

# 药物与个人护理品在不同环境介质中的分布特征及其生态毒性与降解综述\*

张琪 杨芳 王峥 简宏先 王翠苹<sup>#</sup>

(南开大学环境科学与工程学院, 教育部环境污染过程与基准重点实验室,

天津市环境修复与污染控制重点实验室, 天津 300350)

**摘要** 药物与个人护理品(PPCPs)在不同环境介质中广泛存在, 具有伪持久性、高生物活性和内分泌干扰性, 可诱导微生物产生耐药性, 对生态环境产生负面影响。近年来, PPCPs已成为环境领域学者们高度关注的一类新兴污染物。总结了PPCPs在中国饮用水、地表水、地下水、污泥、沉积物等环境介质中的分布特征, 剖析了PPCPs在环境中的潜在生态毒性以及在环境中的降解行为, 展望了环境中PPCPs未来研究的方向。

**关键词** 药物与个人护理品 分布特征 生态毒性 降解

DOI: 10.15985/j.cnki.1001-3865.2020.07.023

**Review on distribution characteristics, ecotoxicity and degradation of pharmaceutical and personal care products in different media** ZHANG Qi, YANG Fang, WANG Zheng, JIAN Hongxian, WANG Cuiping. (Tianjin Key Laboratory of Environmental Remediation and Pollution Control, Key Laboratory of Pollution Process and Environmental Criteria, Ministry of Education, College of Environmental Science and Engineering, Nankai University, Tianjin 300350)

**Abstract:** Pharmaceutical and personal care products (PPCPs) are widely distributed in the different environment media. They have pseudo-persistence, high biological activity and endocrine disrupting function, which can induce microbial resistance, and have negative impact on the environment. Therefore, PPCPs have become a type of emerging pollutants which draw great attention of researchers in the field of environmental science. In the present study, the distribution characteristics of PPCPs in drinking water, surface water, groundwater, sludge and sediment in China were summarized, the potential ecotoxicological effects were analyzed, and the degradation of PPCPs in the environment were explained. The future research directions of PPCPs were put forward.

**Keywords:** pharmaceutical and personal care products; distribution characteristics; ecotoxicity; degradation

药物与个人护理品(PPCPs)的广泛使用给人类带来诸多便利的同时也对环境和人类健康产生了潜在的威胁<sup>[1]</sup>。绝大多数PPCPs的半衰期较短且在环境介质中的浓度较低, 处于ng/L至 $\mu\text{g/L}$ 水平, 但是由于不断输入, PPCPs在环境中呈现“伪持久”的状态<sup>[2-3]</sup>, PPCPs长期暴露所带来的潜在风险不亚于持久性有机污染物。目前, 在地表水、地下水、饮用水、沉积物、污泥等环境介质中都有PPCPs被检出。中国对PPCPs的研究起步相对较晚, 而其滥用率较

高。研究PPCPs在中国的分布特征, 可以为中国PPCPs的环境风险评价以及污染环境的治理提供基础数据。

研究表明, PPCPs对生态安全和人体健康存在着潜在危害<sup>[4]</sup>。SANDERSON等<sup>[5]</sup>的实验室研究表明, 很多PPCPs对藻类、水蚤、鱼类等水生生物具有急性毒性(半数效应浓度( $\text{EC}_{50}$ )小于1 mg/L)。在实际环境中, PPCPs的浓度可能达不到产生急性毒性作用的水平, 但其慢性毒性的影响不能排除, 并

第一作者: 张琪, 女, 1994年生, 硕士研究生, 主要从事药物与个人护理品污染土壤的植物修复研究。<sup>#</sup> 通讯作者。

\* 国家自然科学基金资助项目(No. 41673104); 国家重点研发计划项目(No. 2018YFC1802001); 天津市自然科学基金资助项目(No. 17JCZDJC39600); 宁夏回族自治区重点研发计划重大项目(No. 2019BFG02020)。

可能会因其持续输入而造成生物体内的累积,从而产生不可逆转的伤害<sup>[6-7]</sup>。同时,PPCPs还可能诱导微生物产生耐药性,使环境中抗性基因丰度增加,扰乱生态平衡并威胁人类安全。因此,应关注环境中PPCPs的生态毒性,有针对性地选择毒性大的PPCPs进行优先控制。

目前,环境介质中PPCPs的去除主要有光化学降解、水解、生物降解3种途径,需要根据PPCPs分布特征和生态毒性效应,选择合理的技术去除PPCPs,以降低环境中PPCPs的暴露风险,减少其对人类及生态系统的威胁。

