后,与实际水样一同运送至实验室,测定其中目标PPCPs的浓度,该样品为现场空白。实验室分析前,再准备一定量的高纯水,测定其中目标PPCPs的浓度,作为程序空白。实际样品测试时,每批除实际水样和1个程序空白外,还包括1个以高纯水为介质的加标样品,以监测该批样品各PPCPs在前处理过程中的回收率情况。此外,每点水样采集两份,进行平行双样测定,以保证实验测定的精密性。

1.6 风险评价方法

1.6.1 生态风险评价

根据欧盟关于环境风险评价的技术指导,采用风险商值法(risk quotient, RQ)评估骆马湖水环境中环境风险等级。风险商值RQ的计算公式如下,

即实际测定浓度 (measured environmental concentration, MEC) 和无效应浓度 (predicted no effect concentration, PNEC) 之间的比值, 见式(1)。

$$RQ = MEC/PNEC \quad (1)$$

PNEC 值通常由实验所得的急性和慢性毒性数据 (LC₅₀、EC₅₀、NOEC 等) 除以评估因子 (assessment factors, AF) 得到, 毒性数据可通过 ECTOX 查询获得, AF 的取值范围在 10 ~ 1 000。根据 RQ 值的大小, 分为 3 个环境风险等级, 即 RQ 值在 0.01 ~ 0.1 间为低环境风险, 在 0.1 ~ 1.0 间为中等环境风险, 大于 1 为高环境风险^[15]。水环境中的 PPCPs 不是单一存在的, 少量研究表明, 水环境中多种 PPCPs 共存时, 环境危害作用会因共存而加强^[16,17]。因此本文采用 Quinn 等^[18]报道的简单叠加模型 [式(2)] 计算 PPCPs 的联合毒性风险熵 (RQ_{sum}), 其中 RQ_i 为第 *i* 个 PPCP 的 RQ。

$$RQ_{sum} = \sum RQ_i \quad (2)$$

1.6.2 人体健康风险评价

水源水中的抗生素对人体健康风险评价是基于风险熵的方法, 并同时考虑对不同年龄段人群的风险, 若风险熵大于 1, 则认为是有风险^[19], 具体的计算方法见公式(3)及(4)。

$$RQ_s = c_s/DWEL \quad (3)$$

$$DWEL = \frac{ADI \times BW \times HQ}{DWI \times AB \times FOE} \quad (4)$$

式中, c_s 是 PPCPs 的检出浓度 ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); DWEL 是饮用水当量值 ($\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$); ADI 是日均可接受摄入量 [$\mu\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$]; BW 是人均体重 (kg); HQ 是最高风险, 按 1 计算; DWI 是每日饮水量 ($\text{L} \cdot \text{d}^{-1}$); AB 是胃肠吸收率, 按 1 计算, FOE 是暴露频率 ($350 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1}$), 按 0.96 计算。BW 和 DWI 的相关数据采用美国环保署 (EPA) 推荐值^[20]。

2 结果与讨论

2.1 水体中 32 种 PPCPs 的污染水平

骆马湖水体中 32 种 PPCPs 共检出 23 种, 包括 10 种抗生素类、5 种消炎止痛药类, 以及其他类药物 4 种; 2 种食品添加剂在所有样品中均有检出, 三氯卡班及吐纳麝香在所有样品中均有检出。各采样点总 PPCPs 浓度范围为 $892 \sim 1\,536 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 平均值为 $1\,148 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ (见图 2)。

32 种化合物浓度最高的为诺氟沙星, 占总 PPCPs 浓度的 20.3% ~ 51.4%, 其次是酮洛芬 (8.43% ~ 34.8%)、安赛蜜 (7.29% ~ 23.9%)、蔡

普生 (6.07% ~ 10.1%)。4 种化合物合计共占总 PPCPs 的 59.1% ~ 79.1%。各采样点呈现较为相似的分布特征。

17 种抗生素类药物的总浓度范围为 $378 \sim 831 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 其中红霉素、克拉霉素、罗红霉素、甲氧苄啶、阿奇霉素、磺胺二甲嘧啶、磺胺甲嘧啶及磺胺吡啶在所有采样点均低于定量限。诺氟沙星的浓度范围为 $256 \sim 707 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。徐维海等^[12]报道了珠江广州河段洪季和枯季的诺氟沙星分别为 $\text{nd} \sim 13 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $117 \sim 251 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 低于本研究。氯霉素在所有点的平均浓度为 $2.95 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 远低于徐维海等^[21]报道的 $11 \sim 266 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。洛美沙星在所有采样点均有检出, 浓度范围为 $28.4 \sim 2.5 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

6 种消炎止痛类药物的总浓度范围为 $264 \sim 676 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 平均值为 $387 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。6 种药物在所有采样点均有检出, 浓度最高的为酮洛芬, 浓度范围为 $85 \sim 438 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。其次为非诺洛芬及蔡普生, 平均浓度分别为 $98 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 及 $90 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

4 种其他类药物浓度较低, 其中吉非罗齐浓度范围为 $29 \sim 45 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 卡马西平在所有采样点均未检出, 阿替洛尔和苯扎贝特浓度较低, 处在几 $\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 的水平。王丹等^[22]报道了黄浦江水域的抗生素的含量, 其中苯扎贝特浓度水平为 $\text{nd} \sim 6 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 与本研究处于相似的水平, 卡马西平浓度为 $9 \sim 190 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 高于本研究。西班牙 Madrid 河被报道有较高的苯扎贝特浓度^[23], 为 $234 \sim 2\,315 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 远高于本研究, 这主要与不同的药物使用习惯有关。

