

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2017071901

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.
WANG Qi, WU Junmei, PENG Jingqian, et al. Research advances in pharmaceuticals and personal care products in drinking water system[J]. Environmental Chemistry, 2018, 37(3): 453-461.

饮用水系统中药物和个人护理用品的研究进展*

王 琦^{1,2} 武俊梅^{2**} 彭晶倩³ 蒲 帅^{1,2} 吴振斌²

(1. 武汉理工大学资源与环境工程学院, 武汉, 430070; 2. 中国科学院水生生物研究所, 淡水生态与生物技术国家重点实验室, 武汉, 430072; 3. 武汉市环境保护科学研究院, 武汉, 430015)

摘 要 药物和个人护理用品(pharmaceuticals and personal care products, PPCPs)作为一类新兴的有机污染物备受研究者的关注, 未被去除的 PPCPs 母体或转化/降解产物可能进入饮用水系统, 威胁人体健康. 本文分析了 PPCPs 在饮用水源、出厂水、供水管网和龙头水中的赋存状况, 总结了饮用水厂各处理工艺对 PPCPs 的去除效果. PPCPs 在饮用水系统中的浓度较低, 一般在 $\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 到 $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$. 饮用水厂处理工艺能有效去除特定 PPCPs, 其中氧化、活性炭及膜处理等深度处理工艺对 PPCPs 去除效果较好. 加强对饮用水系统中 PPCPs 的来源控制、过程管理和末端监督等是将来的重要研究方向.

关键词 饮用水, 药物和个人护理用品(PPCPs), 来源, 赋存状况, 处理工艺, 新兴的有机污染物.

Research advances in pharmaceuticals and personal care products in drinking water system

WANG Qi^{1,2} WU Junmei^{2**} PENG Jingqian³ PU Shuai^{1,2} WU Zhenbin²

(1. School of resources and Environmental Engineering, Wuhan University of Technology, Wuhan, 430070, China;
2. State Key Laboratory of Freshwater Ecology and Biotechnology, Institute of Hydrobiology, Chinese Academy of Sciences, Wuhan, 430072, China; 3. Wuhan Academy of Environmental Sciences, Wuhan, 430015, China)

Abstract: Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) are considered as a class of emerging organic pollutants. Some PPCPs or their transformation/degradation products are not removed and can flow into the drinking-water system, and thus threat the human health. In this review, occurrence of PPCPs in the source of drinking-water, finished water, pipe and tap water is analyzed, and the removal efficiency of PPCPs by drinking-water treatment technologies is summarized. The concentrations of PPCPs in drinking-water system are low, from $\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$ to $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$. Some PPCPs can be removed by the advanced treatment technology such as oxidation process, activated carbon process and membrane treatment technology. It will be an important research direction in the future to strengthen the source control, process management and terminal water supervision of PPCPs in drinking water system.

Keywords: drinking water, pharmaceuticals and personal care products, sources, occurrence, drinking-water treatment technology, emerging organic pollutants.

2017 年 7 月 19 日收稿 (Received: July 19, 2017).

* 武汉市环境保护科学研究院“武汉市乡镇集中式饮用水源环境状况调查”项目和长江科学院开放研究基金 (CKWV2017536/KY) 资助.

Supported by the Authorized Project by Wuhan Academy of Environmental Sciences “Environmental Investigation on Centralized Drinking Water Sources of Villages and Towns in Wuhan” and the CRSRI Open Research Program (CKWV2017536/KY).

** 通讯联系人, Tel: 15623012639, E-mail: wujunmei@ihb.ac.cn

Corresponding author, Tel: 15623012639, E-mail: wujunmei@ihb.ac.cn

药物和个人护理用品 (pharmaceuticals and personal care products, PPCPs) 与人类的生活紧密相关, 包括药物, 如抗生素、止痛药等, 以及个人护理用品, 如香料、杀虫剂等. 随着社会的发展, PPCPs 被广泛使用^[1-2]. 到目前, 广泛应用于人类及动物疾病治疗和预防的药物约有 4000 多种, 且有逐年增长之势. 然而 PPCPs 具有较高的生物活性、缓慢的生物降解性和假性持续性, 长期暴露于环境, 会对人体健康产生威胁. 一方面, 部分 PPCPs 本身会通过饮用水和食物等渠道进入人体; 另一方面, 某些 PPCPs 会使细菌、病毒具有抗药性, 间接危害人体的健康. 1999 年 Daughton 等^[3] 提出 PPCPs 的环境问题后, 世界各国开始关注这一新兴的有机污染物, 并纷纷开展饮用水中 PPCPs 的调查与研究^[4-7]. 我国对 PPCPs 的研究起步较晚, 对饮用水中 PPCPs 的研究尚不够完善^[8].

本文主要对饮用水系统中 PPCPs 的来源与赋存状况进行概括, 并总结了饮用水厂常采用的深度处理工艺对 PPCPs 的去除效果.

