

DOI:10.3880/j.issn.1004-6933.2016.01.020

有机滤光剂在水环境中的污染现状及去除技术

刘付立^{1,2}, 吴东海^{1,2}, 陆光华^{1,2}, 闫振华^{1,2}, 刘建超^{1,2}

(1. 河海大学浅水湖泊综合治理与资源开发教育部重点实验室, 江苏 南京 210098;

2. 河海大学环境学院, 江苏 南京 210098)

摘要:新兴污染物有机滤光剂对水生生态环境和人类健康造成威胁, 对其在水环境中的污染调查及控制已成为研究热点。通过对现有研究的分析, 归纳了当前国内外水环境中有机滤光剂的污染现状, 综述了有机滤光剂的主要去除方法, 并展望了该领域进一步的研究重点与方向。

关键词:有机滤光剂; 水环境; 污染现状; 去除技术

中图分类号: X522

文献标志码: A

文章编号: 1004-6933(2016)01-0115-05

Pollution status and removal technology of organic UV filters in aquatic environment

LIU Fuli^{1,2}, WU Donghai^{1,2}, LU Guanghua^{1,2}, YAN Zhenhua^{1,2}, LIU Jianchao^{1,2}

(1. Key Laboratory of Integrated Regulation and Resources Development of Shallow Lakes,

Ministry of Education, Hohai University, Nanjing 210098, China;

2. College of Environment, Hohai University, Nanjing 210098, China)

Abstract: New emerging pollutant and organic UV filters pose a threat to the aquatic ecological environment and human health, the survey and control of organic UV filters in the aquatic environment has become a hotspot. Based on the present research, the current pollution status of organic UV filters in domestic and foreign aquatic environment were summarized, and the main removal methods were reviewed. The further research emphasis and direction in this field were also prospected.

Key words: organic UV filters; aquatic environment; pollution status; removal technology

有机滤光剂是一类重要的紫外光吸收物质, 广泛应用于化妆品(包括防晒霜、护发剂、香水等)、纺织品、塑料、光学产品以及建筑外墙等产品和材料中^[1]。其中, 典型的有机滤光剂有3-(4-甲基苄烯)-樟脑(3-(4-Methylbenzyliden) camphor, 4-MBC)、2-羟基-4-甲氧基二苯甲酮(2-Hydroxy-4-methoxybenzophenone, BP-3)、甲氧基肉桂酸乙基己酯(Ethylhexyl Methoxycinnamate, EHMC)等^[2-3]。这类污染物水溶性低, 辛醇水分配系数较高, 蒸汽压较高, 难生物降解, 在环境中分布十分广泛, 且在较低的浓度水平下即可产生生态效应^[4-6]。研究表

明^[7-10], 有机滤光剂具有内分泌干扰效应, 能引起鱼类的雌性化效应, 还能对鱼类的生长繁殖产生不利影响。

目前有机滤光剂在水环境中的分布以及去除技术已经成为环境领域中新的研究热点, 但该方面的研究仍处于起步阶段^[6]。鉴于有机滤光剂对生物的毒性效应以及在环境中的假持久性, 本文对有机滤光剂在国内外水体中的污染现状进行分析, 综述了该类物质主要去除技术的最新研究进展, 并探讨了该领域进一步的研究重点与方向。

基金项目: 国家自然科学基金(51279061); 江苏省自然科学基金(BK20130835); 河海大学中央高校基本科研业务费(2013B13020026)

作者简介: 刘付立(1990—), 男, 硕士研究生, 研究方向为环境毒理学。E-mail: liufuli651@163.com

通讯作者: 陆光华, 教授, 博士生导师。E-mail: ghlu@hhu.edu.cn

(FAN Yinqin, CAI Huanjie. A comparative study on crop water requirement calculation of single crop coefficient method and the dual crop coefficient approach[J]. Journal of Water Resources, 2002(3):50-54. (in Chinese))

[9] 李润杰,孙海兵,冯玲正,等.柴达木盆地节水农业体系建设探讨[J]. 节水灌溉, 2005(2):38-40. (LI Runjie, SUN Haibing, FENG Lingzheng, et al. Discussion on the construction of water-saving agriculture system in Qaidam Basin[J]. Water Saving Irrigation, 2005(2):38-40. (in Chinese))

[10] 鹿强,周和平. 干旱区农业灌溉用水定额研究[J]. 中国

水利, 2011(21):45-46. (LU Qiang, ZHOU Heping. Research of agricultural irrigation water quota in arid zone [J]. China Water Conservancy, 2011(21):45-46. (in Chinese))

