

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2020.0491

王龙, 朱丹, 曹云霄, 等. 2021. 北京市污水处理厂出水中药物和个人护理品的季节变化及其生态风险评价[J]. 环境科学学报 41(7): 2922–2932  
Wang L, Zhu D, Cao Y X, et al. 2021. Seasonal changes and ecological risk assessment of pharmaceutical and personal care products in the effluents of wastewater treatment plants in Beijing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae 41(7): 2922–2932

# 北京市污水处理厂出水中药物和个人护理品的季节变化及其生态风险评价

王龙<sup>1,2</sup>, 朱丹<sup>1</sup>, 曹云霄<sup>1</sup>, 于晓东<sup>1</sup>, 惠亚梅<sup>3</sup>, 李文超<sup>3</sup>, 王东红<sup>2,\*</sup>

1. 沈阳环境科学研究院, 辽宁省城市生态重点实验室, 沈阳 110167
2. 中国科学院生态环境研究中心, 中国科学院饮用水科学与技术重点实验室, 北京 100085
3. 中持依迪亚(北京)环境检测分析股份有限公司, 北京 100192

**摘要:** 由于污水处理厂出水中含有微量有机污染物, 这些污染物能够通过污水处理厂出水进入到水环境中, 对生态系统和人体健康存在潜在的威胁. 为探明污水处理厂出水中药物和个人护理品( Pharmaceutical and Personal Care Products, PPCPs) 在不同季节中的浓度分布及生态风险情况, 本研究于 2019 年的春季、夏季和秋季分别对北京市 5 座污水处理厂出水中 PPCPs 的赋存情况和浓度变化进行了调查分析, 并对其进行了生态风险评价. 结果表明: 5 座污水处理厂出水中 PPCPs 检出率为 100% 的化合物包括磺胺甲恶唑、克拉霉素、卡马西平、避蚊胺、美托洛尔、咖啡因、氧氟沙星和双氯芬酸; PPCPs 在不同季节中表现出一定的浓度分布差异, 其中磺胺嘧啶、磺胺甲恶唑、克拉霉素、吉非罗齐、苯扎贝特、氯贝酸、美托洛尔、普萘洛尔、卡马西平、甲氧苄啶、避蚊胺在春季出水中的浓度明显高于其在夏季和秋季出水中的浓度, 而双氯芬酸、甲芬那酸、氧氟沙星、诺氟沙星和咖啡因则在夏季出水中浓度要略高于其在春季和秋季出水中的浓度; 通过对 PPCPs 的生态风险评价发现, 避蚊胺在一个春季样品中为中风风险污染物, 在其他样品中均为低风险污染物, 磺胺甲恶唑和美托洛尔的最大 RQ 值分别为 0.09 和 0.08, 接近中风险, 其他 PPCPs 均为低风险污染物.

**关键词:** 污水处理厂; 药物和个人护理品; 浓度分布; 季节特征; 生态风险评价

文章编号: 0253-2468(2021)07-2922-11 中图分类号: X703, X820.4 文献标识码: A

## Seasonal changes and ecological risk assessment of pharmaceutical and personal care products in the effluents of wastewater treatment plants in Beijing

WANG Long<sup>1,2</sup>, ZHU Dan<sup>1</sup>, CAO Yunxiao<sup>1</sup>, YU Xiaodong<sup>1</sup>, HUI Yamei<sup>3</sup>, LI Wenchao<sup>3</sup>, WANG Donghong<sup>2,\*</sup>

1. Shenyang Academy of Environmental Sciences, Liaoning Provincial Key Laboratory for Urban Ecology, Shenyang 110167
2. Key Laboratory of Drinking Water Science and Technology, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085
3. CSD IDEA (Beijing) Environmental Test&Analysis Co., Ltd., Beijing 100192

**Abstract:** Due to the trace amount of organic pollutants in the effluents of wastewater treatment plants, the pollutants can enter the aquatic environment through the effluents. And as a result, posing a potential threat to the ecosystem and human health. In order to explore the concentration distributions and ecological risks of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) in the effluents of wastewater treatment plants in different seasons, we monitored the concentration of PPCPs in the effluents from 5 wastewater treatment plants in Beijing in spring, summer and autumn in 2019, and assessed the ecological risks. The results showed that sulfamethoxazole, clarithromycin, carbamazepine, DEET, metoprolol, caffeine, ofloxacin and diclofenac were all detected. PPCPs showed a certain concentration difference in different seasons. The concentrations of sulfadiazine, sulfamethoxazole, clarithromycin, gemfibrozil, bezafibrate, clofibric acid, metoprolol, propranolol, carbamazepine, trimethoprim and DEET in spring were significantly higher than those in summer and autumn, while the concentrations of diclofenac, mefenamic acid, ofloxacin, norfloxacin and caffeine in summer were slightly higher than those in spring and autumn. According to the ecological risk assessment of the PPCPs, DEET was a medium-risk pollutant in one spring sample and was low-risk pollutant in the other samples. The sulfamethoxazole and metoprolol were close to the medium-risk with the maximum RQ values of 0.09 and 0.08, respectively. The other PPCPs were all low-risk pollutants.

**Keywords:** wastewater treatment plants; PPCPs; concentration distribution; season characteristics; ecological risk assessment

收稿日期: 2020-10-18 修回日期: 2020-11-11 录用日期: 2020-11-11

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项( No.2018ZX07601-001)

作者简介: 王龙(1988—)男, E-mail: wanglong@syhky.com; \* 责任作者, E-mail: dhwang@rcees.ac.cn

## 1 引言 (Introduction)

药物和个人护理品 (Pharmaceuticals and personal care products, PPCPs) 因其种类繁多、使用量大近年来一直成为环境热点问题。PPCPs 广泛存在于水环境中,如在地表水、沉积物和地下水都有较高浓度的检出 (Lapworth *et al.*, 2012; Petrie *et al.*, 2015; Yang *et al.*, 2017),甚至在饮用水中 PPCPs 也有不同程度检出 (Benotti *et al.*, 2009; Yang *et al.*, 2017)。由于 PPCPs 可通过各种途径被持续不断地排放到水体中,而且大部分 PPCPs 具有强极性和不易挥发等特性,在水体中通常呈现出“假持久性”现象,并且 PPCPs 在生物体中具有累积效应,对水生态环境和人们健康都会产生一定的威胁 (Chen *et al.*, 2014; Archer *et al.*, 2017; Zhao *et al.*, 2017; Yan *et al.*, 2018)。