1 饮用水系统中 PPCPs 的来源 (Sources of PPCPs in the drinking water system)

PPCPs 进入饮用水源的方式多种多样, 其中生活污水, 制药、医疗废水, 农牧渔养殖业废水是自然水体中 PPCPs 的主要来源 (图 1).

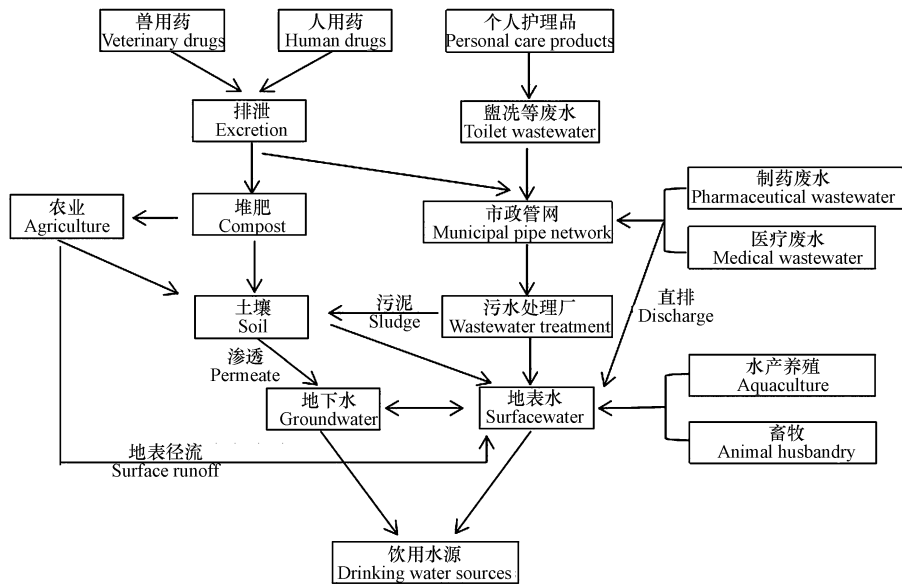


图 1 饮用水系统中 PPCPs 的来源
Fig.1 Source of PPCPs in the drinking water system

人类及兽用药是环境中药物的主要来源. 人体或动物摄入药物后, 在体内进行代谢的仅为一小部分, 其中大部分药物最终以其原始形态通过人体或动物排泄进入环境介质中. 有些药物进入人体或动物体后虽发生了一定程度的代谢, 但生成其共轭物而转化为活性更高却更稳定的物质^[9]. 近年来, 有研究表明全世界每年被滥用的抗生素占到 50%, 而在我国该比例占到约 80%, 我国滥用抗生素现象严重, 导致环境介质中抗生素的量高于其他国家和地区^[10].

PPCPs 生产废水及医院废水是环境中药物另一个主要来源. 我国是世界上公认的 PPCPs 生产大国, 其中抗生素类药物的年产量高达 2.5 万 t, 约占世界产量的 20%^[11]. 制药过程中产生大量有毒难降解的高浓度污水和残渣, 经过处理, 仍有较多药物没有被降解, 随出水进入市政污水管网或直接进入自然水体. 此外, 大量过期药物的不合理处置也是 PPCPs 进入环境介质的一个途径, 德国每年处理超过 1.6 万 t 的药品, 其中 60% 是通过直接丢进厕所或当作垃圾处理^[12]. 未得到处理的药物会大大提高环境介质中药物的含量.

农牧渔养殖业的废水也是环境介质药物的一个主要来源. 目前我国部分地区存在采用人或动物排泄物作为耕地肥料以及滥用农用抗生素的现象, 其中含有的药物可能随着养分进入土壤中, 并以面源污染的形式进入附近的地表水环境中^[13]. 有研究调查显示, 畜禽养殖和水产养殖场周边水体中抗生素的

含量明显高于其他水体,并且含量最多的目标物的种类与养殖业所用的抗生素种类一致^[14-15]。

个人护理用品进入环境介质的途径虽少,但更为直接.人类在进行洗浴或游泳、漂流等户外地表水中的活动时,所使用的化妆品等个护用品会绕过污水处理工艺直接进入地表水环境中.相比药物,个人护理用品中含有许多易挥发的成分(如麝香类),容易以气态形式进入环境介质中,造成更广泛的污染.

污水处理厂接纳各种污水与雨水等地表径流.由于 PPCPs 种类繁多,现有污水处理工艺对其的处理效率有限,使得污水处理厂出水中也有部分 PPCPs 被检出^[7,9].此外,污泥中吸附的 PPCPs 在污泥处理与处置过程中也会再次进入环境介质中,污染地表水乃至地下水.

因此,若要治理饮用水系统中的 PPCPs 污染,必须摸清它的来源,从源头上控制.减少 PPCPs 进入饮用水系统的途径,降低 PPCPs 的输入量是以后饮用水系统中 PPCPs 污染控制的一个方向.