[11] 李海霞,包淑萍,马如国,等. 宁夏清水河扬水灌区灌溉回归水初步分析[J]. 宁夏工程技术, 2007,6(2):104-107. (LI Haixia, BAO Shuping, MA Ruguo, et al. Preliminary analysis of return-water in Ningxia Qingshui River pumping irrigation [J]. Ningxia Engineering Technology, 2007,6(2):104-107. (in Chinese))

(收稿日期:2015-04-07 编辑:徐 娟)

(上接第 119 页)

[35] RODRIGUEZ-RODRIGUEZ C E, BARON E, GAGO-FERRERO P, et al. Removal of pharmaceuticals, polybrominated flame retardants and UV-filters from sludge by the fungus *Trametes versicolor* in bioslurry reactor [J]. Journal of Hazardous Materials, 2012, 233: 235-243.

[36] LIU Y S, YING G G, SHAREEF A, et al. Biodegradation of the ultraviolet filter benzophenone-3 under different redox conditions [J]. Environmental Toxicology and Chemistry/SETAC, 2012, 31(2):289-295.

[37] GAGO-FERRERO P, BADIA-FABREGAT M, OLIVARES A, et al. Evaluation of fungal-and photo-degradation as potential treatments for the removal of sunscreens BP3 and BP1 [J]. The Science of the Total Environment, 2012, 427/428:355-363.

[38] NGUYEN L N, HAI F I, YANG S, et al. Removal of pharmaceuticals, steroid hormones, phytoestrogens, UV-filters, industrial chemicals and pesticides by *Trametes versicolor*: role of biosorption and biodegradation [J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2014, 88: 169-175.

[39] CHEN X, DENG H. Removal of ultraviolet filter from water by electro-ultrafiltration [J]. Desalination, 2013, 311:211-220.

[40] PHAN H V, HAI F I, KANG J, et al. Simultaneous nitrification/denitrification and trace organic contaminant (TrOC) removal by an anoxic-aerobic membrane bioreactor (MBR) [J]. Bioresour Technol, 2014, 165:96-104.

(收稿日期:2015-04-24 编辑:徐 娟)

(上接第 166 页)

[14] 董斌,茆智,李新建,等. 灌溉-排水-湿地综合管理系统的引进和改造应用[J]. 中国农村水利水电, 2009(11):9-12. (DONG Bin, MAO Zhi, LI Xinjian, et al. Introduction, adaptation and application of wetland-reservoir-subirrigation-system in rice-based irrigation systems of South China [J]. China Rural Water and Hydropower, 2009(11):9-12. (in Chinese))

[15] 覃万国. “薄、浅、湿、晒”灌溉技术对杂交水稻的增产效果[J]. 中国农村水利水电, 1996(11):17-18. (QIN Wanguo. Yield increasing effect of hybrid rice from “Thin-Shallow-Wet-Dry” Irrigation[J]. China Rural Water and Hydropower, 1996(11):17-18. (in Chinese))

[16] 李丹,詹红丽,郭富庆. WRSIS 系统的初步改进设计及

试验效果分析[J]. 灌溉排水学报, 2011, 30(5):120-123. (LI Dan, ZHAN Hongli, GUO Fuqing. Preliminary improved design and experiment on WRSIS[J]. Journal of Irrigation and Drainage, 2011, 30(5):120-123. (in Chinese))

[17] 赵荣,陈东宇,周少奇,等. k-C* 模型的人工湿地模拟研究[J]. 环境工程学报, 2012, 6(1):163-167. (ZHAO Rong, CHEN Dongyu, ZHOU Shaoqi, et al. Modeling of k-C* model for constructed wetland[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2012, 6(1):163-167. (in Chinese))

[18] 郭元裕. 农田水力学[M]. 3 版. 北京:中国水利水电出版社, 1997.

(收稿日期:2015-06-17 编辑:徐 娟)

1 水环境中有机滤光剂的污染现状

有机滤光剂进入周围水体可通过两种方式:直接途径与间接途径。直接途径是指人们在进行水上娱乐活动或沐浴时,皮肤上的有机滤光剂直接进入水中;间接途径是指有机滤光剂随污水处理厂出水进入水体中^[11-12]。有机滤光剂在水中的污染水平受多种因素的影响,主要包括地域、生活水平、人口数量以及季节等^[12-13]。