城市污水处理厂出水被认为是 PPCPs 进入水环境中的主要途径。城市污水处理厂的来水主要为生活污水、工业废水和医院废水,其中含有多种 PPCPs 类污染物,而传统的污水处理技术并不能完全去除这些 PPCPs,使得它们随污水处理厂出水排放到了水环境中,如 Li 等对北京市某污水处理厂出水中抗生素残留情况进行了调查,该污水处理厂采取厌氧-缺氧-好氧法 ( $A^2O$ ) -超滤-臭氧化作用的三级处理工艺对污水进行再生利用,结果表明在三级处理出水中检测到有喹诺酮类、磺胺类和大环内酯类抗生素的存在,其浓度分别为 123、25.9 和 24.7  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ,并且氧氟沙星和红霉素对水生生物的生态风险不容忽视 (Li *et al.*, 2013);同样在北京市某采取  $A^2O$ -膜生物反应器 (MBR) -臭氧次氯酸消毒为主要工艺的污水处理厂出水中有多达 90 种 PPCPs 被检出,其中磺胺甲恶唑和美托洛尔浓度分别高达 106 和 165  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ,并且对人体健康和生态环境都具有潜在的风险 (Zhang *et al.*, 2020);在厦门市某污水处理厂 ( $A^2O$ -紫外消毒) 出水中也有 19 种 PPCPs 检出,其中氧氟沙星和诺氟沙星的检出浓度较高,平均浓度分别为 129 和 78.1  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$  (Ashfaq *et al.*, 2017)。除此之外,在济南、天津、西安、重庆、上海等国内主要城市污水处理厂出水中同样有 PPCPs 检出,这些污水处理厂主要采取传统活性污泥法、 $A^2O$ 、MBR、曝气生物滤池、氧化沟等污水处理技术,其出水中苯扎贝特、氯贝酸、卡马西平、咖啡因、甲芬那酸的检出率均在 50% 以上,并且发现卡

马西平具有难降解性,是污水处理厂出水中普遍存在的污染物 (Li *et al.*, 2015);磺胺甲恶唑、诺氟沙星、氧氟沙星、克拉霉素、红霉素和美托洛尔在上述城市污水处理厂出水中的检出浓度较高,分别为 465.6、260.4、831.4、214.6、473.6 和 335.9  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$  (Ben *et al.*, 2018)。

有研究表明由于季节变化,PPCPs 在污水处理厂出水中的赋存情况会有不同,如氧氟沙星、美托洛尔、咖啡因等 22 种 PPCPs 在厦门市污水处理厂出水中浓度存在明显的季节变化,PPCPs 在 2 月出水中浓度要高于其在 8 月出水中浓度 (Sun *et al.*, 2016);咖啡因、苯并异噻唑酮、三氯生等 12 种 PPCPs 在松花江流域污水处理厂出水中浓度同样存在明显的季节差异 (Li *et al.*, 2018),这与 Zhao 等对个人保健品苯并三唑的研究结果类似 (Zhao *et al.*, 2017)。在北京,已有相关研究表明在北京市某污水处理厂出水中部分喹诺酮类、磺胺类和大环内酯类抗生素浓度在冬春季节高于夏秋季节 (Li *et al.*, 2013),这与 Sui 等对北京市两座污水处理厂出水中氯霉素、苯扎贝特和美托洛尔的研究结果较相近 (Sui *et al.*, 2011)。虽然目前关于 PPCPs 浓度在污水处理厂出水中季节变化的研究已有开展,但是 PPCPs 种类繁多,当前的研究仅报道了小部分典型的 PPCPs 在出水中的季节变化情况,尤其对于北京市来讲,对用量大、社会关注度较高的典型 PPCPs 在污水处理厂出水中浓度的季节变化研究还至今没有系统开展。因此,本研究选取了北京市 5 座典型污水处理厂,以用量大、社会关注度较高的 10 大类共计 17 种 PPCPs 为目标分析物,于 2019 年春季、夏季和秋季分别采集 5 座污水处理厂出水样品,调查这 17 种 PPCPs 在污水处理厂出水中的检出和浓度分布情况,并对其进行了生态风险评价,以期对不同季节污水处理厂出水中 PPCPs 的赋存情况做一个初步研究,为相关部门制定相应的管控政策提供数据支撑。

## 2 材料与方法 (Materials and methods)

### 2.1 样品采集

于 2019 年 5 月、7 月和 9 月按春季、夏季和秋季分 3 次采集了北京市 5 座污水处理厂出水样品,水厂编号分别为 A、B、C、D、E。每个月以平行双样的方式采集 2 个出水样品,每个点位采集 1 L 水样,样品采集后装入棕色玻璃瓶,在当日进行过滤和固相

萃取等前处理过程.

## 2.2 实验材料

本研究选取了 10 大类共计 17 种 PPCPs 为目标分析物,包括磺胺类抗生素 2 种,为磺胺嘧啶和磺胺甲恶唑;非甾体抗炎药 2 种,为双氯芬酸和甲芬那酸;喹诺酮类抗生素 2 种,为氧氟沙星和诺氟沙星;大环内酯类抗生素 2 种,为红霉素和克拉霉素;血脂调节剂 3 种,为吉非罗齐、苯扎贝特、氯贝酸; $\beta$ -受体阻断药 2 种,为美托洛尔和普萘洛尔;抗精神病药 1 种,为卡马西平;其他 PPCPs 3 种,包括磺胺增效剂、驱虫剂和生物碱各 1 种,分别为甲氧苄啶、避蚊胺和咖啡因;进样内标物为阿特拉津- $^{13}\text{C}_3$ ,上述标准品均购于德国 Dr. Ehrenstorfer 公司,纯度 $\geq 98\%$ .净化内标物红霉素- $\text{C}^{13}$ 、环丙沙星- $\text{D}_8$ 和避蚊胺- $\text{D}_6$ 购于美国 Cambridge Isotope Laboratories 公司.其他溶剂如甲醇、乙腈、甲酸等为色谱纯,实验用高纯水由 Milli-Q 装置( Millipore, 法国) 制备.

## 2.3 样品前处理方法

样品前处理方法参照先前报道的方法(Zhang *et al.*, 2018).将水样用玻璃纤维滤膜(使用前经 450  $^{\circ}\text{C}$  灼烧 4 h) 过滤.过滤后的 1 L 水样,加入 500 mg  $\text{Na}_2\text{EDTA}$  25 mg 抗坏血酸,并用盐酸调节 pH 值至 4~5,再加入 50 ng 的净化内标液,混合均匀,老化 30 min.采用固相萃取(Solid Phase Extraction, SPE) 对加入内标液的水样进行净化和富集.固相萃取采取 HLB 柱(Waters, 美国),SPE 小柱分别用 10 mL 甲醇、10 mL 高纯水、10 mL 高纯水(pH=4~5) 依次进行活化和平衡,而后将含有内标的水样以 5~10  $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$  的流速通过 SPE 小柱,待水样将近全部通过 SPE 小柱后,用 10 mL 高纯水清洗盛水样的容器内壁,以清洗容器内壁残留的目标分析物和内标物,待水样全部通过 SPE 小柱后,继续对 SPE 小柱抽真空以除去水分.最后用 8 mL 甲醇洗脱小柱,洗脱液经氮吹后用含 0.025% 甲酸的甲醇水(1/1) 溶液定容至 500  $\mu\text{L}$ ,加入 50 ng 进样内标液,过 0.22  $\mu\text{m}$  针筒滤膜后,上机待测.