近些年国内对PPCPs分布特征及其生态毒性与降解开展了较多研究,因此本研究综述PPCPs在中国不同环境介质中的污染现状,探讨其潜在的生态毒性效应以及致毒机理等,深入剖析PPCPs在环境中的去除途径及其影响因素,为PPCPs的管理与防治提供理论依据。

## 1 PPCPs在中国不同环境介质中的分布特征

近年,中国不同地区报道的PPCPs已有上百种,常见的包括8类,分别为抗生素、非甾体抗炎药、杀菌剂、抗癫痫类药物、抗心血管疾病药物、 $\beta$ 受体阻滞剂、抗精神病类药物、人工合成麝香,主要分布于不同环境介质(饮用水、地表水、地下水、沉积物及污泥等)中。应光国<sup>[8]</sup>还绘制了中国58个流域的抗生素环境浓度分布图。

### 1.1 饮用水中PPCPs污染特征

PPCPs在饮用水源、供水管网和水龙头中均有检出。据报道,PPCPs在饮用水中的检出率较高,不同种类的化合物检出浓度差异很大<sup>[9]</sup>。天津市某自来水厂检出三氯卡班最高质量浓度为3.39 ng/L,双氯芬酸最高质量浓度为1.77 ng/L,达舒平最高质量浓度为6.07 ng/L<sup>[10]</sup>。东江水源检出舒必利最高质量浓度为13.4 ng/L<sup>[11]</sup>。

饮用水中的PPCPs种类及含量还与水源和季节等有关。PPCPs可通过饮用水进入人体,间接影响人体健康,而目前生活饮用水相关标准尚无PPCPs等项目,因此未来应对饮用水中的PPCPs进行相关标准制定,保证饮用水的安全性。

### 1.2 地表水中PPCPs污染特征

我国地表水(包括河流、湖泊、近海水域)中检出的PPCPs有144种,包含21种个人护理品(PCPs)和123种药物<sup>[12]</sup>。珠江水系检出的PPCPs种类达95种,辽河水系检出48种<sup>[13]</sup>。大量PPCPs排放后进入地表水,造成地表水严重污染。黄浦江和苏州河中均检测到环丙沙星和红霉素等药物,两种化合物的最高质量浓度分别达到14.6、10.9 ng/L;巢湖中检测到氧氟沙星的最高质量浓度达182.7 ng/L;而磺胺甲噁唑在黄浦江、苏州河和巢湖均有检出,最高质量浓度为171.6 ng/L<sup>[18]</sup>。三氯生是地表水中检出率最高的PCPs,在汉江、黄浦江、苏州河、珠江等地均有检出,最高质量浓度达1 023 ng/L<sup>[16]</sup>。

地表水中的PPCPs来源十分广泛,外用护肤品可通过沐浴、游泳等途径进入地表水;制药、医疗和水产养殖废水中含有的大量PPCPs会通过排放进入地表水;污水处理厂的含PPCPs污水也可能进入地表水。因此,地表水是PPCPs分布最广、污染水平相对较高的环境介质,要高度重视地表水中PPCPs的污染治理。

### 1.3 地下水中PPCPs污染特征

地下水中的PPCPs通常是由于市政污水管道滴漏、污染地表水和垃圾填埋场渗滤液下渗而来,极性越大的化合物越易渗透至地下水<sup>[24]</sup>。我国地下水中已有不同种类的PPCPs检出。上海市地下水中检测到三氯生的质量浓度为50.10~185.80 ng/L<sup>[16]</sup>。常州市地下水中检测到布洛芬的质量浓度为31.00~118.74 ng/L,双酚A的质量浓度为7.51~84.37 ng/L<sup>[25]</sup>。上海市、珠三角等地区地下水中检出卡马西平最高质量浓度为563.00 ng/L,咖啡因最高质量浓度为10.80 ng/L<sup>[18]</sup>。

### 1.4 沉积物中PPCPs污染特征

在不同水系的沉积物中也检测到多种PPCPs。黄河沉积物中检测到环丙沙星的最高质量浓度为93.80  $\mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[13]</sup>;太湖沉积物中检测到磺胺甲噁唑的最高质量浓度为47.40  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,林可霉素的最高质量浓度为47.70  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,咖啡因的最高质量浓度为482.00  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,卡马西平的最高质量浓度为31.85  $\mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[28]</sup>;台湾淡水沉积物中氯霉素的最高质量浓