1.1 国外污染现状

目前,全球范围内很多水域环境中已有有机滤光剂的检出,且由于发达国家生活水平较高,对有机滤光剂的使用量较大,其污染程度也较高。Kameda等^[14]研究了日本河流、湖泊、污水处理厂等不同出水水体中有机滤光剂污染情况,结果表明,不同水体中有机滤光剂的总质量浓度在未检出(ND)到4 928 ng/L之间,EHMC和2-氰基-3,3-二苯基丙烯酸异辛酯(Octocrylene,OC)是污水处理厂出水中主要的有机滤光剂,BP-3、EHMC是其他水体中的优势组分。Balmer等^[15]对瑞士苏黎世8座污水处理厂出水中4-MBC、BP-3、EHMC、OC等4种有机滤光剂的污染情况进行研究,发现4-MBC、BP-3、EHMC、OC在污水处理厂出水中的质量浓度分别为60~2 700 ng/L、ND~700 ng/L、ND~100 ng/L、ND~270 ng/L;Poiger等^[16]调查了瑞士两个湖泊中有机滤光剂的污染水平,结果显示苏黎世湖中EHMC、OC、BP-3等各种有机滤光剂的质量浓度范围为ND~29 ng/L,而Hüttnersee湖中有机滤光剂的质量浓度较高,为ND~125 ng/L。Tsui等^[17]对美国纽约、洛杉矶地表水中有机滤光剂的含量进行了检测,在纽约检测出EHMC、OC、BP-3的质量浓度(中值~最大)分别为89~150 ng/L、117~128 ng/L、23~178 ng/L;在洛杉矶检测出了8种有机滤光剂,其中EHMC、OC、BP-3的质量浓度(中值~最大)分别为91~138 ng/L、145~377 ng/L、227~601 ng/L。Fent等^[18]采用极性有机化合物整合采样技术(POCIS)对瑞典格拉特河某污水处理厂上游段和下游段河水中有机滤光剂的质量浓度进行采样检测,所检测的4种有机滤光剂的质量浓度大小为BP-4>BP-3>4-MBC>EHMC,BP-4的质量浓度范围为27~285 ng/L,BP-3、4-MBC、EHMC的质量浓度为6~68 ng/L。Langford等^[19]调查了挪威沿海和湾峡等水上娱乐活动地区5月份和7月份BP-3、4-MBC、EHMC、OC等4种有机滤光剂的污染情况,结果显示5月份在大部分取样点4种有机滤光剂基本上未检出,而在7月份BP-3、4-MBC、EHMC、OC的质量浓度范围分别在ND~440

ng/L、22~294 ng/L、39~390 ng/L、ND~7 301 ng/L,表明在这些地区水上娱乐活动是有机滤光剂污染的主要污染源。

1.2 国内污染现状

目前,我国对于有机滤光剂的研究尚处于起步阶段,但已有的研究表明我国水环境中有机滤光剂污染也非常严重。如表1所示,与发达国家相似,国内水环境中也存在有机滤光剂种类多、浓度高的情况。Li等^[20]测定了天津某污水处理厂2、7、9月3个月份出水中有机滤光剂的浓度,其中BP-3、4-MBC、EHMC、OC等4种有机滤光剂的出水质量浓度范围分别为68~506 ng/L、299~1 287 ng/L、30~67 ng/L、21~95 ng/L。此外,有机滤光剂的浓度随季节变化较大,7、9月份浓度明显高于2月份浓度,这可能是与夏季防晒产品的使用量较大有关。Tsui等^[21]采用LC-MS/MS分析法对华南和香港地区的5座污水处理厂出水中有机滤光剂的含量进行检测,结果表明对叔丁基对甲氧基二苯甲酰甲烷(Butyl Methoxydibenzoylmethane,BMDM)、2,4-二羟基二苯甲酮(2,4-dihydroxybenzophenone,BP-1)、BP-3、2-羟基-4-甲氧基-5-磺酸二苯酮(2-benzoyl-5-methoxy-1-phenol-4-sulfonic acid,BP-4)、EHMC的检出率大于80%,其出水平均质量浓度(平均~最大)分别为140~1 018 ng/L、86~155 ng/L、111~541 ng/L、384~497 ng/L、163~505 ng/L。从以上的研究结果可以看出:有机滤光剂在污水处理厂中并未彻底去除,仍有大量的有机滤光剂随污水处理厂出水进入自然水体。