## 2.4 仪器分析方法

采用高效液相色谱(LC-20ADXR 岛津公司)串联质谱(API3200 Qtrap Applied biosystems 公司) 联用仪对目标化合物进行定量分析,色谱柱为 Waters BEH-C18 液相色谱柱(3.5  $\mu\text{m}\times 3.0\text{ mm}\times 150\text{ mm}$ ).

色谱条件:正离子模式下流动相 A 为高纯水(含 0.01% 的甲酸) B 为甲醇,流速为 0.3  $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$  进样体

积为 10  $\mu\text{L}$ ,柱温为 30  $^{\circ}\text{C}$ .梯度洗脱程序为 0~2 min 20%B 线性增加至 60%B,2~10 min 线性增加至 100%B,保留 4 min,最终以 20%B 平衡 6 min;负离子模式下流动相 A 为高纯水(含 10  $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$  的醋酸铵) B 为甲醇,流速为 0.35  $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$ ,进样体积为 10  $\mu\text{L}$ ,柱温为 30  $^{\circ}\text{C}$ ,梯度洗脱程序为 0~1 min 20%B 线性增加至 50%B,1~9 min 线性增加至 100%B,保留 5 min,最终以 20%B 平衡 6 min;抗生素模式下流动相 A 为高纯水(含 0.01% 甲酸) B 为乙腈,流速为 0.40  $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$ ,进样体积为 10  $\mu\text{L}$ ,柱温为 40  $^{\circ}\text{C}$ .梯度洗脱程序为 0~7 min 3%B 线性增加至 15%B,保留 2 min,9~12 min 线性增加至 30%B,保留 1 min,13~18 min 线性增加至 42%B,保留 1 min,最终以 3%B 平衡 8 min.

质谱离子源为电喷雾电离源(Electrospray ionization, ESI),扫描模式为多重反应监测.负离子模式喷雾电压为 -4500 V,干燥气温度 500  $^{\circ}\text{C}$ ,气帘气压力 20 psi,碰撞气压力 5 psi,辅助气 1 压力 40 psi,辅助气 2 压力 60 psi;正离子模式和抗生素模式喷雾电压为 5000 V,干燥气温度 500  $^{\circ}\text{C}$ ,气帘气压力 20 psi,碰撞气压力 5 psi,辅助气 1 压力 40 psi,辅助气 2 压力 60 psi.

## 2.5 质量控制

以同样品采样体积相同的超纯水作为全程序空白样品,用来检验样品在采样、运输、分析等全过程中因外界因素干扰所引起的实验数据异常,在每批次样品中设置 1 个全程序空白样品,结果表明所有全程序空白样品中 PPCPs 浓度均小于检出限.

分别取 300 mL 甲醇、乙腈、甲酸,氮吹浓缩至 200  $\mu\text{L}$ ,以同样品相同的检测条件进行上机检测,进行溶剂空白检验,每批次试剂做一个试剂空白样品,用以检验因试剂不纯而引起的实验误差,结果表明所有试剂空白中 PPCPs 浓度均小于检出限.

为了减少因样品采集过程引起的实验误差,本研究以平行双样的方式对样品进行采集,各 PPCPs 浓度的相对标准偏差为 9.7%~18.7%;为了验证前处理过程对 PPCPs 浓度的影响,在样品中加入红霉素- $\text{C}^{13}$ 、环丙沙星- $\text{D}_8$ 、避蚊胺- $\text{D}_6$  作为回收率指示物,其回收率分别为 64.5%~116%、78.3%~106% 和 60.6%~92.4%;为了验证各 PPCPs 定量分析方法的准确性,采用超纯水加标回收的方法测定了各目标化合物的回收率,其回收率为 63%~115%.

采取内标法对各目标化合物进行定量分析,以

减少因前处理过程和仪器响应情况及样品基质干扰对目标化合物定量的影响。

## 2.6 生态风险评价方法

生态风险评价是通过定量表征方法,科学评价有毒有害污染物对生态环境的潜在危害程度,其表征方法有多种途径,本研究采用商值法对 PPCPs 的生态风险进行评价,风险商(RQ)的计算方法见式(1)。

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

式中,MEC 为污染物的实测环境浓度,PEC 为污染物的预测浓度,PNEC 为污染物的预测无效应浓度。本研究使用 PPCPs 的实测浓度 MEC 计算其风险商,预测无效应浓度(PNEC)采用评估因子法确定,PPCPs 的慢性毒性数据(ChV)来自美国环保署开发的 Ecological Structure Activity Relationships Program (ECOSAR) 预测分析器,采用对鱼类、水蚤和绿藻最敏感的 ChV 来计算其相应的 PNEC 值,磺胺嘧啶、磺胺甲恶唑、红霉素、克拉霉素、甲氧苄啶、普萘洛尔、卡马西平、避蚊胺、美托洛尔、咖啡因、氧氟沙星、诺氟沙星、双氯芬酸、甲芬那酸、苯扎贝特、氯贝酸和吉非罗齐采取的 ChV 值分别为 0.101、0.068、0.747、0.31、0.069、0.227、0.096、0.492、0.745、0.358、114、116、4.22、0.315、0.618、22.9 和 0.889  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ;根据美国和欧盟关于风险评价的相关规定,当目标物的毒性数据来自 3 种生物的慢性毒性数据时,建议外推因子选取为 10,但是本着保守的原则,本研究选取了外推因子 100 确定各污染物的 PNEC (赵建亮等 2011),各 PPCPs 的 PNEC 值见表 1。一般来说,当  $RQ < 0.1$  时,为低风险, $0.1 \leq RQ < 1$  时,为中风险, $RQ \geq 1$  时,为高风险(郭强等,2014)。

## 3 结果与讨论 (Results and discussion)

### 3.1 目标化合物的检出率及与其他城市水厂出水中检出浓度对比

所分析目标化合物的检出率和浓度分布情况如表 1 所示。所选取的目标化合物均有检出,其中磺胺类抗生素磺胺甲恶唑、大环内酯类抗生素克拉霉素、抗精神病药卡马西平、驱蚊剂避蚊胺、 $\beta$ -受体阻断药美托洛尔、生物碱咖啡因、喹诺酮类抗生素氧氟沙星和非甾体抗炎药双氯芬酸为最高检出目标物,其在所有水厂出水中检出率均为 100%;磺胺类抗生素磺胺嘧啶、大环内酯类抗生素红霉素、磺胺增效剂甲氧苄啶、非甾体抗炎药甲芬那酸、血脂调

节剂苯扎贝特和氯贝酸为高检出目标物,在大部分样品中有检出,其中红霉素在各水厂出水中均在夏季和秋季有检出,在春季均为未检出; $\beta$ -受体阻断药普萘洛尔、喹诺酮类抗生素诺氟沙星和血脂调节剂吉非罗齐为低检出目标物,仅在个别样品中有检出,并且普萘洛尔均在春季检出,诺氟沙星均在夏季检出,吉非罗齐也主要在春季有检出。