两种食品添加剂中安赛蜜的浓度较高, 为 $101 \sim 290 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。安赛蜜是一种人工合成甜味剂, 人工甜味剂在污水处理设施中不能被完全去除, 因而随着污水处理厂的出水进入收纳水体^[24]。国内外很多研究结果表明, 安赛蜜是环境介质中主要检出的人工甜味剂, 比如 Scheurer 等^[25]对德国河流调查发现安赛蜜的浓度高达 $2 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 是其他甜味剂的 10 倍。瑞士格里芬湖检出了安赛蜜, 浓度为 $2.8 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ ^[26]。干志伟^[27]报道了海河中安赛蜜的浓度为 $1.6 \sim 7.6 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 均远高于本研究的水平。

三氯卡班是一种高效广谱的抗菌剂, 广泛应用于洗涤用品、化妆品、消毒剂等。因而随生活污水的排放而进入环境。骆马湖检测到的三氯卡班浓度为 $2.56 \sim 4.26 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 略高于王明泉等^[28]报道的南水北调山东受水区水源水 ($0.6 \sim 1.7 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)。合成麝香是一类广泛添加于各种个人护理用品的香

味合成有机物,是一种新型的环境污染物,代表性的为吐纳麝香。马莉等^[29]报道了太湖梅梁湾水体中吐纳麝香浓度为 $0.04 \sim 0.23 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。本研究中吐纳麝香浓度为 $10.4 \sim 19.6 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,与太湖相比处于

较高的水平,但远低于国外报道的合成麝香的浓度(德国 Hessen 地区河流 $3 \sim 299 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,意大利 Molgora 河 $97 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)^[30, 31],这主要与合成麝香在中国的使用量较少有关。

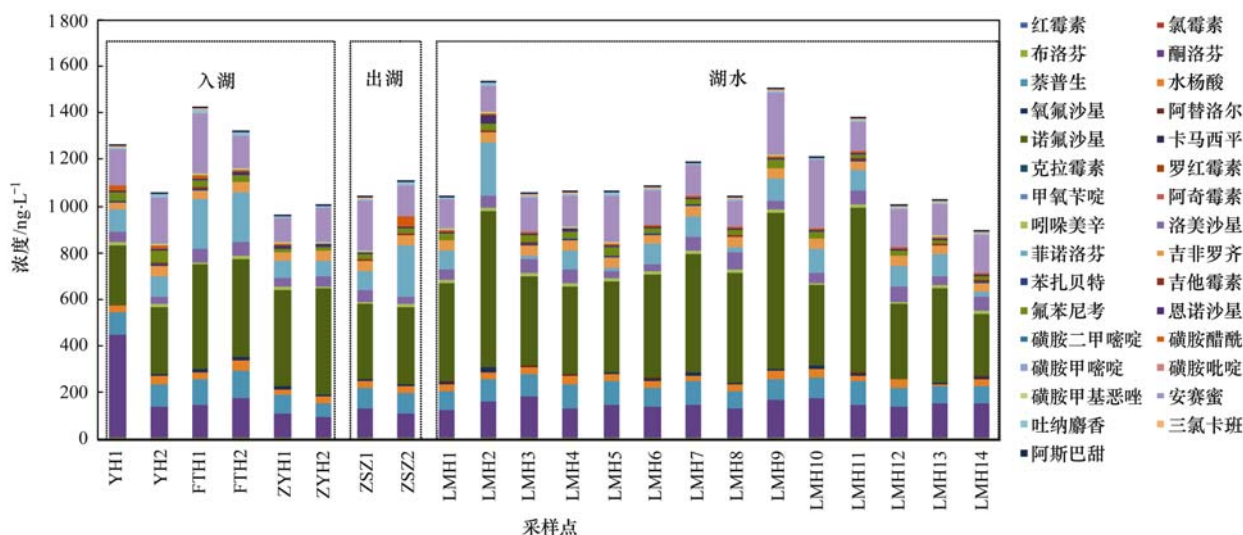


图2 骆马湖32种PPCPs的浓度水平和分布特征

Fig. 2 Concentration and distribution of 32 PPCPs in Luomahu Lake

2.2 水体中32种PPCPs的空间分布特征

骆马湖周围主要入湖河道包括:沂河、中运河、房亭河和韩庄运河,骆马湖洪水主要出路是自嶂山闸。本研究分别在沂河、中运河、房亭河及嶂山闸以及湖体分别进行了样品的采集。图1为骆马湖进湖、出湖及湖体各采样点PPCPs的含量分布。总体上看,不同采样位点的PPCPs浓度存在一定的空间差异,呈现湖东北部地区较高,南部地区较低的趋势。房亭河入口处PPCPs浓度较高(总浓度 $1370 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$),这可能是由于房亭河流经地区人口较为密集,药物使用较多、而房亭河主要流经的土山、议堂、碾庄镇等7个乡镇都没有集中污水处理厂,镇内的所有生活污水未经处理直接排入房亭河及其支流^[32],同时,房亭河区有各类排污口包括生活污水排放口、工业和生活废水口等,排入房亭河的生活污水为PPCPs的重要来源。在房亭河入湖口附近的LMH2检测到较高水平的PPCPs($1536 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)。沂河入湖口两采样点PPCPs与整体相比略高($1159 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$),该入湖口附近的LMH9也检测到了较高的PPCPs($1503 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)。中运河入湖口PPCPs较低,其附近的LMH4、LMH5、LMH8浓度也较低。另外,出湖口嶂山闸检测到的PPCPs处于较低的水平,这可能是由于进入湖体的PPCPs经过湖水的稀