表1 不同地区水体中有机滤光剂的质量浓度

类型	地区	主要检测有机物种类	质量浓度范围/ (ng·L ⁻¹)	文献
自然 水体	日本	EHMC、BP-3、OC、UV-328	ND~4 780	[14]
	中国香港	OC、EHMC、BP-3、EHS、HMS	61~6 812	[17]
	瑞士	EHMC、OC、BP-3、BMDM	ND~125	[16]
	美国	EHMC、BP-3、OC、BMDM	23~601	[17]
	瑞典	BP-4、BP-3、4-MBC、EHMC	6~285	[18]
	挪威	BP-3、4-MBC、EHMC、OC	ND~7 301	[19]
	西班牙	BP-3、4-MBC、OC、EHMC	12~363	[22]
污水 处理厂	日本	EHMC、BP-3、OC、UV-328	ND~169	[14]
	瑞士	EHMC、OC、BP-3、4-MBC	ND~2 700	[15]
	中国天津	BP-3、4-MBC、EHMC、OC	21~1 287	[20]
	中国华南	BMDM、BP-1、BP-3、BP-4、EHMC	18~1 018	[21]
	美国	BP-3、HMS、EHMC	20~450	[23]
	澳大利亚	BP-3、4-MBC、OC、UV-329	22~274	[24]

除了通过污水处理厂出水等间接途径外,有机滤光剂还通过人类的水上娱乐活动等直接途径进入自然水体,因此我国地表水中有机滤光剂的污染问题也较为突出。Tsui等^[17]在香港地表水中检测出12种有机滤光剂,在汕头和潮州均检出5种有机滤光

剂。香港地区检出的 12 种有机滤光剂中以 OC 的质量浓度(中值~最大)最高,为 103~6812 ng/L,检出率为 100%,该地区较高的检出浓度与有机滤光剂的高使用量、未能在污水处理厂中完全去除以及频繁的水上娱乐活动密切相关;在汕头和潮州均有检出的是 BP-3 和 OC,平均质量浓度在几十到 100 ng/L,浓度远低于香港地区。

2 水环境中有机滤光剂的去除技术

基于有机滤光剂在水环境中的广泛分布以及较低的生物效应浓度,对其去除技术的研究显得极为必要。根据去除机理的不同,水环境中有机滤光剂的去除分为物理去除技术、化学去除技术、生物去除技术以及联用技术。

2.1 物理去除技术

物理去除是指将污染物从水相中分离到其他相而将污染物得到去除的方法。目前水中污染物的物理去除技术包括吸附、絮凝沉淀以及膜过滤等。研究^[25-26]表明,活性炭可快速地将水中的有机滤光剂吸附去除,利用粉末活性炭对含有有机滤光剂的灰水进行吸附实验,结果表明活性炭投加量为 1.25 g/L、接触 5 min 时,质量浓度为 1600 μg/L 的有机滤光剂基本得到完全去除。Liu 等^[24]对澳大利亚某污水处理厂 6 种有机滤光剂的去除情况进行检测,结果表明污泥可使进水中 54%~92% 的有机滤光剂通过吸附作用去除。Li 等^[20]对天津某再生水厂的不同处理单元中的 4 种有机滤光剂(4-MBC、EHMC、BP-3、OC)的去除情况进行了检测,结果表明,混凝-絮凝阶段去除率为 8%~21%,而连续膜过滤阶段的去除率仅为 3.6%~8.5%。

通常活性炭等吸附剂对有机滤光剂有较好的去除作用,但在实际应用中存在着其他污染物的竞争吸附以及吸附剂的再生问题。而絮凝沉淀和膜过滤的去除效率都不高。因此,物理去除方法通常与其他方法联用来达到高效去除有机滤光剂的目的。

2.2 化学去除技术

对有机滤光剂的化学去除主要是通过化学氧化法。化学氧化法是指利用氧化剂的直接氧化作用或羟基自由基的间接氧化作用将有机滤光剂降解转化。

去除水中有机滤光剂常用的氧化剂有氯气、高铁酸盐、臭氧等。Santos 等^[27]研究了有机滤光剂 EHMC 和 BMDM 在氯气作用下的去除,结果表明两种有机滤光剂与氯气的反应均符合准一级反应动力学,当所加氯气浓度为有机滤光剂浓度 10 倍时, EHMC 和 BMDM 的降解半衰期分别为 $t_1 = 73 \text{ min}$ 和

$t_2 = 119 \text{ min}$; pH 对 EHMC 的去除影响最大,氯气浓度对 BMDM 的去除影响最大。Yang 等^[28]研究了高铁酸盐对有机滤光剂 BP-3 的去除效果,结果表明当 Fe(VI) 的质量浓度为 10 mg/L、pH 为 8、温度为 24℃ 时,高铁酸盐 Fe(VI) 氧化 BP-3 的半衰期为 167.8 s;研究同时考察了共存物质对去除效果的影响,结果表明腐殖酸、 Mn^{2+} 、NaCl 能显著地抑制 BP-3 的去除,而 Br^- 、 Cu^{2+} 可加强其去除。相对于氯气、高铁酸盐等氧化剂,臭氧对难降解有机物有着更强的氧化去除能力^[29]。Gago-ferrero 等^[30]证实臭氧的加入对有机滤光剂 BP-3 的去除非常有效,在实验条件下,40~50 min 后 BP-3 的去除率达到 95%,其降解半衰期为 12 min;而 Santiago-morales 等^[31]的研究也表明,当所加臭氧剂量为 209 μmol/L 时,有机滤光剂 EHMC 和 BP-3 的去除率均可超过 95%。