目标化合物的检出浓度与近年广州、上海、南京等国内大中型城市污水处理厂出水中浓度的对比情况见表 2。其中咖啡因、磺胺甲恶唑、甲氧苄啶、克拉霉素、红霉素、普萘洛尔、吉非罗齐、苯扎贝特、氯贝酸、氧氟沙星和诺氟沙星的检出浓度总体上均低于其他城市污水处理厂出水中的检出浓度,这可能由于 2008—2017 年,北京市先后对污水处理厂进行了提标改造,由改造前多为  $A^2O$  或者氧化沟为主的污水二级处理工艺,升级为以生物滤池+过滤+脱色为主的三级处理工艺(冯硕等,2020),设计出水质主要依据《城市污水再生利用景观环境用水水质》(GB/T 18921—2002)和《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002);卡马西平和双氯芬酸与其他城市污水处理厂出水中的检出浓度相当;磺胺嘧啶、美托洛尔和避蚊胺的浓度略高于与其他城市污水处理厂出水中的检出浓度。

### 3.2 目标化合物浓度的季节变化情况

各目标化合物在 5 座污水处理厂出水中的季节总浓度变化情况如图 1 所示。其中磺胺嘧啶、磺胺甲恶唑、克拉霉素、吉非罗齐、苯扎贝特、氯贝酸、美托洛尔、普萘洛尔、卡马西平、甲氧苄啶、避蚊胺在春季出水中的浓度明显高于其在夏季和秋季出水中浓度,双氯芬酸、甲芬那酸、氧氟沙星、诺氟沙星和咖啡因在夏季出水中浓度要略高于其在春季和秋季出水中浓度,红霉素在春季均未检出,在夏季和秋季出水中均有检出,且浓度相当。

目标化合物在污水处理厂出水中的浓度高低受多种因素影响,由于不同 PPCPs 其所属药物类别不同,导致其在不同季节里用量不同,势必会影响其在污水处理厂进水中的浓度,进而影响其在出水中的浓度;另一个重要的影响因素是受温度的影响,由于目前在污水处理厂中主要的处理工艺均是生化处理,在冬季温度较低,这不利于活性污泥中微生物对目标化合物的降解,而在夏季,温度较高,生化降解效率增加,因此,受温度的影响,在冬季和春季,目标化合物在污水处理厂出水中的浓度较

表 1 目标化合物的预测无效应浓度(PNEC,  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ )及在各水厂出水中的浓度( $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ )和检出率

污 染 物	Table 1 PNEC ( $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ), concentrations ( $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ) and detection rate (%) of the target compounds in effluents from different wastewater treatment plants																									
	PNEC				水厂 A 中出水浓度及检出率				水厂 B 中出水浓度及检出率				水厂 C 中出水浓度及检出率				水厂 D 中出水浓度及检出率				水厂 E 中出水浓度及检出率					
	春季	夏季	秋季	检出率	春季	夏季	秋季	检出率	春季	夏季	秋季	检出率	春季	夏季	秋季	检出率	春季	夏季	秋季	检出率	春季	夏季	秋季	检出率		
磺胺嘧啶	15.00	16.7	—	5.4	66.7%	2.7	7.7	—	66.7%	4.0	3.6	5.9	100.0%	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	66.7%	
磺胺甲恶唑	6.40	64.3	9.6	19.7	100.0%	22.7	35.1	10.1	100.0%	31.4	19.9	32.2	100.0%	3.8	6.1	2.9	100.0%	6.9	8.1	2.7	—	—	—	—	—	100.0%
红霉素	1.00	—	8.8	4.4	66.7%	—	20.0	4.7	66.7%	—	19.6	61.5	66.7%	—	17.2	4.9	66.7%	—	11.8	5.9	—	—	—	—	—	66.7%
克拉霉素	9.30	9.7	2.3	2.6	100.0%	25.9	20.0	3.1	100.0%	138.8	40.0	45.7	100.0%	89.0	15.8	2.6	100.0%	49.0	15.5	4.7	—	—	—	—	—	100.0%
甲氧苄啶	18.00	36.3	—	5.6	66.7%	4.5	6.7	—	66.7%	19.1	5.1	18.1	100.0%	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	33.3%
普奈洛尔	9.50	—	—	—	0%	—	—	—	0%	—	—	—	—	1.3	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	33.3%
卡马西平	9.00	51.0	10.6	17.5	100.0%	36.5	34.1	9.8	100.0%	38.2	24.6	18.9	100.0%	54.9	19.2	12.8	100.0%	35.4	13.0	4.0	—	—	—	—	—	100.0%
避蚊胺	0.75	370.6	181.0	228.3	100.0%	114.4	147.0	76.0	100.0%	217.8	178.8	84.0	100.0%	598.1	224.0	183.8	100.0%	439.3	139.5	74.5	—	—	—	—	—	100.0%
美托洛尔	53.00	651.3	51.1	198.5	100.0%	180.8	336.0	110.0	100.0%	295.0	160.0	111.3	100.0%	510.0	27.0	76.3	100.0%	342.3	107.0	37.6	—	—	—	—	—	100.0%
咖啡因	4.87	27.1	101.5	34.1	100.0%	45.6	11.6	7.6	100.0%	17.8	24.0	9.9	100.0%	21.8	9.6	6.4	100.0%	17.9	33.5	11.3	—	—	—	—	—	100.0%
氧氟沙星	22000.00	31.9	13.2	9.4	100.0%	16.0	118.8	15.1	100.0%	105.2	71.0	96.8	100.0%	1.9	1.0	1.8	100.0%	2.3	4.6	4.0	—	—	—	—	—	100.0%
诺氟沙星	23000.00	—	6.7	—	33.3%	—	18.5	—	33.3%	—	16.2	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0%
双氯芬酸	0.90	12.1	12.4	34.1	100.0%	5.8	85.0	7.8	100.0%	55.3	68.8	79.5	100.0%	8.1	4.4	2.0	100.0%	8.7	28.2	2.9	—	—	—	—	—	100.0%
甲芬那酸	3.15	—	6.2	6.1	66.7%	2.1	7.0	6.3	100.0%	4.1	7.5	5.9	100.0%	4.9	12.0	10.7	100.0%	6.4	13.4	14.1	—	—	—	—	—	100.0%
苯扎贝特	1.73	9.4	4.4	6.5	100.0%	3.1	4.1	—	66.7%	—	—	1.5	33.3%	5.1	2.1	1.8	100.0%	3.6	1.5	—	—	—	—	—	—	66.7%
氯贝酸	330.00	3.6	1.5	2.3	100.0%	2.8	3.6	1.4	100.0%	0.6	2.0	2.1	100.0%	5.6	4.8	2.9	100.0%	3.8	1.2	—	—	—	—	—	—	66.7%
吉非罗齐	8.90	0.6	0.6	—	66.7%	—	—	—	0.0%	—	—	0.6	33.3%	0.9	—	—	—	0.9	—	—	—	—	—	—	—	33.3%