释作用,同时,据报道,一些PPCPs容易吸附在有机质含量较高的悬浮颗粒物以及沉积物中^[33],骆马湖中存在的悬浮颗粒物对于一些物质的吸附以及蓄积作用可能也是出湖PPCPs浓度较低的原因。整体上看,湖体中的PPCPs分布与其附近的入湖口与出湖口保持较好的一致性,这表明入湖河流中PPCPs是湖体中PPCPs污染的主要来源。

2.3 生态风险评估

基于最坏情况考虑,RQs的计算采用筛选出的最敏感物种的PNEC。本文对于检出的药物类PPCPs进行了风险评估,其中吉他霉素、磺胺醋酸、酮洛芬、非诺洛芬及阿替洛尔未查到其毒性数据,因此对于其他13种药物类PPCPs进行了生态风险评估,其对应敏感物种的毒理数据见表3。

骆马湖的生态风险评估结果见图3。所有的13种药物类RQs均小于1,不具有高风险。诺氟沙星RQ为 $0.26 \sim 0.72$,均大于0.1,表现为中风险,说明其对于骆马湖水体中的相应的水生生物表现出中等的急性或慢性毒性风险。吉非罗齐在大部分采样点 $RQ > 0.01$,表现为低风险,表明了其对于水生生物较低的急性或慢性毒性风险。对于其他11种PPCPs, $RQs \leq 0.01$,说明其对于骆马湖的生态风险不显著。PPCPs的联合毒性风险熵范围为 $0.29 \sim$

表 3 13 种药物类 PPCPs 最敏感物种毒理数据

Table 3 Most sensitive species toxicity data of 13 pharmaceutical PPCPs						
PPCPs	最敏感物种	评价终点	毒性数据/ $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	评估因子	PNEC/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	文献
诺氟沙星	<i>Anabaena variabilis</i>	6d-NOEC	9.8	10	980	[34]
氯霉素	<i>Tetraselmis suecica</i>	4d-NOEC	10 000	50	200 000	[35]
氧氟沙星	<i>Pseudokirchneriella subcapitata</i>	3d-EC50	1 440	1 000	1 440	[35]
洛美沙星	<i>Pimephales promelas</i> Fathead Minnow	7d-NOEC	10 000	50	200 000	[36]
氟苯尼考	<i>Tetraselmis suecica</i> Prasinophyte	4d-NOEC	2 500	50	50 000	[37]
恩诺沙星	<i>Pseudokirchneriella subcapitata</i>	3d-EC50	3 100	1 000	3 100	[38]
磺胺甲基恶唑	<i>Pseudokirchneriella subcapitata</i>	3d-EC50	1 530	1 000	1 530	[39]
布洛芬	<i>Pseudokirchneriella subcapitata</i>	3d-NOEC	10	10	1 000	[40]
萘普生	<i>Ankistrodesmus falcatus</i>	2d-LC50	40 000	1 000	40 000	[41]
水杨酸	<i>Daphnia longispina</i>	21d-NOEC	1 800	50	36 000	[42]
吡罗美辛	<i>Danio rerio</i>	16d-NOEC	100	10	10 000	[43]
吉非罗齐	<i>Oryzias latipes</i>	21d-NOEC	43.7	10	4 370	[44]
苯扎贝特	<i>Anabaena</i> sp.	1d-EC50	7 620	1 000	7 620	[45]

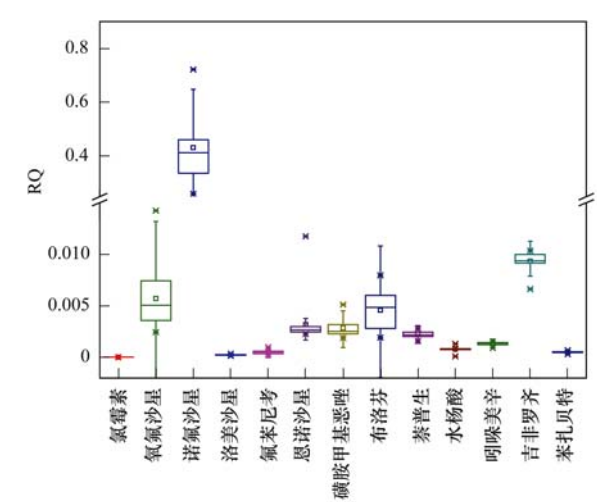


图 3 13 种药物类 PPCPs 的生态风险 RQs

Fig. 3 Ecological risk RQs of 13 pharmaceutical PPCPs

0.75,主要是由于诺氟沙星的贡献,整体上看,骆马湖 PPCPs 对于水生生物表现出中风险.

2.4 人体健康风险评估

由于有些 PPCPs 的 ADI 不易获得,因此本研究选取代表性的 6 种 PPCPs,对其进行了不同年龄段的人群的健康风险评价,从婴幼儿到成人不同年龄段人群的健康风险如表 4 所示. 6 种典型的 PPCPs 的 RQs 均小于 1,整体上呈现随年龄增长 RQs 降低的趋势,对于 0~3 个月婴儿表现出最高的风险,16~18 岁青少年表现出最低的健康风险. 6 种化合物中诺氟沙星对人体的健康风险最高,这与水体中诺氟沙星的浓度较高有关,阿替洛尔风险较低,RQs 范围为 0.000 2~0.001 1. 结果表明骆马湖水体中的 PPCPs 对人体健康无直接风险.