此外,光催化以及基于臭氧的高级氧化技术以产生具有强氧化能力的 $\cdot\text{OH}$ 为特点, $\cdot\text{OH}$ 具有比臭氧更高的氧化电位,对难降解有机物有更强的氧化能力^[32]。Ji 等^[33]利用 TiO_2 做催化剂研究了光催化对有机滤光剂 2-苯基苯并咪唑-5-磺酸(2-Phenylbenzimidazole-5-sulfonic acid, PBSA) 的去除效果,结果表明当 TiO_2 的质量浓度为 1.0 mg/L, PBSA 的浓度为 45 μmol/L 时,反应进行 60 min,可使 PBSA 的去除率达到 45%,同时自由基清除实验也表明 $\cdot\text{OH}$ 是主要的反应活性组分。Gago-ferrero 等^[30]研究表明,加入 H_2O_2 可显著提高 O_3 对 BP-3 的氧化效果,在实验条件下当加入 100 μmol 的 H_2O_2 可使 BP-3 的去除效率比单独臭氧化时提高 64%,这是由于 H_2O_2 可以和 O_3 反应生成更高氧化能力的 $\cdot\text{OH}$;但研究同时发现 $\text{H}_2\text{O}_2/\text{O}_3$ 过程存在 H_2O_2 最大加入量,因为过多的 H_2O_2 可作为 $\cdot\text{OH}$ 清除剂而抑制对 BP-3 的去除。

2.3 生物去除技术

除了上述的物理、化学去除技术外,研究人员发现环境中的一些微生物也具有降解去除有机滤光剂的能力,且由于生物去除技术具有成本低、操作简单等优点,因此关于该方面的研究也越来越受到研究人员关注^[34-35]。

在存在电子受体的情况下,水中的一些微生物可以利用有机滤光剂进行呼吸作用,从而使有机滤光剂在生物体内通过代谢的形式得到去除。Liu 等^[36]采用在水中接种活性污泥和厌氧消化污泥方法来研究 BP-3 的去除情况,并比较了不同电子受体(硝酸盐、Fe(III)、硫酸盐等)对 BP-3 去除效果的影响。研究结果表明 BP-3 在厌氧消化的去除效果最好,其降解半衰期为 4.2 d。

此外,近来研究发现白腐菌能够有效地降解有机滤光剂。Gago-ferrero 等^[37]研究了白腐菌对 BP-3 和 BP-1 的降解效果,结果表明当有机滤光剂质量浓度为 250 $\mu\text{g/L}$ 时,两者均可在 24 h 内达到完全去除,特别是 BP-1,反应 2 h 时其去除率已达到 95%,表明白腐菌对有机滤光剂有极强的生物降解能力。Nguyen 等^[38]对比了灭活白腐菌、白腐菌胞内酶和白腐菌胞外酶对含有 BP-1、BP-3、OC 等 3 种有机滤光剂在内的 30 种微量有机污染物的去除效果。结果验证了白腐菌的生物降解对有机滤光剂的去除起主要作用,当反应中 pH、白腐菌质量浓度、微量有机物的总质量浓度分别为 4.5、0.4 g/L、50 $\mu\text{g/L}$ 时,3 种有机滤光剂的去除率均超过 60%。

2.4 联用技术

由于单独的物理、化学、生物方法都存在各自的局限,因此研究人员通过开发各种联用技术来提高对有机滤光剂的去除效果。Chen 等^[39]研究了电化学/超滤联用技术对水中 4-MBC 的去除效果,结果发现,在超滤膜上加上电场可显著地提高对 4-MBC 的去除。这可归因于以下几个方面:①由于电场的诱导对聚偏二氟乙烯超滤膜的修饰,使其具有更粗糙的表面和更大的孔径;②接触角的减少使聚偏二氟乙烯超滤膜提高了亲水性,更利于纯水的渗透;③电泳、电渗、电解作用以及电极的氧化还原反应对 4-MBC 的矿化作用,能够减少过滤阻力及膜污染。