注：“—”代表未检出。

表 2 目标化合物与其他省市污水处理厂出水中的浓度对比

Table 2 Comparison of the concentrations of target compounds in effluents from wastewater treatment plants in other provinces and cities

目标分析物	地区	采样时间	浓度 <sup>a</sup> /(ng·L <sup>-1</sup> )	参考文献
咖啡因	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	25.1~1140	Yang <i>et al.</i> , 2017
	厦门	2016	2.42~686(143)	Wang <i>et al.</i> , 2018
	天津	2016	(25.77)	殷哲云等, 2018
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	0.5~376.5	Ben <i>et al.</i> , 2018
	海口	2015—2016	60~90	Huang <i>et al.</i> , 2020
	北京	2019	6.4~101.5(25.3)	本研究
磺胺甲恶唑	天津	2016	(1.64)	殷哲云等, 2018
	厦门	2016	7.50~37.5(23.1)	Ashfaq <i>et al.</i> , 2017
	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	13~186	Yang <i>et al.</i> , 2017
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	1.8~465.6	Ben <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	2.7~64.3(18.4)	本研究
甲氧苄啶	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	3.7~42.9	Yang <i>et al.</i> , 2017
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	0.5~52.2	Ben <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	n.d.~36.3(12.4)	本研究
磺胺嘧啶	天津	2016	(0.30)	殷哲云等, 2018
	厦门	2016	n.d.~6(2.95)	Ashfaq <i>et al.</i> , 2017
	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	n.d.~9.27	Yang <i>et al.</i> , 2017
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	1.1~55.3	Ben <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	n.d.~16.7(5.6)	本研究
克拉霉素	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	4.79~54.00	Yang <i>et al.</i> , 2017
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	1.3~214.6	Ben <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	2.3~138.8(31.0)	本研究
红霉素	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	1410~14400	Yang <i>et al.</i> , 2017
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	0.1~473.6	Ben <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	n.d.~61.5(15.9)	本研究
美托洛尔	天津	2016	(147.27)	殷哲云等, 2018
	厦门	2016	2.26~400(134)	Wang <i>et al.</i> , 2018
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	9.5~335.9	Ben <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	37.6~651.3(212.9)	本研究
普萘洛尔	天津	2016	(0.14)	殷哲云等, 2018
	厦门	2016	n.d.~2.16(0.92)	Wang <i>et al.</i> , 2018
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	0.3~5.3	Ben <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	n.d.~1.3(1.3)	本研究
卡马西平	广州等 3 市 <sup>c</sup>	2015	1.25~23.90	Yang <i>et al.</i> , 2017
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	0.2~55.0	Ben <i>et al.</i> , 2018
	厦门	2016	0.268~57.8(13.9)	Wang <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	4~54.9(25.4)	本研究
避蚊胺	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	18.2~339	Yang <i>et al.</i> , 2017
	海口	2015—2016	170~210	Huang <i>et al.</i> , 2020
	北京	2019	74.5~598.1(271.1)	本研究
双氯芬酸	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	n.d.~72	Yang <i>et al.</i> , 2017
	厦门	2016	5.68~31.6(26)	Ashfaq <i>et al.</i> , 2017
	南京等 3 市 <sup>d</sup>	2019	n.d.~55	Li <i>et al.</i> , 2019
	北京	2019	2.0~85(27.7)	本研究
吉非罗齐	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	n.d.~3.57	Yang <i>et al.</i> , 2017
	厦门	2016	n.d.~12.1(2.68)	Wang <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	n.d.~0.9(0.7)	本研究

续表

目标分析物	地区	采样时间	浓度 <sup>a</sup> /(ng·L <sup>-1</sup> )	参考文献
苯扎贝特	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	0.4~87.1	Ben <i>et al.</i> , 2018
	南京等 3 市 <sup>d</sup>	2019	n.d.~2.3	Li <i>et al.</i> , 2019
	北京	2019	n.d.~9.4(3.9)	本研究
氯贝酸	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	n.d.~6.85	Yang <i>et al.</i> , 2017
	南京等 3 市 <sup>d</sup>	2019	n.d.~2.6	Li <i>et al.</i> , 2019
	厦门	2016	n.d.~1.48(0.03)	Wang <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	n.d.~5.6(2.7)	本研究
氧氟沙星	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	13.3~371	Yang <i>et al.</i> , 2017
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	10.3~831.4	Ben <i>et al.</i> , 2018
	厦门	2016	2.88~384(142)	Wang <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	1.0~118.8(32.9)	本研究
诺氟沙星	广州等 3 市 <sup>b</sup>	2015	n.d.~36	Yang <i>et al.</i> , 2017
	重庆等 8 市 <sup>c</sup>	2015	1.6~260.4	Ben <i>et al.</i> , 2018
	常州	2015—2016	63.8~70.9	Ding <i>et al.</i> , 2020
	厦门	2016	n.d.~624(124)	Wang <i>et al.</i> , 2018
	北京	2019	n.d.~18.5(13.8)	本研究

注: a: 括号内为平均值; b: 包括广州市、东莞市、惠州市; c: 包括重庆市、北京市、大连市、上海市、青海省某市、江苏省某市、山西省某市、山东省某市; d: 包括南京市、合肥市、昆山市。

高,而在夏季和秋季,其在污水处理厂出水中的浓度较低(Clara *et al.*, 2004; Vieno *et al.*, 2005; Sui *et al.*, 2011; Xu *et al.*, 2011; Li *et al.*, 2013; Sun *et al.*, 2016);除此之外,在早期一些雨污合流的污水处理厂中,由于受降雨影响,导致进水浓度降低,并且由于污水流量增大,减少了水力停留时间,对目标化合物的去除效率降低,综合影响目标化合物在出水中的浓度(Sui *et al.*, 2011; Sun *et al.*, 2016),然而本研究中采样的污水处理厂均采取了雨污分流的方式对雨水进行单独处理,因此,降雨对目标化合物在出水中的浓度影响较小。

本研究中磺胺嘧啶、磺胺甲恶唑、克拉霉素、吉非罗齐、苯扎贝特、氯贝酸、美托洛尔、普萘洛尔、卡马西平、甲氧苄啶、避蚊胺在春季出水中的浓度明显高于其在夏季和秋季出水中浓度,这可能主要由于不同月份气温不同所致,为此本课题组对北京市历史气温进行了调查,据国家气象科学数据中心最新公开资料记载(国家气象科学数据中心, 2020),在本研究采样季中北京市春季、夏季和秋季的平均气温分别为 22.3、28.0 和 23.1 °C,这进一步证明了温度对 PPCPs 在污水处理厂出水中的浓度分布具有一定的影响;双氯芬酸、甲芬那酸、氧氟沙星、诺氟沙星和咖啡因在夏季出水中浓度要略高于其在春季和秋季出水中浓度,红霉素在春季均未检出,在夏季和秋季出水中均有检出,且浓度相当,这可