2 饮用水系统中 PPCPs 的赋存状况 (Occurrence of PPCPs in the drinking water system)

2.1 地表饮用水源

随着检测方法和分析仪器的改进,越来越多的 PPCPs 在世界各地的地表饮用水源中检出^[1,4-7,10-13,15-22,24-25,27-29,30-42],到目前,有上百种 PPCPs 在我国地表饮用水源中检出,其浓度一般在 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ — $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 水平.地表饮用水源中 PPCPs 的分布表现出明显的时空分布不均^[6,16-17]。

空间的分布不均主要体现在:开展饮用水源中 PPCPs 调查主要集中在经济发达和较为发达(如美国东北部、西欧)或者人口密集(如中国东部沿海)的国家和地区;而且美国等西方发达国家对 PPCPs 的研究开展的更为广泛和深入.相比较我国对 PPCPs 的研究起步较晚,目前也只局限于黄河^[17]、长江^[17]、珠江^[18] 等大江大河以及东部沿海发达地区,对内陆湖泊及中西部地区的饮用水源研究不足.此外不同水系、不同地区的饮用水源中检出的 PPCPs 水平也呈现出较大的差异,这与人口密集程度、用药习惯以及河流流量、流速等因素有关.例如,布洛芬等非甾体抗炎药由于其出色的解热、镇痛、消炎作用,是全世界使用最多的药品之一,在全球范围的饮用水源中检出率普遍较高,但检出浓度却存在较大差异^[18,20].表 1 列出了目前已报道的地表饮用水源中部分 PPCPs 水平.

表 1 部分 PPCPs 在地表饮用水源中的存在状况
Table 1 Occurrence of some PPCPs in surface water sources

名称 Name	类别 Category	最大含量 Maximum Concentration/($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)	来源 Sources
布洛芬	非甾体抗炎药	84	美国密歇根湖 ^[20]
		416	中国黄河 ^[17]
		127	中国海河 ^[17]
		246	中国辽河 ^[17]
		25	加拿大多伦多 ^[21]
诺氟沙星	喹诺酮类抗生素	50	美国特洛伊 ^[22]
卡马西平	抗癫痫类药	10	美国密歇根湖 ^[20]
		32	法国罗纳省 ^[23]
		601	加拿大多伦多 ^[21]
三氯生	杀菌剂	37.8	希腊塞萨罗尼基 ^[24]
		1.2	美国拉斯维加斯 ^[25]
		734	美国加利福尼亚 ^[26]
阿替洛尔	β -受体阻滞剂	900	西班牙巴塞罗那 ^[27]
扑热息痛	解热镇痛抗炎药	71	法国罗纳省 ^[23]
氧氟沙星	喹诺酮类抗生素	18.06	意大利米兰 ^[28]
		13.2	中国江苏 ^[16]
红霉素	大环内脂类抗生素	4.62	意大利米兰 ^[28]
		29	中国长江重庆段 ^[29]
		2	西班牙 ^[30]
磺胺甲噁唑	磺胺类抗生素	246	意大利米兰 ^[28]
		6	中国长江 ^[31]
		12	美国拉斯维加斯 ^[25]
		28.7	中国珠江 ^[32]
		35.4	中国太湖 ^[33]

除了空间分布差异,PPCPs 还存在着明显的时间分布差异.以中国某地典型地表饮用水源为例^[16],PPCPs 的总质量浓度呈现出平水期>枯水期>丰水期.其主要原因是:该地 5 月份平水期进入农业、畜牧业的生产旺季,PPCPs 的使用量大增,加之雨水充足,大量 PPCPs 随着地表径流被冲刷到地表水环境中,进而进入地表饮用水源,使得 PPCPs 浓度增大.而丰水期质量浓度低于枯水期主要是因为水量的稀释作用.类似的,Lolic 等^[34]研究发现,由于降水的稀释,湿季 PPCPs 的检出率要明显低于干季.另外,Sun 等^[35]在研究中国九龙江流域 PPCPs 的归趋时也发现了 PPCPs 存在明显的时空分布差异.

2.2 地下水饮用水源

地下水一直作为人类重要的饮用水源,其质量直接影响人类饮用水的品质.近年来,频频有 PPCPs 从地下水中被检出的报道,引起了许多研究者的关注.相比地表水,PPCPs 进入地下水的途径较少,主要是受污染的地表水的回灌、管道的泄露、受污染土壤的渗流等.研究者调查发现,地下水中 PPCPs 浓度一般在 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ — $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$,种类较地表水少,其中卡马西平、咖啡因、磺胺甲恶唑和三氯生等一些难降解的 PPCPs 是检出频率最高的^[36-38].表 2 列出了近年来文献中报道的世界各地地下水中 PPCPs 的存在状况.

了解饮用水源中的 PPCPs 的存在特征,预测并选择环境介质中浓度较大、存在持久、危害较大的 PPCPs 作为优先控制污染物,对于控制 PPCPs 对饮用水系统的污染、应对 PPCPs 突发污染事件有着重要的意义.