相对于电化学/超滤联用技术,膜生物反应器作为一种物理/生物联用技术对有机滤光剂的去除也有良好的效果。Phan 等^[40]采用缺氧-好氧复合膜生物反应器对 BP-1、BP-3、OC 等 3 种有机滤光剂的去除情况进行研究,结果表明 25 d 内 3 种有机滤光剂的去除率都在 90% 以上,分析膜生物反应器对有机滤光剂去除效果的影响因素表明,较低的溶解氧或氧化还原电位以及增大反应器内部环流对滤光剂的去除有利。

3 展 望

有机滤光剂作为一种新型污染物在水环境中广泛存在,对人类和水生生物造成潜在威胁。结合当前对有机滤光剂的研究成果,今后对有机滤光剂的研究应包括以下几个方面:

- a. 对有机滤光剂在水环境中的分布已有较详尽的数据,但对其在水环境中的迁移、转化规律还需继续探索。
- b. 结合物理、化学、生物方法,发挥各自优势,研究开发各种有效去除有机滤光剂的联用技术,提高处理效率,降低处理成本。

c. 现有研究对有机滤光剂去除效果及影响因素已做了相当多的考察,但对有机滤光剂的降解机理仍需进一步研究。

参考文献:

[1] KAISER D, SIERATOWICZ A, ZIELKE H, et al. Ecotoxicological effect characterisation of widely used organic UV filters [J]. Environmental Pollution, 2012, 163:84-90.

[2] GILBERT E, PIROT F, BERTHOLLE V, et al. Commonly used UV filter toxicity on biological functions; review of last decade studies [J]. International Journal of Cosmetic Science, 2013, 35 (3) :208-219.

[3] GAGO-FERRERO P, DIAZ-CRUZ M S, BARCELO D. An overview of UV-absorbing compounds (organic UV filters) in aquatic biota [J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2012, 404 (9) :2597-2610.

[4] PLAGELLAT C, KUPPER T, FURRER R, et al. Concentrations and specific loads of UV filters in sewage sludge originating from a monitoring network in Switzerland [J]. Chemosphere, 2006, 62 (6) :915-925.

[5] KIM S, CHOI K. Occurrences, toxicities, and ecological risks of benzophenone-3, a common component of organic sunscreen products: a mini-review [J]. Environment International, 2014, 70 (0) :143-157.

[6] 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.

[7] WANG L, KANNAN K. Characteristic profiles of benzophenone-3 and its derivatives in urine of children and adults from the United States and China [J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47 (21) : 12532-12538.

[8] KUNZ P Y, FENT K. Estrogenic activity of ternary UV filter mixtures in fish (Pimephales promelas): an analysis with nonlinear isobolograms [J]. Toxicology and Applied Pharmacology, 2009, 234 (1) :77-88.

[9] WITORSCH R J, THOMAS J A. Personal care products and endocrine disruption: a critical review of the literature [J]. Critical Reviews in Toxicology, 2010, 40:1-30.

[10] 李立平, 魏东斌, 李敏, 等. 有机紫外防晒剂内分泌干扰效应研究进展 [J]. 环境化学, 2012, 31 (2) :150-156. (LI Liping, WEI Dongbin, LI Min, et al. Review on endocrine disrupting effects of organic UV filters [J]. Environmental Chemistry, 2012, 31 (2) : 150-156. (in Chinese))

[11] LEAL L H, VIENO N, TEMMINK H, et al. Occurrence of xenobiotics in gray water and removal in three biological treatment systems [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44 (17) :6835-6842.