能主要由于上述 PPCPs 在夏季的用量较大,导致其在出水中的浓度较高,因为不同的 PPCPs 由于其所属药物类别不同,会由于季节不同而其用量不同,如生物碱咖啡因、个人防护品阿伏苯宗和苯并异噻唑酮等、广谱抗菌剂三氯生和三氯卡班在夏季的用量明显高于其他季节(Sun *et al.*, 2014; Sun *et al.*, 2016; Zhao *et al.*, 2017; Li *et al.*, 2018),抗生素类药物在冬季用量要高于其他季节,同时人体血脂和血压在冬季均比其他季节偏高,致使血脂调节剂和抗高血压药物在冬季用量要普遍高于其他季节(Peter *et al.*, 2008; Sui *et al.*, 2011; Sun *et al.*, 2016)。

除此之外,总结了先前关于北京市污水处理厂出水中 PPCPs 浓度的相关报道,结果见表 3。从与历史数据的对比结果可见,在污水处理厂出水中,总体上目标化合物在冬春季的浓度高于其在夏秋季的浓度,这与本研究的结果较一致。但值得注意的是本研究中双氯芬酸、甲芬那酸、氧氟沙星、诺氟沙星和咖啡因在夏季出水中浓度要略高于其在春季和秋季出水中浓度,这与先前研究(表 3)有一定的差异性,这需要在后续的研究中进一步去证实。

### 3.3 目标化合物的生态风险评价

对各 PPCPs 的 RQ 值进行了计算,结果表明避蚊胺在 D 水厂春季样品中的 RQ 值为 0.12,为中风险污染物,在其他样品中均为低风险污染物;磺胺甲恶唑和美托洛尔的最大 RQ 值分别为 0.09 和

0.08,接近中风险,均为 A 水厂春季样品;其他 PPCPs 均为低风险污染物.因此,避蚊胺、磺胺甲恶

唑和美托洛尔应加以重视,并加强日常监测,注意冬春季其在出水中的生态风险情况.

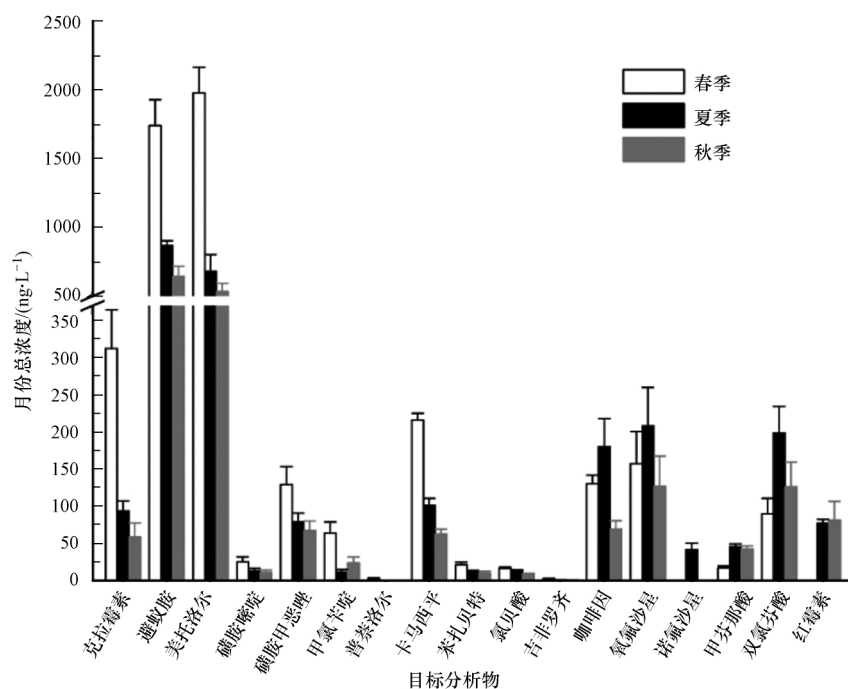


图 1 目标化合物月份总浓度

Fig.1 Total monthly concentration of the target compounds

表 3 不同季节中北京市污水处理厂出水中目标化合物的浓度变化情况

Table 3 The changes of the concentration of target compounds in effluents from wastewater treatment plants of Beijing in different seasons

目标分析物	采样年份	浓度 <sup>a</sup> /(ng·L <sup>-1</sup> )				参考文献
		春季	夏季	秋季	冬季	
磺胺甲恶唑	2010	/	/	156.88	/	赵高峰等 2011
	2010	130~460	/	/	/	Gao <i>et al.</i> , 2012
	2011	/	/	/	100~250	Qi <i>et al.</i> , 2015
	2012	/	/	26~64.8	/	Wang <i>et al.</i> , 2015
	2016	/	/	/	25~366	Zhang <i>et al.</i> , 2018
	2018	/	/	/	81.53~582.09	Liu <i>et al.</i> , 2019
	2019	3.8~64.3( 25.8)	6.1~35.1( 15.8)	2.7~32.2( 13.5)	/	本研究
甲氧苄啶	2008	/	140	/	/	Sui <i>et al.</i> , 2010
	2010	/	/	192.89	/	赵高峰等 2011
	2011	200~370	/	/	/	Qi <i>et al.</i> , 2015
	2012	/	/	n.d.	/	Wang <i>et al.</i> , 2015
	2016	/	/	/	4.3~427.8	Zhang <i>et al.</i> , 2018
	2018	/	/	/	60.98~140.37	Liu <i>et al.</i> , 2019
	2019	n.d.~36.3( 16)	n.d.~6.7( 5.9)	n.d.~18.1( 11.9)	/	本研究
避蚊胺	2008	/	150	/	/	周海东等 2009
	2011	77~170	/	/	/	Qi <i>et al.</i> , 2015
	2012	/	/	0.766~0.95	/	Wang <i>et al.</i> , 2015
	2016	/	/	/	22.6~409.7	Zhang <i>et al.</i> , 2018
	2019	114.4~598.1( 348)	147~224( 174.1)	74.5~228.3( 129.3)	/	本研究