表 4 6 种典型 PPCPs 的人体健康风险 RQs

Table 4 Human health risk RQs of 6 typical PPCPs								
年龄段	BW/kg	DWI/ $\text{L}\cdot\text{d}^{-1}$	萘普生	磺胺甲基恶唑	诺氟沙星	布洛芬	吡罗美辛	阿替洛尔
ADI	/	/	46 ^[46]	130 ^[47]	55 ^[46]	110 ^[46]	93 ^[48]	2.7 ^[46]
0~3 个月	5.6	1.15	0.140 1	0.002 4	0.553 1	0.003 0	0.010 3	0.001 1
3~6 个月	7.2	1.14	0.108 0	0.001 9	0.426 5	0.002 3	0.007 9	0.000 8
6~12 个月	9.4	1.18	0.085 6	0.001 5	0.338 1	0.001 8	0.006 3	0.000 7
1~2 岁	12	0.85	0.048 3	0.000 8	0.190 8	0.001 0	0.003 6	0.000 4
2~3 岁	13.8	0.83	0.041 0	0.000 7	0.162 0	0.000 9	0.003 0	0.000 3
3~6 岁	19	1.16	0.041 6	0.000 7	0.164 4	0.000 9	0.003 1	0.000 3
6~11 岁	36	1.55	0.029 4	0.000 5	0.116 0	0.000 6	0.002 2	0.000 2
11~16 岁	56	1.90	0.023 1	0.000 4	0.091 4	0.000 5	0.001 7	0.000 2
16~18 岁	57	1.77	0.021 2	0.000 4	0.083 6	0.000 5	0.001 6	0.000 2
成人(>18 岁)	60	2.04	0.023 2	0.000 4	0.091 6	0.000 5	0.001 7	0.000 2

3 结论

(1) 骆马湖水体中共检出了 23 种 PPCPs,包括 10 种抗生素类、5 种消炎止痛药类、4 种其他类药物、2 种食品添加剂、杀菌剂三氯卡班及吐纳麝香. 整

体上,除诺氟沙星浓度较高外,其余的 PPCPs 处于较低的水平.

(2) 骆马湖水体中 PPCPs 呈现东北部高于西南部的空间分布特征,湖体中的 PPCPs 分布与其附近的入湖口与出湖口保持较好的一致性,这表明入湖

河流中 PPCPs 是湖体中 PPCPs 污染的主要来源。

(3) 对于 13 种药物类 PPCPs 生态风险评估结果表明, 12 种 PPCPs 生态风险 $RQs \leq 0.01$, 说明其对于骆马湖的生态风险不显著, 诺氟沙星表现出中风险, 对于骆马湖水生系统的影响不容忽视, 同时 12 种 PPCPs 的联合毒性风险熵表明整体上 PPCPs 对于骆马湖水生生物表现出中风险。

(4) 6 种 PPCPs 对于 10 个不同年龄段的人体健康风险评估表明, 健康风险 $RQs < 0.1$, 骆马湖水体中的 PPCPs, 对于人体健康尚不具有明显的风险。

参考文献:

- [1] Buchberger W W. Current approaches to trace analysis of pharmaceuticals and personal care products in the environment [J]. *Journal of Chromatography A*, 2011, **1218** (4): 603-618.
- [2] Daughton C G. Pharmaceuticals and personal care products in the environment: overarching issues and overview [A]. In: Daughton C G, Jones-Lepp T L, (Eds.). *Pharmaceuticals and Care Products in the Environment* [M]. Washington, DC, USA: American Chemical Society, 2001, **791**: 2-38.
- [3] Boyd G R, Reemtsma H, Grimm D A, *et al.* Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in surface and treated waters of Louisiana, USA and Ontario, Canada [J]. *Science of the Total Environment*, 2003, **311** (1-3): 135-149.
- [4] Zhang T, Wu B, Sun N, *et al.* Sorption and degradation of wastewater-associated pharmaceuticals and personal care products in agricultural soils and sediment [J]. *Water Science & Technology*, 2013, **68** (5): 991-998.
- [5] Barceló D, Petrovic M. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in the environment [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2007, **387** (4): 1141-1142.
- [6] 温智皓, 段艳平, 孟祥周, 等. 城市污水处理厂及其受纳水体中 5 种典型 PPCPs 的赋存特征和生态风险 [J]. *环境科学*, 2013, **34** (3): 927-932.
Wen Z H, Duan Y P, Meng X Z, *et al.* Occurrence and risk assessment of five selected PPCPs in municipal wastewater treatment plant and the receiving water [J]. *Environmental Science*, 2013, **34** (3): 927-932.
- [7] Bu Q W, Wang B, Huang J, *et al.* Pharmaceuticals and personal care products in the aquatic environment in China: a review [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, **262**: 189-211.
- [8] Zhang X X, Zhang T, Fang H H P. Antibiotic resistance genes in water environment [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2009, **82** (3): 397-414.
- [9] 罗义, 周启星. 抗生素抗性基因 (ARGs)——一种新型环境污染物质 [J]. *环境科学学报*, 2008, **28** (8): 1499-1505.
Luo Y, Zhou Q X. Antibiotic resistance genes (ARGs) as an emerging pollutants [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2008, **28** (8): 1499-1505.
- [10] Ort C, Lawrence M G, Reungoat J, *et al.* Sampling for PPCPs in wastewater systems: comparison of different sampling modes and optimization strategies [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44** (16): 6289-6296.
- [11] Kosma C I, Lambropoulou D A, Albanis T A. Occurrence and removal of PPCPs in municipal and hospital wastewaters in Greece [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, **179** (1-3): 804-817.
- [12] 徐维海. 典型抗生素类药物在珠江三角洲水环境中的分布、行为与归宿 [D]. 广州: 中国科学院广州地球化学研究所, 2007.
Xu W H. Occurrence and environmental fate of selected antibiotics in the aquatic environment of the Pearl river delta [D]. Guangzhou: Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese academy of Sciences, 2007.
- [13] 朱婷婷, 宋战锋, 尹魁浩, 等. 南方某水库水体中抗生素生态与健康风险研究 [J]. *生态毒理学报*, 2015, **10** (5): 124-131.
Zhu T T, Song Z F, Yin K H, *et al.* Assessments of ecological and health risk induced by antibiotics in source water of a reservoir in a southern city [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2015, **10** (5): 124-131.
- [14] Wang Z, Zhang X H, Huang Y, *et al.* Comprehensive evaluation of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in typical highly urbanized regions across China [J]. *Environmental Pollution*, 2015, **204**: 223-232.
- [15] Taneda S, Mori Y, Kamata K, *et al.* Estrogenic and anti-androgenic activity of nitrophenols in diesel exhaust particles (DEP) [J]. *Biological and Pharmaceutical Bulletin*, 2004, **27** (6): 835-837.
- [16] Cleuvers M. Mixture toxicity of the anti-inflammatory drugs diclofenac, ibuprofen, naproxen, and acetylsalicylic acid [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2004, **59** (3): 309-315.
- [17] Cleuvers M. Aquatic ecotoxicity of pharmaceuticals including the assessment of combination effects [J]. *Toxicology Letters*, 2003, **142** (3): 185-194.
- [18] Quinn B, Gagné F, Blaise C. An investigation into the acute and chronic toxicity of eleven pharmaceuticals (and their solvents) found in wastewater effluent on the cnidarian, *Hydra attenuata* [J]. *Science of the Total Environment*, 2008, **389** (2-3): 306-314.
- [19] Cunningham V L, Binks S P, Olson M J. Human health risk assessment from the presence of human pharmaceuticals in the aquatic environment [J]. *Regulatory Toxicology & Pharmacology*, 2009, **53** (1): 39-45.
- [20] US EPA (U. S. Environmental Protection Agency). Guidance on selecting age groups for monitoring and assessing childhood exposures to environmental contaminants [EB/OL]. <https://www.epa.gov/risk/guidance-selecting-age-groups-monitoring-and-assessing-childhood-exposures-environmental>, 2016-08.
- [21] 徐维海, 张干, 邹世春, 等. 香港维多利亚港和珠江广州河段水体中抗生素的含量特征及其季节变化 [J]. *环境科学*, 2006, **27** (12): 2458-2462.
Xu W H, Zhang G, Zou S C, *et al.* Occurrence and seasonal changes of antibiotics in the victoria harbour and the Pearl River, South China [J]. *Environmental Science*, 2006, **27** (12): 2458-2462.
- [22] 王丹, 隋倩, 吕树光, 等. 黄浦江流域典型药物和个人护理品的含量及分布特征 [J]. *中国环境科学*, 2014, **34** (7): 1897-1904.
Wang D, Sui Q, Lv S G, *et al.* Concentrations and distribution