表 2 部分 PPCPs 在地下水中的存在状况

Table 2 Occurrence of some PPCPs in groundwater sources			
名称 Name	类别 Category	最大含量 Maximum Concentration/ ($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)	来源 Sources
布洛芬	非甾体抗炎药	3110	美国爱荷华 ^[39]
		185	西班牙巴塞罗那 ^[40]
		34.15	美国拉斯维加斯 ^[38]
萘普生	非甾体抗炎药	10.4	法国罗纳省 ^[23]
咖啡因	精神类药品	348.3	西班牙巴塞罗那 ^[40]
		10.8	中国广州 ^[41]
		9.95	美国拉斯维加斯 ^[38]
双氯芬酸	非甾体抗炎药	3050	德国柏林 ^[42]
		477	西班牙图里亚 ^[43]
		4.35	中国广州 ^[41]
磺胺甲恶唑	磺胺类抗生素	3.0	法国波尔多 ^[24]
		117	西班牙图里亚 ^[43]
		124.5	中国广州 ^[32]
		170	美国加利福尼亚 ^[44]
卡马西平	抗癫痫类药	420	美国爱荷华 ^[39]
		62	美国马萨诸塞 ^[6]
		16.85	中国广州 ^[41]
		118	西班牙巴塞罗那 ^[40]

2.3 管网与龙头水中的 PPCPs

研究表明,一些国家和地区的管网和自来水中同样检出了不同程度的 PPCPs.早在 1998 年 Heberer^[45]等曾报道在德国柏林的龙头水中检测出了降固醇酸,其含量高达 $165\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$.喻峥嵘^[51]等在某地龙头水中检出了 5 种 PPCPs,其浓度仅为 $1\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右.Carmona^[43]等在西班牙图里亚地区的龙头水中检出了 16 种 PPCPs,浓度最高的布洛芬仅为 $39\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$.然而,此方面的研究相对较少,政府等相关部门也缺乏相应的检测与监督机构,因此,人们往往忽略管网与龙头水中存在的微量 PPCPs.管网和龙头水中 PPCPs 的浓度尽管很低,但作为饮用水系统的末端——人类的直接用水,关系到人类的身体健康问题,需要加强监管与控制,保证饮用水的安全.

3 饮用水厂处理工艺中的 PPCPs(PPCPs in the drinking water treatment technology)

常规的混凝-沉淀-过滤-消毒处理工艺对 PPCPs 的去除效果有限,Vieno^[46]等研究发现仅进行常规处理工艺,PPCPs 的去除率仅有 13%,大部分 PPCPs 都需要通过深度处理工艺才能有效去除.目前饮用水厂常采用的臭氧、活性炭、膜处理等深度处理工艺可以有效去除大部分 PPCPs^[22,47-48].我国目前使用的生活饮用水水质标准还未涉及到 PPCPs,因此有必要搞清楚饮用水处理过程中 PPCPs 的去除状况.

3.1 氧化

目前,氧化工艺有物理和化学两种方法.物理方法主要是紫外光氧化,化学方法最常用的氧化剂是臭氧等.有研究发现,物理方法氧化过程缓慢且效率不高,不及化学氧化^[49].Yuan^[50]等研究发现当紫外光强达 1272 mJ·cm⁻²时,苯海拉明、苯妥英、安替比林、布洛芬的降解率分别为 26.34%、87.75%、95.78%、27.40%.臭氧氧化可以通过氧化反应去除部分 PPCPs,但效率与 PPCPs 性质、水体中含有的其他有机物有关.其机理是:在饮用水 pH 条件下,臭氧以臭氧分子的形式靠自身强氧化能力破坏有机物分子结构^[51].Huerta 等^[27]提出,臭氧处理 PPCPs 是有选择性的,这与目标物所含的官能团有关,通常对不饱和脂肪烃和芳香类化合物比较有效.此外,氯有时也作为化学氧化的氧化剂^[52],但相比较,臭氧的氧化效果要优于氯氧化.氯氧化及臭氧氧化后部分 PPCPs 的去除率比较如图 3 所示^[24,26,40,53].

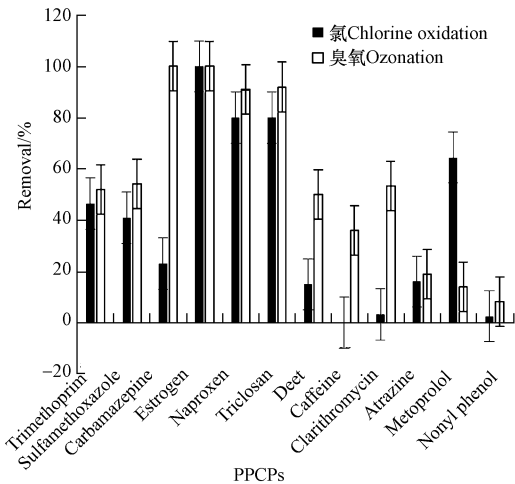


图 3 氯与臭氧氧化对部分 PPCPs 去除率比较
Fig.3 Comparison of PPCPs removal rates by chlorine and ozone oxidation