度为  $11 \mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[29]</sup>。人工合成麝香在太湖、梁滩河、苏州河、海河、松花江等地沉积物中均有检出,质量浓度为  $1.50 \sim 268.49 \mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[12]3,[13]3146,[27]5,[30]</sup>。LUO 等<sup>[31]</sup>研究发现,海河流域中大部分 PPCPs 在沉积物中的含量高于地表水中的含量。一般而言,同一地点的沉积物中 PPCPs 含量高于地表水中的含量,这主要是因为 PPCPs 的辛醇-水分配系数较高,水溶性低,易被有机质含量较高的沉积物吸附<sup>[32]</sup>。

### 1.5 污泥中 PPCPs 污染特征

污水中的 PPCPs 会以母体化合物或者代谢产物的形式通过吸附或沉积作用而进入污泥中<sup>[33]</sup>。据报道,中国 46 个污水处理厂检测到环丙沙星的最高质量浓度为  $926 \mu\text{g}/\text{kg}$ ,诺氟沙星的最高质量浓度为  $21\ 335 \mu\text{g}/\text{kg}$ ,氧氟沙星的最高质量浓度为  $7\ 788 \mu\text{g}/\text{kg}$ ,红霉素的最高质量浓度为  $55.8 \mu\text{g}/\text{kg}$ ,磺胺嘧啶的最高质量浓度为  $67.4 \mu\text{g}/\text{kg}$ ,磺胺甲噁唑的最高质量浓度为  $17.0 \mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[34]</sup>。三氯生在污泥中被检出的报道也较多,它在上海市、广州市、珠三角等地污泥中的质量浓度为  $200.1 \sim 1\ 187.5 \mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[23]9,[35-36]</sup>,但卡马西平及雌激素酮在污泥中的检出质量浓度分别低于  $2.9$ 、 $22.9 \mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[23]9</sup>,这与 PPCPs 在各地区的消费量有关。

## 2 环境中 PPCPs 的生态毒性

PPCPs 是具有强光学和化学活性的极性物质,能干扰内分泌系统<sup>[37]</sup>。PPCPs 通常具有亲脂性和生物活性<sup>[38]</sup>。壬基酚、卡马西平、萘普生、雌二醇等能通过干扰虹鳟鱼肝脏细胞脱乙基酶(EROD)与乳过氧化物酶(LPO)的活性而使虹鳟鱼产生氧化应激反应,影响其代谢过程,导致肝细胞损伤<sup>[39]</sup>。对 25 例肾功能衰竭秃鹫进行检测发现,肾中均有兽药双氯芬酸,质量浓度达  $0.051 \sim 0.643 \mu\text{g}/\text{g}$ <sup>[40]</sup>。研究发现,金霉素和土霉素的质量浓度为  $160 \text{ mg}/\text{L}$  时,植物会枯萎死亡,即便是较低浓度也会导致根与芽的干重降低<sup>[41]</sup>。长期暴露于低剂量( $1 \text{ ng}/\text{L}$ )人工合成乙炔雌二醇中的鱼类内分泌系统会受到干扰,出现鱼类的雌性化现象<sup>[42]</sup>。

同种 PPCPs 对不同生物的毒性效应不同。 $1 \text{ mg}/\text{L}$  的红霉素对浮萍和蓝藻的最大生长抑制率分

别为  $20\%$ 、 $70\%$ <sup>[43]</sup>。环境介质中的 PPCPs 并不是单一存在的,其毒性具有复合效应。蔡梦婷等<sup>[44]</sup>研究表明,诺氟沙星与铜复合暴露对小球藻的联合作用类型为协同作用;土霉素与铜复合暴露对斑马鱼的联合作用类型为拮抗作用。SCHNELL 等<sup>[45]</sup>研究了麝香与另外 11 种 PPCPs 之间的复合毒性效应,发现大部分 PPCPs 和麝香对肝脏 RTL-W1 细胞的联合作用类型为协同作用。PPCPs 还具有生物富集性,可通过食物链从环境介质迁移至动植物及人体中,从而对生态系统和人类健康造成负面效应<sup>[46]</sup>。