- of selected pharmaceuticals and personal care products in Huangpu River[J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(7): 1897-1904.
- [23] Valcúrcel Y, Alonso S G, Rodríguez-Gil J L, *et al.* Analysis of the presence of cardiovascular and analgesic/anti-inflammatory/antipyretic pharmaceuticals in river-and drinking-water of the Madrid Region in Spain [J]. *Chemosphere*, 2011, **82**(7): 1062-1071.
- [24] Scheurer M, Storck F R, Brauch H J, *et al.* Performance of conventional multi-barrier drinking water treatment plants for the removal of four artificial sweeteners[J]. *Water Research*, 2010, **44**(12): 3573-3584.
- [25] Scheurer M, Brauch H J, Lange F T. Analysis and occurrence of seven artificial sweeteners in German waste water and surface water and in soil aquifer treatment (SAT) [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2009, **394**(6): 1585-1594.
- [26] Buerge I J, Buser H R, Kahle M, *et al.* Ubiquitous occurrence of the artificial sweetener acesulfame in the aquatic environment; an ideal chemical marker of domestic wastewater in groundwater [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(12): 4381-4385.
- [27] 干志伟. 人工甜味剂在环境中的分布、迁移转化及光降解机理研究[D]. 天津: 南开大学, 2014.
Gan Z W. Distribution, fate, and photolysis mechanism of artificial sweeteners in environment [D]. Tianjin: Nankai University, 2014.
- [28] 王明泉, 李圭白, 贾瑞宝, 等. 南水北调山东受水区水源水环境激素污染特性[J]. *中国给水排水*, 2015, **31**(23): 69-71.
Wang M Q, Li G B, Jia R B, *et al.* Environmental hormone pollution characteristics of source water in Shandong province of south-to-north water transfer project [J]. *China Water & Wastewater*, 2015, **31**(23): 69-71.
- [29] 马莉, 敬烨, 周静, 等. 太湖梅梁湾水体合成麝香的分布特征[J]. *环境化学*, 2014, **33**(4): 630-635.
Ma L, Jing Y, Zhou J, *et al.* Distribution of synthetic musk in surface water and sediments from Meiliang Bay, Taihu Lake[J]. *Environmental Chemistry*, 2014, **33**(4): 630-635.
- [30] Quednow K, Pittmann W. Organophosphates and synthetic musk fragrances in freshwater streams in Hessen/Germany[J]. *Clean-Soil Air Water*, 2008, **36**(1): 70-77.
- [31] Villa S, Assi L, Ippolito A, *et al.* First evidences of the occurrence of polycyclic synthetic musk fragrances in surface water systems in Italy: spatial and temporal trends in the Molgora River (Lombardia Region, Northern Italy) [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **416**: 137-141.
- [32] 范瑜, 吴涛, 贺晓蕾. 房亭河水质稳定达标存在的问题及其主要对策措施[J]. *环境科技*, 2013, **26**(6): 51-54.
Fan Y, Wu T, He X L. Problems that prevent Fangting river water from steadily meeting the standards and main countermeasures[J]. *Environmental Science and Technology*, 2013, **26**(6): 51-54.
- [33] Caliman F A, Gavrilescu M. Pharmaceuticals, personal care products and endocrine disrupting agents in the environment-a review[J]. *Clean-Soil Air Water*, 2009, **37**(4-5): 277-303.
- [34] Ando T, Nagase H, Eguchi K, *et al.* A novel method using cyanobacteria for ecotoxicity test of veterinary antimicrobial agents [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2007, **26**(4): 601-606.
- [35] Saejung C, Hatai K, Sanoamuang L O. Bath efficacy of sodium hypochlorite, oxytetracycline dihydrate and chloramphenicol against bacterial black disease in fairy shrimp *Branchinella thailandensis* [J]. *Aquaculture Research*, 2014, **45**(10): 1697-1705.
- [36] Isidori M, Lavorgna M, Nardelli A, *et al.* Toxic and genotoxic evaluation of six antibiotics on non-target organisms[J]. *Science of the Total Environment*, 2005, **346**(1-3): 87-98.
- [37] Robinson A A, Belden J B, Lydy M J. Toxicity of fluoroquinolone antibiotics to aquatic organisms [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2005, **24**(2): 423-430.
- [38] Seoane M, Rioboo C, Herrero C, *et al.* Toxicity induced by three antibiotics commonly used in aquaculture on the marine microalga *Tetraselmis suecica* (Kylin) Butch [J]. *Marine Environmental Research*, 2014, **101**: 1-7.
- [39] Eguchi K, Nagase H, Ozawa M, *et al.* Evaluation of antimicrobial agents for veterinary use in the ecotoxicity test using microalgae[J]. *Chemosphere*, 2004, **57**(11): 1733-1738.
- [40] Brun G L, Bernier M, Losier R, *et al.* Pharmaceutically active compounds in Atlantic Canadian sewage treatment plant effluents and receiving waters, and potential for environmental effects as measured by acute and chronic Aquatic Toxicity [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2006, **25**(8): 2163-2176.
- [41] El-Bassat R A, Touliabah H E, Harisa G I, *et al.* Aquatic toxicity of various pharmaceuticals on some isolated plankton species [J]. *International Journal of Medicine & Medical Sciences*, 2011, **3**(6): 170-180.
- [42] Marques C R, Abrantes N, Gonçalves F. Life-history traits of standard and autochthonous cladocerans: II. Acute and chronic effects of acetylsalicylic acid metabolites [J]. *Environmental Toxicology*, 2004, **19**(5): 527-540.
- [43] Lister A L, Van Der Kraak G. An investigation into the role of prostaglandins in zebrafish oocyte maturation and ovulation [J]. *General and Comparative Endocrinology*, 2008, **159**(1): 46-57.
- [44] Bulloch D N, Lavado R, Forsgren K L, *et al.* Analytical and biological characterization of halogenated gemfibrozil produced through chlorination of wastewater[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(10): 5583-5589.
- [45] Rosal R, Rodea-Palomares I, Boltes K, *et al.* Ecotoxicity assessment of lipid regulators in water and biologically treated wastewater using three aquatic organisms [J]. *Environmental Science & Pollution Research*, 2010, **17**(1): 135-144.
- [46] Schwab B W, Hayes E P, Fiori J M, *et al.* Human pharmaceuticals in US surface waters: a human health risk assessment[J]. *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 2005, **42**(3): 296-312.
- [47] Snyder S A. Occurrence, treatment, and toxicological relevance of EDCs and pharmaceuticals in water [J]. *Ozone: Science & Engineering*, 2008, **30**(1): 65-69.
- [48] De Jesus Gaffney V, Almeida C M M, Rodrigues A, *et al.* Occurrence of pharmaceuticals in a water supply system and related human health risk assessment [J]. *Water Research*, 2015, **72**: 199-208.