3.2 活性炭

活性炭吸附是目前最为常用的物理处理工艺,其工艺机理是对疏水性 PPCPs 产生吸附作用.活性炭对 PPCPs 的去除效果较好,稳定且无毒副产物.Grover 等^[54]采用粒状活性炭(GAC)试验发现,GAC 对美贝准林、吡啶美辛和双氯芬酸等一些 PPCPs 去除效果较好,去除率可达 99%.Paul 等^[55]使用粉末状活性炭(PAC)试验,结果表明活性炭对三氯生、氧苯酮、氟西汀、茚地那韦去除效果最佳,去除率分别为 98%、97%、95%、95%.但是实验过程中研究者发现使用活性炭吸附也有一些负面效果,随着时间推移,活性炭接近吸附饱和和状态时,吸附效率会大大降低,甚至最终失去 PPCPs 吸附功能^[35].此外,吸附过程结束后,活性炭的回收与回用会增加成本并有一定难度.

3.3 膜处理

膜处理工艺有微滤、超滤、纳滤及反渗透等.该工艺操作简单,对污染物有较高的物理截留能力,处理过程中无需投加任何药剂且不会产生副产物,但去除效果依赖于目标物的结构特征和膜的特性.Yoon 等^[56]研究结果表明,纳滤过程主要是憎水吸附作用和滤除排斥作用,而超滤过程主要是憎水作用.Garcia 等^[57]研究超滤对布洛芬和雌二醇的吸附拦截,发现超滤亲水膜对雌二醇的去除率仅为 8%,对布洛芬的去除率也一般;而对三氯生和磺胺甲恶唑的截留率却可以达到 80%^[58-59].Heberer^[60]等研究发现反渗透可以高效去除林肯霉素、甲氧苄啶、泰乐菌素.

经过饮用水厂一系列深度处理工艺,部分 PPCPs 可以得到有效去除.与水源水相比,出厂水中 PPCPs 种类减少 30%以上,平均浓度降低 80%以上^[32,36,41,46,50,52,59].表 3 总结了经过饮用水厂不同深度工艺处理后 PPCPs 的去除情况.

表 3 不同深度处理工艺下 PPCPs 的去除情况
Table 3 Removal of PPCPs by different advanced treatment progresses

名称 Name	深度处理工艺 Advanced treatment progress	去除率 Removal/%	来源 Sources
磺胺甲恶唑	O ₃ +BAC	100	中国某市 ^[51]
罗红霉素	O ₃ +BAC	100	中国某市 ^[51]
舒必利	O ₃ +BAC	100	中国某市 ^[51]
磺胺甲恶唑	预 O ₃ +氧化+GAC	84.7	中国太湖 ^[33]
罗红霉素	预 O ₃ +氧化+GAC	100	中国太湖 ^[33]
舒必利	预 O ₃ +氧化+GAC	100	中国太湖 ^[33]
咖啡因	预 O ₃ +氧化+GAC	89.6	中国太湖 ^[33]
磺胺甲恶唑	O ₃ +生物过滤+RO	100	美国新墨西哥州 ^[47]
茶普生	O ₃ +生物过滤+RO	100	美国新墨西哥州 ^[47]
咖啡因	预 O ₃ +絮凝+沉淀	81.7	美国亚特兰大州 ^[49]
磺胺甲恶唑	膜过滤+GAC+O ₃	96.9	中国广州 ^[61]

4 总结与展望(Summary and prospect)

尽管目前关于饮用水整个系统中 PPCPs 的检出和处理方面的报道逐渐增多,但由于 PPCPs 种类繁多,浓度很低,对人体及生态环境的危害还不明朗,许多工作需要进一步开展.

(1) PPCPs 在饮用水系统中的浓度很低($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ — $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 级别),种类繁多.我国对其的研究起步较晚,应向发达国家学习,提高对饮用水系统中 PPCPs 的重视,建立更快速、更高效、种类更全的 PPCPs 检测方法,建立全面系统的 PPCPs 及其代谢产物的基础数据库.

(2) 水源水中 PPCPs 的来源广泛,在不同水环境中的污染特征和所在区域人口、用药习惯、畜牧养殖密度等因素有关,存在明显的时空分布差异.因此应针对性地加强重点区域和重要流域的监测研究,通过分析该地区水环境中浓度较大、持久性强、毒性较大的“优先控制药物”作为重点对象,建立大数据模型,模拟研究典型 PPCPs 在饮用水源中的来源、迁移和转化,为加强 PPCPs 的源头控制提供科学依据.