药物类 PPCPs 的主要毒性作用机理为抑制核酸、蛋白质的合成,改变细胞膜的通透性与影响细胞壁的形成,干扰细菌的能量代谢等<sup>[47]</sup>。PCPs 通常会扰乱生物体内分泌系统,特别是激素类物质会影响生物的生长和发育,导致生育能力降低、雄性雌性化或双性化等。据报道,激素类物质会使鲫鱼、鲑鱼、鲈鱼、海龟等水生动物产生性别畸变,雌性化趋势严重<sup>[48-50]</sup>。HENNIES 等<sup>[51]</sup>对瑞士部分城市污水处理厂调查发现,出水中高浓度的乙炔雌二醇是产生雌雄同体鱼的原因。三氯生是典型的抗菌剂,但对水生生物有内分泌干扰效应<sup>[52]</sup>。当三氯生质量浓度达到  $0.25 \text{ mg}/\text{L}$  时,斑马鱼体内胆碱酯酶和乳酸脱氢酶等的活性增加;成年斑马鱼的 96 h 半数致死浓度为  $0.34 \text{ mg}/\text{L}$ ;三氯生质量浓度为  $0.17 \text{ mg}/\text{L}$  时,鲈鱼胚胎发育和孵化率受到影响,甚至改变鲈鱼的正常游动速度<sup>[53]</sup>。抗生素在环境中长期存在会使微生物产生耐药性,使环境中耐药性基因增加。GAO 等<sup>[54]</sup>对污水处理厂污水和污泥样品中磺胺类抗生素浓度水平及微生物耐药性和耐药性基因进行相关分析,发现耐药微生物数量与抗生素浓度之间存在着相关性,出水中检测到较高浓度的耐药性基因和耐药微生物。THIELE BRUHN 等<sup>[55]</sup>调查了磺胺嘧啶和土霉素对土壤中微生物活性及种类的影响,发现磺胺嘧啶抑制了微生物活性并导致土壤还原细菌对  $\text{Fe}^{3+}$  的还原能力下降,此外还导致耐药微生物大量出现。

## 3 环境中 PPCPs 降解

PPCPs 在环境中会发生光化学降解、水解和生

物降解等一种或多种反应。PPCPs 在不同介质中的降解方式不同。PPCPs 在水溶液中大都发生光化学降解和水解反应,而在沉积物和土壤中主要发生生物降解反应。PPCPs 的降解会受到 PPCPs 的结构和性质的影响。

### 3.1 PPCPs 光化学降解

光化学降解是表层水体中各类污染物的主要降解方式<sup>[56]</sup>。光化学降解分为直接光解和间接光解两类。具有吸光基团的阿维菌素等 PPCPs 可直接光解<sup>[57]</sup>。但有些 PPCPs 在自然环境中发生光化学降解需要光敏剂的诱发<sup>[58-59]</sup>。喹诺酮类与呋喃类对光敏感,在光存在的水体中可直接光解<sup>[60-61]</sup>;四环素类可通过<sup>1</sup>O<sub>2</sub>和 O<sub>2</sub>·诱发进行间接光解<sup>[62-63]</sup>。水体中溶解性有机质(DOM)会作为活性氧自由基、羟基自由基猝灭剂而影响 PPCPs 的光化学降解过程<sup>[64-65]</sup>。

### 3.2 PPCPs 水解

PPCPs 的水解主要受 PPCPs 类型及水体 pH 的影响。据报道,β-内酰胺类、大环内酯类和磺胺类 PPCPs 在环境中较容易发生水解反应,但大环内酯类和磺胺类在中性条件下水解较慢,而 β-内酰胺类水解速度不受 pH 影响<sup>[66]</sup>。

### 3.3 PPCPs 生物降解

生物降解也是去除 PPCPs 的重要途径。大部分 PPCPs 可以被微生物直接降解,但有部分 PPCPs 不易被生物降解<sup>[67]</sup>。氨基糖苷类、β-内酰胺类、大环内酯类、喹诺酮类、磺胺类和四环素类药物易发生生物降解<sup>[68-69]</sup>。PPCPs 的生物降解主要途径有:(1) PPCPs 不作为碳源,但微生物与 PPCPs 发生共代谢作用而导致部分降解;(2)微生物利用 PPCPs 作为碳源和能源,将其完全矿化。

## 4 结论与展望

综上所述,PPCPs 在中国水体、沉积物、污泥等环境介质中的污染问题已十分严峻,PPCPs 具有生物富集性和生态毒性,在环境中很难被完全去除。环境中的 PPCPs 主要因光化学降解、水解和生物降解作用而被去除。笔者认为今后 PPCPs 的研究可以从以下两方面进行:

(1) 开展 PPCPs 间的复合效应或 PPCPs 与重

金属间的复合效应研究。目前的研究几乎都是针对单一 PPCPs 或少数几种 PPCPs,而在实际环境中,PPCPs 通常是几十种甚至上百种共存的,因此需要加强多种 PPCPs 化合物污染行为的复合效应研究。

(2) 开展 PPCPs 的降解代谢产物检测及毒性效应研究。目前相关研究主要针对 PPCPs 母体化合物进行毒性效应检测,事实上,有些 PPCPs 的代谢产物毒性仍然很大,甚至比母体化合物还大,所以应开展 PPCPs 降解代谢产物的检测及毒性效应研究,建立完整的数据库。

### 参考文献:

- [1] 柯润辉,蒋榆林,黄清辉,等.上海某城市污水处理厂污水中药物和个人护理用品(PPCPs)的调查研究[J].生态毒理学报,2014,9(6):1146-1155.
- [2] SUI Q, HUANG J, DENG S, et al. Occurrence and removal of pharmaceuticals, caffeine and DEET in wastewater treatment plants of Beijing, China[J]. Water Research, 2010, 44(2): 417-426.
- [3] YAN Q, GAO X, HUANG L, et al. Occurrence and fate of pharmaceutically active compounds in the largest municipal wastewater treatment plant in Southwest China: mass balance analysis and consumption back-calculated model[J]. Chemosphere, 2014, 99: 160-170.
- [4] 王琦,武俊梅,彭晶倩,等.饮用水系统中药物和个人护理用品的研究进展[J].环境化学,2018,37(3):453-461.
- [5] 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.
- [6] FENT K, WESTON A A, CAMINADA D. Erratum to "Ecotoxicology of human pharmaceuticals"[Aquatic Toxicology 76 (2006) 122-159][J]. Aquatic Toxicology, 2006, 78(2): 207.
- [7] BRAUSCH J M, RAND G M. A review of personal care products in the aquatic environment: environmental concentrations and toxicity[J]. Chemosphere, 2011, 82(11): 1518-1532.
- [8] 应光国.中国抗生素使用与流域污染[R].广州:中国科学院广州地球化学研究所,2016.
- [9] WU C, HUANG X, WITTER J D, et al. Occurrence of pharmaceuticals and personal care products and associated environmental risks in the central and lower Yangtze river, China[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2014, 106: 19-26.