续表

目标分析物	采样年份	浓度 <sup>a</sup> /(ng·L <sup>-1</sup> )				参考文献
		春季	夏季	秋季	冬季	
卡马西平	2008	/	290	/	/	周海东等,2009
	2008	/	69~120	/	/	Sui <i>et al.</i> ,2010
	2012	/	/	13~21.1	/	Wang <i>et al.</i> ,2015
	2016	/	/	/	43.4~672.5	Zhang <i>et al.</i> ,2018
	2019	35.4~54.9 (43.2)	10.6~34.1 (20.3)	4.0~18.9 (12.6)	/	本研究
美托洛尔	2008	/	60~180	/	/	Sui <i>et al.</i> ,2010
	2009—2010	≈120	≈60	≈65	/	Sui <i>et al.</i> ,2011
	2012	/	/	62~166	/	Wang <i>et al.</i> ,2015
	2016	/	/	/	16.1~838.9	Zhang <i>et al.</i> ,2018
	2016—2017	/	/	/	12.3~923(354)	Duan <i>et al.</i> ,2018
2019	n.d.~1.4 (1.4)	n.d.	n.d.	/	本研究	
苯扎贝特	2008	/	4.7	/	/	Sui <i>et al.</i> ,2010
	2009—2010	≈13	≈5	≈2	/	Sui <i>et al.</i> ,2011
	2012	/	/	n.d.	/	Wang <i>et al.</i> ,2015
	2016	/	/	/	2.4~81.5	Zhang <i>et al.</i> ,2018
	2019	n.d.~9.4 (4.2)	n.d.~4.4(3.0)	n.d.~6.5 (3.3)	/	本研究
咖啡因	2010	/	/	78.01	/	赵高峰等,2011
	2008	/	170	/	/	周海东等,2009
	2008	/	15	/	/	Sui <i>et al.</i> ,2010
	2011	25~2340	/	/	/	Qi <i>et al.</i> ,2015
	2016	/	/	/	35.6~1790.9	Zhang <i>et al.</i> ,2018
	2019	17.8~45.6(26.1)	9.6~101.5(36)	6.4~34.1(13.9)	/	本研究
双氯芬酸	2008	/	80	/	/	周海东等,2009
	2008	/	204	/	/	Sui <i>et al.</i> ,2010
	2011	140~300	/	/	/	Qi <i>et al.</i> ,2015
		5.8~55.3 (18)	4.4~85 (39.8)	2.0~79.5 (25.3)	/	本研究
氧氟沙星	2008	/	528	/	/	Jia <i>et al.</i> ,2012
	2011	(2318)	(1250)	/	/	Li <i>et al.</i> ,2013
	2019	1.9~105.2 (31.5)	1.0~118.8 (41.7)	1.8~96.8 (25.4)	/	本研究
诺氟沙星	2008	/	256	/	/	Jia <i>et al.</i> ,2012
	2011	(2166)	(1244)	/	/	Li <i>et al.</i> ,2013
	2019	n.d.	n.d.~18.5 (13.8)	n.d.	/	本研究

注: a: 括号内为平均值.

#### 4 结论 (Conclusions)

1) 本文选取的 PPCPs 在 5 座污水处理厂出水中均有检出,检出率为 100% 的 PPCPs 包括磺胺甲恶唑、克拉霉素、卡马西平、避蚊胺、美托洛尔、咖啡因、氧氟沙星和双氯芬酸.

2) 目标 PPCPs 在北京市污水处理厂出水中存在明显的季节变化,其中磺胺嘧啶、磺胺甲恶唑、克拉霉素、吉非罗齐、苯扎贝特、氯贝酸、美托洛尔、普萘洛尔、卡马西平、甲氧苄啶、避蚊胺在春季出水中

的浓度明显高于其在夏季和秋季出水中浓度,双氯芬酸、甲芬那酸、氧氟沙星、诺氟沙星和咖啡因在夏季出水中浓度要略高于其在春季和秋季出水中浓度.红霉素在春季均为未检出,在夏季和秋季出水中均有检出,且浓度相当.

3) 通过对目标 PPCPs 的生态风险评价发现,避蚊胺在 D 水厂春季样品中为中风险污染物,在其他样品中均为低风险污染物;磺胺甲恶唑和美托洛尔的最大 RQ 值分别为 0.09 和 0.08,接近中风险;其他 PPCPs 均为低风险污染物.