(3) 我国各级饮用水厂对部分 PPCPs 有较好的去除效果,但去除效率与目标污染物的理化性质关系较大,并且某些 PPCPs 的降解产物的毒性较母体更大.因此应加强饮用水处理过程中 PPCPs 的管理,强化其处理工艺,积极采用深度处理及组合工艺,拓宽 PPCPs 有效去除的种类,提高对特定 PPCPs 及其代谢产物的去除能力,保证供水的安全,提高供水质量.

(4) 目前饮用水中仍有一定程度的 PPCPs 检出,但仅停留在研究调查的层次,未引起人们较高的关注,也缺乏相应的监督机制.因此末端监督机制尤为重要,反映饮用水受污染程度的同时,也对 PPCPs 的来源控制及过程管理形成反馈,三者相辅相成,在控制 PPCPs 污染方面将会是以后研究的方向.

参考文献(References)

[1] SACHER F, LANGE F T, BRAUCH H J, et al. Pharmaceuticals in groundwaters analytical methods and results of a monitoring program in Baden-Württemberg, Germany[J]. Journal of Chromatography A, 2001, 938(1-2):199-210.

[2] MONTESGRAJALES D, FENNIXAGUDELO M, MIRANDACASTRO W. Occurrence of personal care products as emerging chemicals of concern in water resources: A review[J]. Science of the Total Environment, 2017;601-614.

[3] DAUGHTON C G, TERNES T A. Pharmaceuticals and personal care products in the environment: Agents of subtle change? [J]. Environmental Health Perspectives Supplements, 1999, 107(Suppl 6):907-938.

[4] NASSEF M, MATSUMOTO 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.

- [5] HU H Y, YE D, WU Q Y, et al. Differences in dissolved organic matter between reclaimed water source and drinking water source[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, s 551-552:133-142.
- [6] SCHAUER L A, ACKERMAN J M, RUDEL R A. Septic systems as sources of organic wastewater compounds in domestic drinking water wells in a shallow sand and gravel aquifer[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 547:470-481.
- [7] 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.
- PAN X, QIANG Z M, WANG W D. Distribution and ecological risk of sedimentary PPCPs in the eastern drinking water source area of Chaohu Lake[J]. *Environmental Chemistry*, 2016, 35(11):2234-2244 (in Chinese).
- [8] 王丹, 隋倩, 赵文涛, 等. 中国地表水环境中药物和个人护理用品的研究进展[J]. *科学通报*, 2014, 59(9):743-751.
- WANG D, SUI Q, ZHAO W T, et al. Pharmaceutical and personal care products in the surface water of China: A review[J]. *Chin Sci Bull (Chin Ver)*, 2014, 59(9):743-751 (in Chinese).
- [9] KUMMERER K, ALAHMAD A, MERSCHSUNDERMANN 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.
- [10] 刘莹, 管运涛, 水野忠雄, 等. 药品和个人护理用品类污染物研究进展[J]. *清华大学学报 (自然科学版)*, 2009, 49(3):368-372.
- LIU Y, GUAN Y T, MIZUNO T, et al. Recent research advances of pharmaceuticals and personal care pollutants[J]. *Journal of Tsinghua University (Science and Technology)*, 2009, 49(3):368-372 (in Chinese).
- [11] KUMMERER K. Significance of antibiotics in the environment[J]. *Journal of Antimicrobial Chemotherapy*, 2003, 52(1):5-7.
- [12] SCHEYTT T J, MERSMANN P, HEBERER T. Mobility of pharmaceuticals carbamazepine, diclofenac, ibuprofen, and propyphenazone in miscible-displacement experiments[J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2006, 83(1-2):53-69.
- [13] ZHANG Q Q, YING G G, PAN C G, et al. Comprehensive evaluation of antibiotics emission and fate in the river basins of China: Source analysis, multimedia modeling, and linkage to bacterial resistance[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, 49(11):6772-6782.
- [14] YANG J F, YING G G, ZHAO J L, et al. Spatial and seasonal distribution of selected antibiotics in surface waters of the Pearl Rivers, China[J]. *Journal of Environmental Science & Health. Part B Pesticides Food Contaminants & Agricultural Wastes*, 2011, 46(3):272-280.
- [15] 陈月, 王风贺, 陆建刚, 等. 长江流域药品和个人护理用品污染状况的研究进展简[J]. *工业水处理*, 2016, 36(7):11-15.
- CHEN Y, WANG F H, LU J G, et al. Research progress in pharmaceutical and personal care products (PPCPs) in the Yangtze River Valley, China[J]. *Industrial Water Treatment*, 2016, 36(7):11-15 (in Chinese).
- [16] 胡冠九, 陈素兰, 穆肃, 等. 江苏省某市典型饮用水水源中抗生素质量浓度特征[J]. *水资源保护*, 2016, 32(3):84-88.
- HU G J, CHEN S L, MU S, et al. Characteristics of concentrations of antibiotics in typical drinking water sources in a city in Jiangsu Province[J]. *Water Resources Protection*, 2016, 32(3):84-88 (in Chinese).
- [17] 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.
- [18] 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 & Environmental Safety*, 2014, 106:19-26.
- [19] 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.
- [20] FERGUSON P J, BERNOT M J, DOLL J C, et al. Detection of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in near-shore habitats of southern Lake Michigan[J]. *Science of the Total Environment*, 2013, 458-460(3):187-196.
- [21] KLEYWEGT S, PILEGGI V, YANG P, et al. Pharmaceuticals, hormones and bisphenol A in untreated source and finished drinking water in Ontario, Canada-Occurrence and treatment efficiency[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, 409(8):1481-1488.
- [22] STACKELBERG P E, GIBS J, FURLONG E T, et al. Efficiency of conventional drinking-water-treatment processes in removal of pharmaceuticals and other organic compounds[J]. *Science of the Total Environment*, 2007, 377(2-3):255-272.
- [23] VULLIET E, CREN-OLIVE C, GRENIER-LOUSTALOT M F. Occurrence of pharmaceuticals and hormones in drinking water treated from surface waters[J]. *Environmental Chemistry Letters*, 2011, 9(1):103-114.
- [24] AGUERA A, FERNANDEZ-ALBA A R, PIEDRA L, et al. Evaluation of triclosan and biphenylol in marine sediments and urban wastewaters by pressurized liquid extraction and solid phase extraction followed by gas chromatography mass spectrometry and liquid chromatography mass spectrometry[J]. *Analytica Chimica Acta*, 2003, 480(2):193-205.
- [25] BENOTTI M J, TRENHOLM R A, VANDERFORD B J, et al. Pharmaceuticals and endocrine disrupting compounds in U.S. drinking water