CONTENTS

Source Apportionment of Volatile Organic Compounds and Health Assessment of Benzene Series in Northern Suburb of Nanjing in Winter	ZHANG Yu-xin, AN Jun-lin, LIN Xu, <i>et al.</i> (1)
Size Distribution and Mixing State of Black Carbon Aerosol in Nanjing During a Heavy Winter Pollution Event	JIANG Lei, TANG Li-li, PAN Liang-bao, <i>et al.</i> (13)
Interactive Effects of the Influencing Factors on the Changes of PM _{2.5} Concentration Based on GAM Model	HE Xiang, LIN Zhen-shan (22)
Particle Size Distribution and Diffusion for Simulated Cooking Fume	LI Shuang-de, XU Jun-bo, MO Sheng-peng, <i>et al.</i> (33)
Greenhouse Gas Fluxes at Water-Air Interface in Small Pond Using Flux-Gradient Method Based on Spectrum Analyzer	ZHAO Jia-yu, ZHANG Mi, XIAO Wei, <i>et al.</i> (41)
Diurnal Variations of Concentration of Porewater Dissolved CH ₄ and CO ₂ in a Brackish Marsh Dominated by <i>Cyperus malaccensis</i> and <i>Phragmites australis</i> During Neap and Spring Tidal Days in the Minjiang River Estuary	TAN Li-shan, YANG Ping, HE Lu-lu, <i>et al.</i> (52)
Comparisons Between Seasonal and Diurnal Patterns of Cave Air CO ₂ and Control Factors in Jiguan Cave, Henan Province, China	ZHANG Ping, YANG Yan, SUN Zhe, <i>et al.</i> (60)
Fluorescence Spectral Characteristics of Fluorescent Dissolved Organic Matter (FDOM) in the Surface Sediments from Lihu Lake	CHEN Jun-yi, WANG Shu-hang, JIANG Xia, <i>et al.</i> (70)
Sedimentary Characteristics and Sources of Organic Matter in Sediments of Dianchi Lake	HAN Xiu-xiu, HUANG Xiao-hu, YU Li-yan, <i>et al.</i> (78)
Seasonal Variation of Colloid Particles in the Shallow Well Water of a Small Watershed of Purple Soil	ZHANG Wei, TANG Xiang-yu, XIAN Qing-song (87)
Deposition Characteristics of Suspended Solids and the Response of Dissolved Nutrients in Spring in the Western Lakeside of Taihu Lake	QI Chuang, WANG Guo-xiang, WU Xin-ting, <i>et al.</i> (95)
Correlation Between LDI-based Land Use Types and Water Quality in Sanshan Island of Taihu Lake National Wetland Park, Suzhou	YANG Zhao-hui, SU Qun, CHEN Zhi-hui, <i>et al.</i> (104)
Response Characteristics of Algal Chlorophyll-a to Nitrogen, Phosphorus and Water Temperature in Lake Erhai Based on Quantile Regression	CHEN Xiao-hua, LI Xiao-ping, QIAN Xiao-yong, <i>et al.</i> (113)
Seasonal Succession Characteristics of the Morphologically-based Functional Groups (MBFG) in Deep-water Reservoir	YANG Yu, LU Jin-suo, ZHANG Ying (121)
Change and Influencing Factors of Dissolved Carbon and Dissolved Nitrogen in Water of the Three Gorges Reservoir	FAN Zhi-wei, HAO Qing-ju, HUANG Zhe, <i>et al.</i> (129)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Emissions in the Gufu River Small Watershed of the Three Georges Reservoir Area	HUA Ling-ling, LI Wen-chao, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (138)
Characteristics of Nitrogen Transport and Its Source Trace in Loess Plateau's Dam Watershed in Alternating Wet and Dry Seasons: A Case Study of Yangjuangou Watershed	JIA Jun-jie, GAO Yang, CHEN Wei-liang, <i>et al.</i> (147)
Comparison of Nitrogen and Phosphorus Uptake and Water Purification Ability of Five Submerged Macrophytes	JIN Shu-quan, ZHOU Jin-bo, BAO Wei-hong, <i>et al.</i> (156)
Pollution Level, Distribution Characteristics and Risk Assessment of 32 PPCPs in Surface Water of Luomahu Lake	ZHANG Qin, ZHANG Sheng-hu, WANG Zhen, <i>et al.</i> (162)
Distribution, Sources and Risk Assessment of the PAHs in the Surface Sediments and Water from the Daye Lake	ZHANG Jia-quan, HU Tian-peng, XING Xin-li, <i>et al.</i> (170)
Effects of pH and Complexing Agents on Sb(V) Adsorption onto Birnessite and Ferrihydrite Surface	WANG Hua-wei, LI Xiao-yue, LI Wei-hua, <i>et al.</i> (180)
Effects of UV Radiation on the Coagulation Process of Kaolin and Involved Mechanisms	WANG Wen-dong, WANG Chang-xin, LIU Hui, <i>et al.</i> (188)
Effect of Dissolved Humic Acid on Thyroid Receptor Antagonistic Activity of Zinc in Aquatic Environment	AI Yang, KONG Dong-dong, YU Chang, <i>et al.</i> (195)
Optimization and Validation of the Analytical Method to Detect Common Illicit Drugs in Wastewater	GAO Ting-ting, DU Peng, XU Ze-qiong, <i>et al.</i> (201)
Cathode Electric Field Enhanced Removal of Nitrobenzene from Aqueous Solution Based on Activated Carbon Fibers (ACF)-Ozone Technique	ZHAO Chun, ZHANG Shuai, ZHOU Yu, <i>et al.</i> (212)
Effect of PVDF Hollow Fiber Ultrafiltration Membranes Modification with Carbonnanotube on Membrane Fouling Control During Ultrafiltration of Sewage Effluent	WANG Li-ying, SHI Jie, WANG Kai-lun, <i>et al.</i> (220)