- [12] 麻彬妮,陆光华,闫振华. 有机滤光剂在环境中的分布和累积研究进展 [J]. 环境与健康杂志,2014;31(1): 76-80. (MA Binni, LU Guanghua, YAN Zhenhua. Distribution and bioaccumulation of organic UV filters in environment: a review of recent studies [J]. Journal of Environment and Health, 2014, 31 (1) : 76-80. (in Chinese))
- [13] LIU Y S, YING G G, SHAREEF A, et al. Simultaneous determination of benzotriazoles and ultraviolet filters in ground water, effluent and biosolid samples using gas chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Journal of Chromatography A, 2011, 1218(31) : 5328-5335.
- [14] KAMEDA Y, KIMURA K, MIYAZAKI M. Occurrence and profiles of organic sun-blocking agents in surface waters and sediments in Japanese rivers and lakes [J]. Environmental Pollution, 2011, 159(6) : 1570-1576.
- [15] BALMER M E, BUSER H R, MULLER M D, et al. Occurrence of some organic UV filters in wastewater, in surface waters, and in fish from Swiss lakes [J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(4) : 953-962.
- [16] POIGER T, BUSER H R, BALMER M E, et al. Occurrence of UV filter compounds from sunscreens in surface waters; regional mass balance in two Swiss lakes [J]. Chemosphere, 2004, 55(7) : 951-963.
- [17] TSUI M M, LEUNG H W, WAI T C, et al. Occurrence, distribution and ecological risk assessment of multiple classes of UV filters in surface waters from different countries [J]. Water Res, 2014, 67: 55-65.
- [18] FENT K, ZENKER A, RAPP M. Widespread occurrence of estrogenic UV-filters in aquatic ecosystems in Switzerland [J]. Environmental pollution, 2010, 158(5) : 1817-1824.
- [19] LANGFORD K, THOMAS K. Inputs of chemicals from recreational activities into the Norwegian coastal zone [J]. Journal of Environmental Monitoring, 2008, 10(7) : 894-898.
- [20] LI W, MA Y, GUO C, et al. Occurrence and behavior of four of the most used sunscreen UV filters in a wastewater reclamation plant [J]. Water Res, 2007, 41(15) : 3506-3512.
- [21] TSUI M M, LEUNG H W, LAM P K, et al. Seasonal occurrence, removal efficiencies and preliminary risk assessment of multiple classes of organic UV filters in wastewater treatment plants [J]. Water Res, 2014, 53: 58-67.
- [22] DÍAZ-CRUZ M S, GAGO-FERRERO P, LLORCA M, et al. Analysis of UV filters in tap water and other clean waters in Spain [J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2012, 402(7) : 2325-2333.
- [23] LORAIN 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.
- [24] LIU Y S, YING G G, SHAREEF A, et al. Occurrence and removal of benzotriazoles and ultraviolet filters in a municipal wastewater treatment plant [J]. Environmental Pollution, 2012, 165: 225-232.
- [25] ROSSNER A, SNYDER S A, KNAPPE D R. Removal of emerging contaminants of concern by alternative adsorbents [J]. Water Res, 2009, 43(15) : 3787-3796.
- [26] HERNÁNDEZ-LEAL L, TEMMINK H, ZEEMAN G, et al. Removal of micropollutants from aerobically treated grey water via ozone and activated carbon [J]. Water Research, 2011, 45(9) : 2887-2896.
- [27] SANTOS A J M, CRISTA D M A, MIRANDA M S, et al. Degradation of UV filters 2-ethylhexyl-4-methoxycinnamate and 4-tert-butyl-4'-methoxydibenzoylmethane in chlorinated water [J]. Environmental Chemistry, 2013, 10(2) : 127.
- [28] YANG B, YING G G. Oxidation of benzophenone-3 during water treatment with ferrate (VI) [J]. Water Res, 2013, 47(7) : 2458-2466.
- [29] WENK J, AESCHBACHER M, SALHI E, et al. Chemical oxidation of dissolved organic matter by chlorine dioxide, chlorine, and ozone: effects on its optical and antioxidant properties [J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(19) : 11147-11156.
- [30] GAGO-FERRERO P, DEMEESTERE K, DIAZ-CRUZ M S, et al. Ozonation and peroxone oxidation of benzophenone-3 in water: effect of operational parameters and identification of intermediate products [J]. The Science of the Total Environment, 2013, 443: 209-217.
- [31] SANTIAGO-MORALES J, GOMEZ M J, HERRERA-LOPEZ S, et al. Energy efficiency for the removal of non-polar pollutants during ultraviolet irradiation, visible light photocatalysis and ozonation of a wastewater effluent [J]. Water Res, 2013, 47(15) : 5546-5556.
- [32] BORDUAS N, ABBATT J P D, MURPHY J G. Gas phase oxidation of monoethanolamine (MEA) with OH radical and ozone: kinetics, products, and particles [J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(12) : 6377-6383.
- [33] JI Y, ZHOU L, FERRONATO C, et al. Degradation of sunscreen agent 2-phenylbenzimidazole-5-sulfonic acid by TiO₂ photocatalysis: kinetics, photoproducts and comparison to structurally related compounds [J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2013, 140/141: 457-467.
- [34] WIJEKOON K C, HAI F I, KANG J, et al. The fate of pharmaceuticals, steroid hormones, phytoestrogens, UV-filters and pesticides during MBR treatment [J]. Bioresource Technology, 2013, 144: 247-254.