- [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43(3):597-603.
- [26] LORANIE G A, PETTIGROVE M E. Seasonal variations in concentrations of pharmaceuticals and personal care products in drinking water and reclaimed wastewater in southern California[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(3):687-695.
- [27] HUERTA F M, GALCERAN M T, VENTURA F. Occurrence and removal of pharmaceuticals and hormones through drinking water treatment[J]. *Water Research*, 2011, 45(3):1432-1442.
- [28] ZUCCATO E, CASTIGLIONI S, BAGNATI R, et al. Source, occurrence and fate of antibiotics in the Italian aquatic environment[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, 179(1-3):1042-1048.
- [29] CHANG X, MEYER M T, LIU X, et al. Determination of antibiotics in sewage from hospitals, nursery and slaughter house, wastewater treatment plant and source water in Chongqing region of Three Gorge Reservoir in China[J]. *Environmental Pollution*, 2010, 158(5):1444-1450.
- [30] BOLEDA M R, GALCERAN M T, VENTURA F. Behavior of pharmaceuticals and drugs of abuse in a drinking water treatment plant (DWTP) using combined conventional and ultrafiltration and reverse osmosis (UF/RO) treatments[J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159(6):1584-1591.
- [31] 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(22):189-211.
- [32] PENG X Z, OU W H, WANG C W, et al. Occurrence and ecological potential of pharmaceuticals and personal care products in groundwater and reservoirs in the vicinity of municipal landfills in China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 490:889-898.
- [33] LIN T, YU S L, CHEN W. Occurrence, removal and risk assessment of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) in an advanced drinking water treatment plant (ADWTP) around Taihu Lake in China[J]. *Chemosphere*, 2016, 152:1-9.
- [34] LOLIC A, PAIGA P, SANTOS L H, et al. Assessment of non-steroidal anti-inflammatory and analgesic pharmaceuticals in seawaters of North of Portugal: occurrence and environmental risk[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 508:240-250.
- [35] SUN Q, LI Y, LI M Y, et al. PPCPs in Jiulong River estuary (China): Spatiotemporal distributions, fate, and their use as chemical markers of wastewater[J]. *Chemosphere*, 2016, 150:596-604.
- [36] LUO Y, GUO W, NGO H H, et al. A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 474(3):619-641.
- [37] LIU J L, WONG M H. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs): A review on environmental contamination in China[J]. *Environment International*, 2013, 59C(3):208-224.
- [38] KARNJANAPIBOONWONG A, SUSKI J G, SHAH A A, et al. Occurrence of PPCPs at a wastewater treatment plant and in soil and groundwater at a land application site[J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2011, 216(1):257-273.
- [39] BARNES K K, KOLPIN D W, FURLONG E T, et al. A national reconnaissance of pharmaceuticals and other organic wastewater contaminants in the United States- I) groundwater[J]. *Science of the Total Environment*, 2008, 402(2-3):192.
- [40] TEIJON G, CANDELA L, TAMOH K, et al. Occurrence of emerging contaminants, priority substances (2008/105/CE) and heavy metals in treated wastewater and groundwater at Depurbaix facility (Barcelona, Spain)[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, 408(17):3584-3595.
- [41] 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.
DING Z R. Occurrence and distribution of pharmaceutical and personal care products in typical pollution sources and groundwater in the Pearl River Delta[D]. Changsha: Hunan Normal University, 2015(in Chinese).
- [42] MULLER B, SCHEYTT T, ASBRAND M, et al. Pharmaceuticals as indicators of sewage-influenced groundwater[J]. *Hydrogeology Journal*, 2012, 20(6):1117-1129.
- [43] CARMONA E, ANDREU V, PICO Y. Occurrence of acidic pharmaceuticals and personal care products in Turia River Basin: From waste to drinking water[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 484(1):53-63.
- [44] FRAM M S, BELITZ K. Occurrence and concentrations of pharmaceutical compounds in groundwater used for public drinking-water supply in California[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, 409(18):3409-3417.
- [45] SCHMIDT-BAUMLER K, HEBERER T, STAN H J. Occurrence and distribution of organic contaminants in the aquatic system in berlin. part II: Substituted phenols in berlin surface water[J]. *CLEAN - Soil, Air, Water*, 1999, 27(3):143-149.
- [46] VIENO N M, HARKKI H, TUHKANEN T, et al. Occurrence of pharmaceuticals in river water and their elimination in a pilot-scale drinking water treatment plant[J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, 41(14):5077-5084.
- [47] LEE C O, HOWE K J, THOMSON B M. Ozone and biofiltration as an alternative to reverse osmosis for removing PPCPs and