- [10] 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.
- [11] 喻峥嵘. 东江下游某市饮用水中药品和个人护理用品分布及净化[D]. 北京: 清华大学, 2011.
- [12] 刘娜, 金小伟, 王业耀, 等. 我国地表水中药物与个人护理品污染现状及其繁殖毒性筛查[J]. 生态毒理学报, 2015, 10(6).
- [13] WANG L, YING G G, ZHAO J L, et al. Occurrence and risk assessment of acidic pharmaceuticals in the Yellow River, Hai River and Liao River of north China[J]. Science of the Total Environment, 2010, 408(16).
- [14] XU W H, ZHANG G, ZOU S C, et al. A preliminary investigation on the occurrence and distribution of antibiotics in the Yellow River and its tributaries, China[J]. Water Environment Research, 2009, 81(3): 248-254.
- [15] YANG Y, FU J, PENG H, et al. Occurrence and phase distribution of selected pharmaceuticals in the Yangtze Estuary and its coastal zone[J]. Journal of Hazardous Materials, 2011, 190(1/2/3): 588-596.
- [16] ZHOU X F, DAI C M, ZHANG Y L, et al. A preliminary study on the occurrence and behavior of carbamazepine (CBZ) in aquatic environment of Yangtze River Delta, China[J]. Environmental Monitoring & Assessment, 2011, 173(1/2/3/4): 45-53.
- [17] 王丹, 隋倩, 赵文涛, 等. 中国地表水环境中药物和个人护理品的研究进展[J]. 科学通报, 2014, 59(9): 743-751.
- [18] WEI R, GE F, ZHANG L, et al. Occurrence of 13 veterinary drugs in animal manure-amended soils in Eastern China[J]. Chemosphere, 2016, 144.
- [19] 潘潇, 强志民, 王为东. 巢湖东半湖饮用水源区沉积物药品和个人护理品 (PPCPs) 分布与生态风险[J]. 环境化学, 2016, 35(11): 2234-2244.
- [20] 张盼伟. 海河流域典型水体中 PPCPs 的环境行为及潜在风险研究[D]. 北京: 中国水利水电科学研究院, 2018.
- [21] 高月, 李杰, 许楠, 等. 汉江水相和沉积物中药品和个人护理品 (PPCPs) 的污染水平与生态风险[J]. 环境化学, 2018, 37(8): 1706-1719.
- [22] PENG F J, PAN C G, ZHANG M, et al. Occurrence and ecological risk assessment of emerging organic chemicals in urban rivers: Guangzhou as a case study in China[J]. Science of the Total Environment, 2017, 589: 46-55.
- [23] PENG X Z, YU Y Y, TANG C M, et al. Occurrence of steroid estrogens, endocrine-disrupting phenols, and acid pharmaceutical residues in urban riverine water of the Pearl River Delta, South China[J]. Science of the Total Environment, 2008, 397(1/2/3).
- [24] 罗玉. 药品与个人护理用品 (PPCPs) 分析方法和优先控制筛选体系的建立及其应用研究[D]. 昆明: 昆明理工大学, 2014.
- [25] 祁丽, 张新波, 宋姿, 等. 城市供水管网中 PPCPs 空间分布规律[J]. 中国给水排水, 2017, 33(17): 59-63.
- [26] 丁紫荣. 珠三角地区典型污染源及地下水中药物与个人护理品的分布特征研究[D]. 长沙: 湖南师范大学, 2015.
- [27] SANG W J, ZHANG Y L, ZHOU X F, et al. Occurrence and distribution of synthetic musks in surface sediments of Liangtan river, west China[J]. Environmental Engineering Science, 2012, 29(1).
- [28] 张盼伟, 周怀东, 赵高峰, 等. 太湖表层沉积物中 PPCPs 的时空分布特征及潜在风险[J]. 环境科学, 2016, 37(9): 3348-3355.
- [29] YANG G C C, WANG C L, CHUI Y H. Occurrence and distribution of phthalate esters and pharmaceuticals in Taiwan river sediments[J]. Journal of Soils and Sediments, 2015, 15(1): 198-210.
- [30] ZHANG X, YAO Y, ZENG X, et al. Synthetic musks in the aquatic environment and personal care products in Shanghai, China[J]. Chemosphere, 2008, 72(10): 1553-1558.
- [31] LUO Y, XU L, RYSZ M, et al. Occurrence and transport of tetracycline, sulfonamide, quinolone, and macrolide antibiotics in the Haihe River Basin, China[J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(5): 1827-1833.
- [32] 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.
- [33] JIA A, WAN Y, XIAO Y, et al. Occurrence and fate of quinolone and fluoroquinolone antibiotics in a municipal sewage treatment plant[J]. Water Research, 2012, 46(2): 387-394.
- [34] LI W, SHI Y, GAO L, et al. Occurrence, distribution and potential affecting factors of antibiotics in sewage sludge of wastewater treatment plants in China[J]. Science of the Total Environment, 2013, 445/446: 306-313.
- [35] CUI Y, WANG Y, PAN C, et al. Spatiotemporal distributions, source apportionment and potential risks of 15 pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in Qinzhou Bay, South China[J]. Marine Pollution Bulletin, 2019, 141: 104-111.

