水源与饮用水保障

金磊. 粉末活性炭吸附去除原水抗生素类新污染物生产运营[J]. 净水技术, 2024, 43(7): 63-68.

JIN L. Operation management of powdered activated carbon adsorption for antibiotics emerging contaminants removal in raw water [J]. Water Purification Technology, 2024, 43(7); 63-68.

粉末活性炭吸附去除原水抗生素类新污染物生产运营

金磊*

(上海城市水资源开发利用国家工程中心有限公司,上海 200082)

摘 要 抗生素作为一种典型的新污染物,在饮用水中的风险控制是近年来研究的热点。通过开展生产运营工况下粉末活性炭(PAC)吸附对原水中抗生素的控制技术研究,评估原水预处理工艺对抗生素的去除效果。结果表明,水源地原水中检出10种抗生素,抗生素总质量浓度为184.75~195.72 ng/L,主要为磺胺类和氯霉素类。在水源地 PAC 加注点投加5~20 mg/L的 PAC,水厂进厂原水 COD_{Mn} 降低5.39%~12.4%,抗生素总浓度均值降低54.1%~95.8%,林可酰胺类抗生素可完全去除,磺胺类去除效果次之,氯霉素类去除效果相对较低。PAC 吸附原水预处理可有效控制饮用水中抗生素类新污染物的风险。

关键词 新污染物 抗生素 粉末活性炭 原水预处理 生产运营

中图分类号: TU991 文献标识码: A 文章编号: 1009-0177(2024)07-0063-06

DOI: 10. 15890/j. cnki. jsjs. 2024. 07. 007

Operation Management of Powdered Activated Carbon Adsorption for Antibiotics Emerging Contaminants Removal in Raw Water

JIN Lei*

(Shanghai National Engineering Research Center of Urban Water Resources Co., Ltd., Shanghai 200082, China)

Abstract As a typical emerging contaminant, the risk control of antibiotics in drinking water has been a hot research topic recently. This study investigated the removal of antibiotics through powdered activated carbon (PAC) adsorption under production and operation conditions, the effectiveness of raw water pretreatment on antibiotic removal was evaluated. The results showed that 10 antibiotics were detected in the raw water of water source, with the total mass concentration ranging from 184.75 ng/L to 195.72 ng/L. Sulfonamides and chloramphenicols were the main detected antibiotics. Addition of $5 \sim 20$ mg/L PAC at the water source filling point, the COD_{Mn} concentration of raw water entering the water plant reduced 5.39% $\sim 12.4\%$, and the average total concentration of antibiotics reduced 54.1% $\sim 95.8\%$. Lincosamide antibiotics were completely removed, followed by sulfonamides, while chloramphenicol removal demonstrates a relatively lower efficacy. The raw water pretreatment of PAC adsorption can effectively control the risk of antibiotics emerging contaminants in drinking water.

Keywords emerging contaminant antibiotics powdered activated carbon (PAC) raw water pretreatment operation management

抗生素作为一种典型的新污染物,已被列入 《重点管控新污染物清单》(2023年版)。然而,我

国抗生素产量也在随着抗生素需求量的扩大而不 断上升,2020年我国抗生素产量达到22.3万t,其

[收稿日期] 2024-02-05

[基金项目] 国家重点研发计划项目(2021YFC3200805-3);上海市 2022 年度"科技创新行动计划"社会发展科技攻关项目(22dz1202305); 上海市 2023 年度"科技创新行动计划"社会发展科技攻关项目(23dz1203001);上海水源嗅味物质与新污染物赋存特征及控制 技术研究

[**通信作者**] 金磊(1990—),男,硕士,工程师,主要从事饮用水新污染物风险控制研究工作,E-mail;leiking802@163.com。

中兽用抗生素使用量为 3. 28 万 t^[1]。抗生素使用过后,30%~90%不会被人体和动物代谢分解,以原药的形式排出体外进入环境中^[2]。目前地表水、地下水、沉积物和土壤等各种环境介质中,甚至饮用水中均有检出抗生素类新污染物^[3-7]。长期低剂量的抗生素持续暴露会导致各种抗生素耐药细菌,甚至多重耐药菌的产生,使得全球微生物的耐药情况不容乐观^[8]。《生活饮用水卫生标准》(GB 5749—2022)将部分新污染物纳入推荐控制指标,《生活饮用水标准检验方法 第 8 部分:有机物指标》(GB/T 5750. 8—2023)提供了抗生素类的标准分析方法。由此表明,卫生和疾控部门对饮用水新污染物的风险控制愈发重视,逐步将新污染物纳入饮用水控制指标是未来重要的发展趋势。

粉末活性炭(powdered activated carbon,PAC)对水体中的有机物具有很好的吸附作用,是饮用水处理工艺最常用的药剂之一。PAC 吸附去除水体中的抗生素有较多研究,然而这些研究多基于小试或者中试试验规模^[9-11],对实际生产运营工况的技术支撑作用相对较为薄弱。本研究以太湖流域下游某水源地为例,研究水源水库实际生产运营工况下,PAC 吸附原水预处理对抗生素类新污染的去除效果,为饮用水抗生素类新污染物风险控制提供技术支撑和参考。

1 材料与方法

1.1 仪器和试剂

高效液相色谱仪(Sciex ExionLC AD, Sciex), 三 重四极杆串联质谱仪(AB Sciex Q-TRAP 6500, Sciex), 全自动氮吹仪(Biotage), 60 位全自动固相萃 取仪(厦门睿科), 聚苯乙烯—二乙烯基苯(HLB) 固 相萃取柱(500 mg, 6 cc, Waters), 玻璃纤维滤膜 (GF/F, 47 mm, Whatman), Poroshell C18 色谱柱 (3.0 mm×100 mm, 2.7 μm, Agilent)。