(下转第 171 页)

(FAN Yinqin, CAI Huanjie. A comparative study on crop water requirement calculation of single crop coefficient method and the dual crop coefficient approach[J]. Journal of Water Resources, 2002(3):50-54. (in Chinese))

[9] 李润杰,孙海兵,冯玲正,等.柴达木盆地节水农业体系建设探讨[J]. 节水灌溉, 2005(2):38-40. (LI Runjie, SUN Haibing, FENG Lingzheng, et al. Discussion on the construction of water-saving agriculture system in Qaidam Basin[J]. Water Saving Irrigation, 2005(2):38-40. (in Chinese))

[10] 鹿强,周和平.干旱区农业灌溉用水定额研究[J]. 中国

水利, 2011(21):45-46. (LU Qiang, ZHOU Heping. Research of agricultural irrigation water quota in arid zone [J]. China Water Conservancy, 2011(21):45-46. (in Chinese))

[11] 李海霞,包淑萍,马如国,等.宁夏清水河扬水灌区灌溉回归水初步分析[J]. 宁夏工程技术, 2007,6(2):104-107. (LI Haixia, BAO Shuping, MA Ruguo, et al. Preliminary analysis of return-water in Ningxia Qingshui River pumping irrigation [J]. Ningxia Engineering Technology, 2007,6(2):104-107. (in Chinese))

(收稿日期:2015-04-07 编辑:徐 娟)

(上接第 119 页)

[35] RODRIGUEZ-RODRIGUEZ C E, BARON E, GAGO-FERRERO P, et al. Removal of pharmaceuticals, polybrominated flame retardants and UV-filters from sludge by the fungus *Trametes versicolor* in bioslurry reactor [J]. Journal of Hazardous Materials, 2012, 233: 235-243.

[36] LIU Y S, YING G G, SHAREEF A, et al. Biodegradation of the ultraviolet filter benzophenone-3 under different redox conditions [J]. Environmental Toxicology and Chemistry/SETAC, 2012, 31(2):289-295.

[37] GAGO-FERRERO P, BADIA-FABREGAT M, OLIVARES A, et al. Evaluation of fungal-and photo-degradation as potential treatments for the removal of sunscreens BP3 and BP1 [J]. The Science of the Total Environment, 2012, 427/428:355-363.

[38] NGUYEN L N, HAI F I, YANG S, et al. Removal of pharmaceuticals, steroid hormones, phytoestrogens, UV-filters, industrial chemicals and pesticides by *Trametes versicolor*: role of biosorption and biodegradation [J]. International Biodeterioration & Biodegradation, 2014, 88: 169-175.

[39] CHEN X, DENG H. Removal of ultraviolet filter from water by electro-ultrafiltration [J]. Desalination, 2013, 311:211-220.

[40] PHAN H V, HAI F I, KANG J, et al. Simultaneous nitrification/denitrification and trace organic contaminant (TrOC) removal by an anoxic-aerobic membrane bioreactor (MBR) [J]. Bioresour Technol, 2014, 165:96-104.

(收稿日期:2015-04-24 编辑:徐 娟)

(上接第 166 页)

[14] 董斌,茆智,李新建,等.灌溉-排水-湿地综合管理系统的引进和改造应用[J]. 中国农村水利水电, 2009(11):9-12. (DONG Bin, MAO Zhi, LI Xinjian, et al. Introduction, adaptation and application of wetland-reservoir-subirrigation-system in rice-based irrigation systems of South China [J]. China Rural Water and Hydropower, 2009(11):9-12. (in Chinese))

[15] 覃万国. “薄、浅、湿、晒”灌溉技术对杂交水稻的增产效果[J]. 中国农村水利水电, 1996(11):17-18. (QIN Wanguo. Yield increasing effect of hybrid rice from “Thin-Shallow-Wet-Dry” Irrigation[J]. China Rural Water and Hydropower, 1996(11):17-18. (in Chinese))

[16] 李丹,詹红丽,郭富庆. WRSIS 系统的初步改进设计及

试验效果分析[J]. 灌溉排水学报, 2011, 30(5):120-123. (LI Dan, ZHAN Hongli, GUO Fuqing. Preliminary improved design and experiment on WRSIS[J]. Journal of Irrigation and Drainage, 2011, 30(5):120-123. (in Chinese))

[17] 赵荣,陈东宇,周少奇,等. k-C* 模型的人工湿地模拟研究[J]. 环境工程学报, 2012, 6(1):163-167. (ZHAO Rong, CHEN Dongyu, ZHOU Shaoqi, et al. Modeling of k-C* model for constructed wetland[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2012, 6(1):163-167. (in Chinese))

[18] 郭元裕. 农田水力学[M]. 3 版. 北京:中国水利水电出版社, 1997.

(收稿日期:2015-06-17 编辑:徐 娟)