责任作者简介: 王东红(1968—),女,研究员,主要研究饮用水和地表水中持久性有机污染物的赋存形态和潜在风险污染物的筛查研究和风险评价。

#### 参考文献(References):

- Archer E, Petrie B, Kasprzyk-Hordern B, *et al.* 2017. The fate of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs), endocrine disrupting contaminants (EDCs), metabolites and illicit drugs in a WWTW and environmental waters [J]. *Chemosphere*, 174: 437-446
- Ashfaq M, Li Y, Wang Y, *et al.* 2017. Occurrence, fate, and mass balance of different classes of pharmaceuticals and personal care products in an anaerobic-anoxic-oxic wastewater treatment plant in Xiamen, China [J]. *Water Research*, 123: 655-667
- Ben W, Zhu B, Yuan X, *et al.* 2018. Occurrence, removal and risk of organic micropollutants in wastewater treatment plants across China: Comparison of wastewater treatment processes [J]. *Water Research*, 130: 38-46
- Benotti M J, Trenholm R A, Vanderford B J, *et al.* 2009. Pharmaceuticals and endocrine disrupting compounds in U. S. drinking water [J]. *Environmental Science & Technology*, 43(3): 597-603
- Chen H, Zha J, Liang X, *et al.* 2014. Effects of the human antiepileptic drug carbamazepine on the behavior, biomarkers, and heat shock proteins in the Asian clam *Corbicula fluminea* [J]. *Aquatic Toxicology*, 155: 1-8
- Clara M, Stremm B, Ausserleitner M, *et al.* 2004. Comparison of the behaviour of selected micropollutants in a membrane bioreactor and a conventional wastewater treatment plant [J]. *Water Science & Technology*, 50(5): 29-36
- Ding G, Chen G, Liu Y, *et al.* 2020. Occurrence and risk assessment of fluoroquinolone antibiotics in reclaimed water and receiving groundwater with different replenishment pathways [J]. *Science of the Total Environment*, 738: 139802
- Duan L, Zhang Y, Wang B, *et al.* 2018. Occurrence, elimination, enantiomeric distribution and intra-day variations of chiral pharmaceuticals in major wastewater treatment plants in Beijing, China [J]. *Environmental Pollution*, 239: 473-482
- 冯硕, 李振川, 冯凯. 2020. 北京市中心城区再生水厂技术路线总结及探讨 [J]. *给水排水*, 46(2): 20-24
- Gao L, Shi Y, Li W, *et al.* 2012. Occurrence of antibiotics in eight sewage treatment plants in Beijing, China [J]. *Chemosphere*, 86: 665-671
- 国家气象科学数据中心. 2020. 中国地面国际交换站气候资料月值数据集 [EB/OL]. 2020-11-11. [http://data.cma.cn/data/search.html?dataCode=SURF\\_CLI\\_CHN\\_MUL\\_MON\\_CES](http://data.cma.cn/data/search.html?dataCode=SURF_CLI_CHN_MUL_MON_CES)
- 郭强, 田慧, 毛潇萱, 等. 2014. 珠江河口水域有机磷农药水生生态系统风险评价 [J]. *环境科学*, 35(3): 1029-1034
- Huang Y H, Dsikowitzky L, Yang F, *et al.* 2020. Emerging contaminants in municipal wastewaters and their relevance for the surface water contamination in the tropical coastal city Haikou, China [J]. *Estuarine Coastal and Shelf Science*, 235: 106611
- Jia A, Wan Y, Xiao Y, *et al.* 2012. Occurrence and fate of quinolone and fluoroquinolone antibiotics in a municipal sewage treatment plant [J]. *Water Research*, 46: 387-394
- Lapworth D J, Baran N, Stuart M E, *et al.* 2012. Emerging organic contaminants in groundwater: A review of sources, fate and occurrence [J]. *Environmental Pollution*, 163: 287-303
- Li W, Shi Y, Gao L, *et al.* 2013. Occurrence and removal of antibiotics in a municipal wastewater reclamation plant in Beijing, China [J]. *Chemosphere*, 92(4): 435-444
- Li W L, Zhang Z F, Ma W L, *et al.* 2018. An evaluation on the intra-day dynamics, seasonal variations and removal of selected pharmaceuticals and personal care products from urban wastewater treatment plants [J]. *Science of the Total Environment*, 640-641: 1139-1147
- Li Y, Niu X, Yao C, *et al.* 2019. Distribution, removal, and risk assessment of pharmaceuticals and their metabolites in five sewage plants [J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 16: 4729
- Li Z, Xiang X, Li M, *et al.* 2015. Occurrence and risk assessment of pharmaceuticals and personal care products and endocrine disrupting chemicals in reclaimed water and receiving groundwater in China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 119: 74-80
- Liu X, Zhang G, Liu Y, *et al.* 2019. Occurrence and fate of antibiotics and antibiotic resistance genes in typical urban water of Beijing, China [J]. *Environmental Pollution*, 246: 163-173
- Peter D, Matus F, Faranak A, *et al.* 2008. Outpatient antibiotic use in the four administrations of the UK: cross-sectional and longitudinal analysis [J]. *Journal of Antimicrobial Chemotherapy*, 62: 1441-1447
- Petrie B, Barden R, Kasprzyk-Hordern B. 2015. A review on emerging contaminants in wastewaters and the environment: Current knowledge, understudied areas and recommendations for future monitoring [J]. *Water Research*, 72: 3-27
- Qi W, Singer H, Berg M, *et al.* 2015. Elimination of polar micropollutants and anthropogenic markers by wastewater treatment in Beijing, China [J]. *Chemosphere*, 119: 1054-1061
- Sun Q, Huang J, Deng S, *et al.* 2010. Occurrence and removal of pharmaceuticals, caffeine and DEET in wastewater treatment plants of Beijing, China [J]. *Water Research*, 44: 417-426
- Sun Q, Huang J, Deng S, *et al.* 2011. Seasonal variation in the occurrence and removal of pharmaceuticals and personal care products in different biological wastewater treatment processes [J]. *Environmental Science & Technology*, 45(8): 3341-3348
- Sun Q, Li M, Ma C, *et al.* 2016. Seasonal and spatial variations of PPCP occurrence, removal and mass loading in three wastewater treatment plants located in different urbanization areas in Xiamen, China [J]. *Environmental Pollution*, 208: 371-381
- Sun Q, Li Y, Li M, *et al.* 2016. PPCPs in Jiulong River estuary (China): Spatiotemporal distributions, fate, and their use as chemical markers of wastewater [J]. *Chemosphere*, 150: 596-604
- Sun Q, Lv M, Hu A, *et al.* 2014. Seasonal variation in the occurrence and removal of pharmaceuticals and personal care products in a wastewater treatment plant in Xiamen, China [J]. *Journal of*

- Hazardous Materials , 277: 69-75
- Vieno N M , Tuhkanen T , Kronberg L. 2005. Seasonal variation in the occurrence of pharmaceuticals in effluents from a sewage treatment plant and in the recipient water [J]. Environmental Science & Technology , 39( 21) : 8220-8226
- Wang Y , Li Y , Hu A , et al. 2018. Monitoring , mass balance and fate of pharmaceuticals and personal care products in seven wastewater treatment plants in Xiamen City , China [J]. Journal of Hazardous Materials , 354: 81-90
- Wang Z , Zhang X H , Huang Y , et al. 2015. Comprehensive evaluation of pharmaceuticals and personal care products ( PPCPs) in typical highly urbanized regions across China [J]. Environmental Pollution , 204: 223-232
- Xu B , Mao D , Luo Y , et al. 2011. Sulfamethoxazole biodegradation and biotransformation in the water - sediment system of a natural river [J]. Bioresource Technology , 102: 7069-7076
- Yan S , Wang M , Zha J , et al. 2018. Environmentally relevant concentrations of carbamazepine caused endocrine-disrupting effects on nontarget organisms , Chinese Rare Minnows ( *Gobiocypris rarus*) [J]. Environmental Science & Technology , 52( 2) : 886-894
- Yang Y , Ok Y S , Kim K H , et al. 2017. Occurrences and removal of pharmaceuticals and personal care products ( PPCPs) in drinking water and water/sewage treatment plants: A review [J]. Science of the Total Environment , 596-597: 303-320
- Yang Y Y , Liu W R , Liu Y S , et al. 2017. Suitability of pharmaceuticals and personal care products ( PPCPs) and artificial sweeteners ( ASs) as wastewater indicators in the Pearl River Delta , South China [J]. Science of the Total Environment , 590-591: 611-619
- 殷哲云 , 闵露娟 , 金立涛 , 等. 2018. HPLC-MS/MS 测定 3 类污水处理厂污泥及污水中的 8 种药物 [J]. 环境化学 , 37( 8) : 1720-1727
- Zhang Y , Duan L , Wang B , et al. 2020. Efficient multiresidue determination method for 168 pharmaceuticals and metabolites: Optimization and application to raw wastewater , wastewater effluent , and surface water in Beijing , China [J]. Environmental Pollution , 261: 114113
- Zhang Y , Wang B , Cagnetta G , et al. 2018. Typical pharmaceuticals in major WWTPs in Beijing , China: Occurrence , load pattern and calculation reliability [J]. Water Research , 140: 291-300
- 赵高峰 , 杨林 , 周怀东 , 等. 2011. 北京某污水处理厂出水中药物和个人护理品的污染现状 [J]. 中国环境监测 , 27( S1) : 63-67
- Zhao J L , Furlong E T , Schoenfuss H L , et al. 2017. Uptake and disposition of select pharmaceuticals by bluegill exposed at constant concentrations in a flow-through aquatic exposure system [J]. Environmental science & Technology , 51( 8) : 4434-4444
- 赵建亮 , 应光国 , 魏东斌 , 等. 2011. 水体和沉积物中毒害污染物的生态风险评价方法体系研究进展 [J]. 生态毒理学报 , 6( 6) : 577-588
- Zhao X , Zhang Z F , Xu L , et al. 2017. Occurrence and fate of benzotriazoles UV filters in a typical residential wastewater treatment plant in Harbin , China [J]. Environmental Pollution , 227: 215-222
- 周海东 , 黄霞 , 王晓琳 , 等. 2009. 两种工艺对污水再生水中微量有机物的去除效果 [J]. 中国环境科学 , 29( 8) : 816-821