- micropollutants from treated wastewater[J]. *Water Research*, 2012, 46(4):1005-1014.
- [48] FAN X, TAO Y, WANG L, et al. Performance of an integrated process combining ozonation with ceramic membrane ultra-filtration for advanced treatment of drinking water[J]. *Desalination*, 2014, 335(1):47-54.
- [49] PADHYE L P, YAO H, KUNG' U F T, et al. Year-long evaluation on the occurrence and fate of pharmaceuticals, personal care products, and endocrine disrupting chemicals in an urban drinking water treatment plant[J]. *Water Research*, 2014, 51(6):266-276.
- [50] YUAN F, HU C, HU X, et al. Degradation of selected pharmaceuticals in aqueous solution with UV and UV/H₂O₂[J]. *Water Research*, 2009, 43(6):1766-1774.
- [51] 喻峥嵘, 乔铁军, 张锡辉. 某市饮用水系统中药品和个人护理用品的调查研究[J]. *给水排水*, 2010, 36(9):24-28.
- YU Z R, QIAO T J, ZHANG X H. Investigation on pharmaceuticals and personal care products in drinking water system in a city[J]. *Water & Wastewater Engineering*, 2010, 36(9): 24-28 (in Chinese).
- [52] QIAO T J, YU Z R, ZHANG X H, et al. Occurrence and fate of pharmaceuticals and personal care products in drinking water in southern China[J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2011, 13(11):3097-3103.
- [53] REUNGOAT J, ESHER B I, MACOVA M, et al. Biofiltration of wastewater treatment plant effluent: Effective removal of pharmaceuticals and personal care products and reduction of toxicity[J]. *Water Research*, 2011, 45(9):2751-2762.
- [54] GROVER D P, ZHOU J L, FRICKERS P E, et al. Improved removal of estrogenic and pharmaceutical compounds in sewage effluent by full scale granular activated carbon: Impact on receiving river water[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 185(2-3):1005-1011.
- [55] PAUL W, YEOMIN Y, SHANE S A, et al. Fate of endocrine-disruptor, pharmaceutical, and personal care product chemicals during simulated drinking water treatment processes[J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, 39(17):6649-6663.
- [56] YOON Y, WESTERHOFF P, SNYDER S A, et al. Removal of endocrine disrupting compounds and pharmaceuticals by nanofiltration and ultrafiltration membranes[J]. *Desalination*, 2007, 202(1-3):16-23.
- [57] GARCIA N, MORENO J, CARTMELL E, et al. The application of microfiltration-reverse osmosis/nanofiltration to trace organics removal for municipal wastewater reuse[J]. *Environmental Technology*, 2013, 34(24):3183-3189.
- [58] 王鑫森. 膜滤对药品和个人护理用品的去除特性研究[D]. 北京:北京建筑大学, 2014.
- WANG X M. Membrane filtration removal characteristics of pharmaceuticals and personal care products[D]. Beijing: Beijing University of Civil Engineering and Architecture, 2014(in Chinese).
- [59] SUAREZ S, CARBALLA M, OMIL F, et al. How are pharmaceutical and personal care products (PPCPs) removed from urban wastewaters? [J]. *Cheminform*, 2009, 40(19):125-138.
- [60] HEBERER T, FELDMANN D, REDDERSEN K, et al. Production of drinking water from highly contaminated surface waters: removal of organic, inorganic, and microbial contaminants applying mobile membrane filtration units[J]. *Clean-Soil Air Water*, 2002, 30(1):24-33.
- [61] YANG X, FLOWERS R C, WEINBERG H S, et al. Occurrence and removal of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in an advanced wastewater reclamation plant[J]. *Water Research*, 2011, 45(16):5218-5228.