Enhanced Treatment of Petrochemical Secondary Effluent by Biological Aerated Filter (Fe ²⁺)-Ozonation Process	XU Min, WU Chang-yong, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (229)
Specificity of Intact Ladderane Lipids in Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria from Four Reactors	WANG Han, FANG Fang, LI Kai, <i>et al.</i> (238)
Characteristics of Perchlorate Reduction and Analysis of Consortium Structure in a Sulfur-Based Reactor at a High Perchlorate Concentration	ZHANG Chao, TAO Hua-qiang, SONG Yuan-yuan, <i>et al.</i> (247)
Fast Start-up of SBAF System Assisted CANON Process and the Microbial Analysis	LIU Zhu-han, YUE Xiu, YU Guang-ping, <i>et al.</i> (253)
Mechanism for Effects of High Free Ammonia Loadings on Biological Nitrification	JI Min, LIU Ling-jie, ZHAI Hong-yan, <i>et al.</i> (260)
Impact of Biodegradable Organic Matter on the Functional Microbe Activities in Partial Nitrification Granules	WANG Shu-yong, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (269)
Process of Enrichment and Culture of PAOs on a Novel Biofilm Process of Dephosphorization	ZHENG Ying, PAN Yang, ZHOU Xiao-hua, <i>et al.</i> (276)
Identification of Efficient Strain Applied to Mining Rehabilitation and Its Rock Corrosion Mechanism: Based on Boosted Regression Tree Analysis	WU Yan-wen, ZHANG Jin-chi, GUO Xiao-ping, <i>et al.</i> (283)
Effect of Cadmium on Biodegradation of Nonylphenol by <i>Pseudomonas aeruginosa</i>	SHI Guang-yu, CHENG Yuan-yuan, SHI Wei-lin (294)
Effects of Different Agricultural Practices on Soil Carbon Pool in North China Plain	SHI Xiao-xia, ZHAO Yi, ZHANG Lin, <i>et al.</i> (301)
Seasonal Variations of Soil Microbial PLFAs and Soil Enzyme Activity Under the Citrus Plantation in Mt. Jinyun, Chongqing	LI Nan-jie, ZENG Qing-ping, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (309)
Composition and Environmental Adaptation of Microbial Community in Shibaohe Copper Tailing in Zhongtiao Mountain in Shanxi	LIU Jin-xian, LI Cui, JING Jun-hui, <i>et al.</i> (318)
Spatial Distribution and Source of Perfluorinated Compounds in Urban Soil from Part of Cities in Anhui Province, China	LI Fa-song, NI Hui, HUANG Han-yu, <i>et al.</i> (327)
Effects of Biochar Pyrolyzed at Varying Temperatures on Soil Organic Carbon and Its Components; Influence on the Soil Active Organic Carbon	ZHAO Shi-xiang, YU Xiao-ling, LI Zhong-hui, <i>et al.</i> (333)
Effects of Different Water Managements and Soil Eh on Migration and Accumulation of Cd in Rice	TIAN Tao, ZENG Min, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (343)
Mechanism of Soil Eco-Functional Stability Under Pyrene/Cadmium Simplex and Combined Pollution Stress	CHEN Xin-yao, YANG Hui-zi, LI Min, <i>et al.</i> (352)
Fractions Transformation of Heavy Metals in Compound Contaminated Soil Treated with Biochar, Montmorillonite and Mixed Addition	GAO Rui-li, TANG Mao, FU Qing-ling, <i>et al.</i> (361)
Screening of the Reduction/Stabilization Reagent for Cr(VI) Contaminated Soil in a Planting Site and Reaction Process Monitoring	LI Pei-zhong, LÜ Xiao-jian, WANG Hai-jian, <i>et al.</i> (368)
Cd(II) Ion Adsorption and Sealing onto SBA-15 Mesoporous Particles and the Related Potential on Cd(II) Polluted Soil Remediation	HUANG Hui, NING Xi-cui, GUO Zhan-yu, <i>et al.</i> (374)
Bioaccumulation of Halogenated Flame Retardants in Fish of Dongjiang River	HE Ming-jing, YANG Ting, LI Qi, <i>et al.</i> (382)
Characteristics and Evaluation of Heavy Metal Pollution in Vegetables in Guangzhou	CHEN Zhi-liang, HUANG Ling, ZHOU Cun-yu, <i>et al.</i> (389)
Variation Characteristics of Vegetables Cadmium Uptake Factors and Its Relations to Environmental Factors	YANG Yang, LI Yan-ling, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (399)
Effect of Sewage Sludge Compost Products Application on Total Mercury and Methylmercury in Soil and Plants	YU Ya-wei, YANG Yu-han, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (405)
Influencing Mechanism and Spatio-temporal Pattern of Stomatal Ozone Flux of Winter Wheat Under Ozone Pollution	ZHAO Hui, ZHENG You-fei, CAO Jia-chen, <i>et al.</i> (412)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2017年1月15日 第38卷 第1期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 38 No. 1 Jan. 15, 2017

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科学出版社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印刷装订	北京宝昌彩色印刷有限公司	Printed	by	Beijing Baochang Color Printing Co., Ltd.
发 行	科学出版社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易集团有限公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 140.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人

ISSN 0250-3301