- [36] 纪建飞,孙佳,杜尔登,等.11种典型PPCPs在污水处理厂尾水及其周围水体中的分布特征与生态风险评估[J].安全与环境工程,2017,24(6):60-65.
- [37] SNYDER S A, WESTERHOFF P, YOON Y, et al. Pharmaceuticals, personal care products, and endocrine disruptors in water: implications for the water industry[J]. Environmental Engineering Science, 2003, 20(5): 449-469.
- [38] HALLING SØRENSEN B, NIELSEN S N, LANZKY P F, et al. Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment - a review[J]. Chemosphere, 1998, 36(2): 357-393.
- [39] GAGNE F, BLAISE C, ANDRE C. Occurrence of pharmaceutical products in a municipal effluent and toxicity to rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*) hepatocytes[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2006, 64(3): 329-336.
- [40] RIDEOUT B A, SHIVAPRASAD H L, AHMED S, et al. Diclofenac residues as the cause of vulture population decline in Pakistan[J]. Nature, 2004, 427(6975): 630-633.
- [41] BAGUER A J, JENSEN J, KROGH P H. Effects of the antibiotics oxytetracycline and tylosin on soil fauna[J]. Chemosphere, 2000, 40(7): 751-757.
- [42] BOUND J P, KATERINA K, NIKOLAOS V. Household disposal of pharmaceuticals and perception of risk to the environment[J]. Environmental Toxicology & Pharmacology, 2006, 21(3): 301-307.
- [43] POMATI F, NETTING A G, CALAMARI D, et al. Effects of erythromycin, tetracycline and ibuprofen on the growth of *Synechocystis* sp. and *Lemna minor*[J]. Aquatic Toxicology, 2004, 67(4): 387-396.
- [44] 蔡梦婷,侯国权,奚豪,等.典型抗生素与重金属铜复合暴露对淡水绿藻和斑马鱼的联合毒性[J].浙江树人大学学报(自然科学版),2018,18(2):15-19.
- [45] SCHNELL S, BOLS N C, BARATA C, et al. Single and combined toxicity of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) on the rainbow trout liver cell line RTL-W1[J]. Aquatic Toxicology, 2009, 93(4): 244-252.
- [46] LIU J L, WONG M H. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs): a review on environmental contamination in China[J]. Environment International, 2013, 59(3): 208-224.
- [47] 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].北京:中国科学院研究生院,2007.
- [48] LIU J, WANG R, HUANG B, et al. Biological effects and bioaccumulation of steroidal and phenolic endocrine disrupting chemicals in high-back crucian carp exposed to wastewater treatment plant effluents[J]. Environmental Pollution, 2012, 162: 325-331.
- [49] TABATA A, KASHIWADA S, OHNISHI Y, et al. Estrogenic influences of estradiol-17 $\beta$ , p-nonylphenol and bis-phenol-A on Japanese medaka (*Oryzias latipes*) at detected environmental concentrations[J]. Water Science and Technology, 2001, 43(2): 109-116.
- [50] IRWIN L K, GRAY S, OBERDORSTER E. Vitellogenin induction in painted turtle, *Chrysemys picta*, as a biomarker of exposure to environmental levels of estradiol[J]. Aquatic Toxicology, 2001, 55(1/2): 49-60.
- [51] HENNIES M, WIESMANN M, ALLNER B, et al. Vitellogenin in carp (*Cyprinus carpio*) and perch (*Perca fluviatilis*): purification, characterization and development of an ELISA for the detection of estrogenic effects[J]. Science of the Total Environment, 2003, 309(1/2/3): 93-103.
- [52] OLIVEIRA R, DOMINGUES I, GRISOLIA C K, et al. Effects of triclosan on zebrafish early-life stages and adults[J]. Environmental Science & Pollution Research International, 2009, 16(6): 679-688.
- [53] NASSEF M, MATSUNOTO S, SEKI M, et al. Acute effects of triclosan, diclofenac and carbamazepine on feeding performance of Japanese medaka fish (*Oryzias latipes*) [J]. Chemosphere, 2010, 80(9): 1095-1100.
- [54] GAO P, MUNIR M, XAGORARAKI I. Correlation of tetracycline and sulfonamide antibiotics with corresponding resistance genes and resistant bacteria in a conventional municipal wastewater treatment plant[J]. Science of the Total Environment, 2012, 421: 173-183.
- [55] THIELE BRUHN S, BECK I C. Effects of sulfonamide and tetracycline antibiotics on soil microbial activity and microbial biomass[J]. Chemosphere, 2005, 59(4): 457-465.
- [56] ROBINSON P F, LIU Q T, RIDDLE A M, et al. Modeling the impact of direct phototransformation on predicted environmental concentrations (PECs) of propranolol hydrochloride in UK and US rivers[J]. Chemosphere, 2007, 66(4): 757-766.
- [57] 刘伟,王慧,陈小军,等.抗生素在环境中降解的研究进展[J].动物医学进展,2009,30(3):89-94.
- [58] WENK J, VON GUNTEN U, CANONICA S. Effect of dissolved organic matter on the transformation of contaminants induced by excited triplet states and the hydroxyl radical[J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(4): 1334-1340.

- [59] WANG L, XU H, COOPER W J, et al. Photochemical fate of beta-blockers in NOM enriched waters[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 426: 289-295.
- [60] EDHLUND B L, ARNOLD W A, MCNEILL K. Aquatic photochemistry of nitrofurantoin antibiotics[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(17): 5422-5427.
- [61] DIMOU A D, SAKKAS V A, ALBANIS T A. Metolachlor photodegradation study in aqueous media under natural and simulated solar irradiation[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2005, 53(3): 694-701.
- [62] HALLING SØRENSEN B, LYKKEBERG A, INGERSLEV F, et al. Characterisation of the abiotic degradation pathways of oxytetracyclines in soil interstitial water using LC-MS-MS[J]. *Chemosphere*, 2003, 50(10): 1331-1342.
- [63] GROOM C A, HALASZ A, PAQUET L, et al. Accumulation of HMX (octahydro-1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetrazocine) in indigenous and agricultural plants grown in HMX-contaminated anti-tank firing-range soil[J]. *Environmental Science & Technology*, 2002, 36(1): 112-118.
- [64] CANONICA S, JANS U, STEMMER K, et al. Transformation kinetics of phenols in water: photosensitization by dissolved natural organic material and aromatic ketones[J]. *Environmental Science & Technology*, 1995, 29(7): 1822-1831.
- [65] RICHARD C, VIALATON D, AGUER J P, et al. Transformation of monuron photosensitized by soil extracted humic substances; energy or hydrogen transfer mechanism? [J]. *Journal of Photochemistry & Photobiology A: Chemistry*, 1997, 111(1/2/3): 265-271.
- [66] VOLMER D A, HUI J P M. Study of erythromycin A decomposition products in aqueous solution by solid-phase microextraction/liquid chromatography/tandem mass spectrometry [J]. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 1998, 12(3): 123-129.
- [67] KUMMERER K, AL AHMAD A, MERSCH SUNDERMANN V. Biodegradability of some antibiotics, elimination of the genotoxicity and affection of wastewater bacteria in a simple test[J]. *Chemosphere*, 2000, 40(7): 701-710.
- [68] DOLLIVER H, GUPTA S, NOLL S. Antibiotic degradation during manure composting [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2008, 37(3): 1245-1253.
- [69] SCHLUSENER M P, BESTER K. Persistence of antibiotics such as macrolides, tiamulin and salinomycin in soil[J]. *Environmental Pollution*, 2006, 143(3): 565-571.
- 编辑: 陈锡超 (收稿日期: 2019-06-13)
- +++++
- (上接第 916 页)
- [20] MANAN A, CHIN Y H, GUO X, et al. Microwave assisted digestion followed by ICP-MS for determination of trace metals in atmospheric and lake ecosystem[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2017, 55: 1-10.
- [21] 李佳琦, 吴烨, 宋少洁, 等. 北京道路交通环境亚微米颗粒物元素组成特征及来源分析[J]. *环境科学学报*, 2015, 35(1).
- [22] 杨弘, 张君秋, 王维, 等. 太原市大气颗粒物中重金属的污染特征及来源解析[J]. *中国环境监测*, 2015, 31(2): 24-28.
- [23] 方冬青, 魏永杰, 黄伟, 等. 北京市 2014 年 10 月重霾污染特征及有机碳来源解析[J]. *环境科学研究*, 2016, 29(1): 12-19.
- [24] 王新, 聂燕, 陈红, 等. 兰州城区大气 PM<sub>2.5</sub> 污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2016, 37(5): 1619-1628.
- [25] 杨卫芬, 银燕, 魏玉香, 等. 霾天气下南京 PM<sub>2.5</sub> 中金属元素污染特征及来源分析[J]. *中国环境科学*, 2010, 30(1): 12-17.
- [26] 包良满, 雷前涛, 谈明光, 等. 上海地铁站台大气颗粒物中过渡金属研究[J]. *环境科学*, 2014, 35(6): 2052-2059.
- [27] MANAN A, GUO X, ZHAO X M. Determination and analysis of trace metals and surfactant in air particulate matter during biomass burning haze episode in Malaysia [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, 141: 219-229.
- [28] HASSANVAND M S, NADDAFI K, FARIDI S, et al. Characterization of PAHs and metals in indoor/outdoor PM<sub>10</sub>/PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>1</sub> in a retirement home and a school dormitory[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 527/528: 100-110.
- [29] LI H M, WANG J H, WANG Q G, et al. Chemical fractionation of arsenic and heavy metals in fine particle matter and its implications for risk assessment; a case study in Nanjing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, 103: 339-346.
- [30] DUAN J C, TAN J H. Atmospheric heavy metals and arsenic in China: situation, sources and control policies [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 74: 93-101.
- [31] 宋少洁, 吴烨, 蒋靖坤, 等. 北京市典型道路交通环境细颗粒物元素组成及分布特征[J]. *环境科学学报*, 2012, 32(1): 66-73.
- [32] GUNAWARDENA J, PRASANNA E, GODWIN A A, et al. Role of traffic in atmospheric accumulation of heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 54: 502-510.
- 编辑: 徐婷婷 (收稿日期: 2019-10-30)