32 种抗生素标准品:林可霉素(LNK)、甲氧苄啶(TMP)、磺胺(SAM)、磺胺嘧啶(SDZ)、磺胺甲基嘧啶(SMR)、磺胺二甲嘧啶(SMZ)、磺胺噻唑(STZ)、磺胺氯哒嗪(SCP)、磺胺甲恶唑(SMX)、磺胺甲噻二唑(SMT)、磺胺二甲异恶唑(SFX)、磺胺对甲氧嘧啶(SMD)、磺胺二甲氧嘧啶(SAT)、磺胺脒(SG)、氧氟沙星(OFL)、诺氟沙星(NOR)、洛美沙星

(LOM)、恩诺沙星(ENR)、环丙沙星(CIP)、达氟沙星(DOF)、四环素(TC)、美他环素(MTC)、土霉素(OTC)、金霉素(CTC)、强力霉素(DOC)、氨苄西林(AMP)、泰乐菌素(TYL)、罗红霉素(ROX)、克拉霉素(CLA)、氯霉素(CAP)、氟甲砜霉素(FF)、甲砜霉素(TAP)均购自 Dr. Ehrensorfer 公司。

1.2 PAC 吸附原水预处理实际工况

1.2.1 PAC 投加装置概况

某水源地处于太湖流域下游,取水口位于开放式、流动性、多功能水域,上游来水水质波动大,氮、磷外源营养负荷高,抗生素等新污染物输入风险较大,为稳定原水供水水质,建设了应急 PAC 加注设备。PAC 投加装置满足 350 万 m³/d 原水预处理规模,最大加注量为 20 mg/L,调配质量分数为 2%~5%,采用湿式投加法,制备成 PAC 浆液后通过加注泵投加至原水输配管道中。PAC 为煤质炭,粒度为325 目,比表面积为 900 m²/g,碘吸附值为 950 mg/g,亚甲蓝吸附值为 175 mg/g。

1.2.2 PAC 吸附去除原水抗生素调试方案

原水 PAC 吸附预处理运行调试期间,水源地输水区原水水质主要指标参数如表 1 所示。PAC 调试分 5、10、20 mg/L 的 3 个投加质量浓度梯度,PAC 调配质量分数为 3%。每个浓度梯度连续投加时长为 72 h,PAC 投加由低浓度向高浓度调试运行,PAC 投加位置为水源地出库水总加注点。以该水源地供水的水厂 A 和水厂 B 的进厂水采样点为节点,评估 PAC 吸附原水预处理对抗生素的去除效果。两座水厂均采用典型的"混凝沉淀-砂滤-臭氧氧化-生物活性炭-氯消毒"的深度处理工艺。水源地 PAC 加注点至水厂 A 的原水管网长度为 34.2 km,原水管网中的水流流速为 1.4~2.0 m/s;至水厂 B 的原水管网长度为 78.2 km,水流流速为 0.3~0.6 m/s。

表 1 水源地原水主要水质指标

Tab. 1 Main Water Quality Indices of Raw Water

水质指标	单位	数值	平均值
水温	℃	11. 2~15. 0	12. 8
pH 值	-	7. 60~7. 80	7. 64
溶解氧	mg/L	6. 05 ~ 8. 02	6. 58
浑浊度	NTU	11.7~23.5	16. 6
氨(以N计)	mg/L	0. 24~0. 35	0. 28
$\mathrm{COD}_{\mathrm{Mn}}$	mg/L	2. 92~3. 20	3. 09

水源地 PAC 加注点到水厂 A 和水厂 B 的原水输送时间分别为 8.2 h 和 36.1 h。采集 PAC 投加调试期间的水源地原水、水厂 A 和水厂 B 的进厂水、出厂水,分析水样抗生素浓度和 COD_{Mn} 。

1.3 试验分析方法

水样抗生素分析采用固相萃取(SPE)预处理和高效液相色谱串联质谱(HPLC-MS/MS)方法,地表水抗生素的加标回收率除 SAM 和 SG 两种磺胺类回收率为 60%左右,其余抗生素的回收率位于 77.5%~108.7%,检出限为 0.015~2.160 ng/L。水样中抗生素详细的预处理步骤、HPLC-MS/MS 分析方法及参数,参照之前已发表的文献方法^[12]。PAC 的吸附作用对原水的 COD_{Mn} 分析过程造成影响,因此水样过滤后检测 COD_{Mn},分析方法参照《生活饮用水标准检验方法 第 7 部分:有机物综合指标》(GB/T 5750.7—2023)。

2 结果与讨论

2.1 水源地输水区原水抗生素检出浓度

原水投加 PAC 调试期间,水源地输水区原水抗 生素检出种类及浓度如图 1 所示,共检出 3 类 10 种 抗生素,分别为1种林可酰胺类(LNK),7种磺胺类 (TMP、SG、SDZ、SMZ、STZ、SMX、SCP)和2种氯霉素 类(TAP、FF),其余抗生素未检出。单个抗生素质 量浓度为 ND~63.32 ng/L, 抗生素总质量浓度为 184.75~195.72 ng/L,均值为189.77 ng/L。不同种 类抗生素质量浓度分别为林可酰胺类 14.71~15.52 ng/L,磺胺类 101. 24~122. 99 ng/L、氯霉素类 51. 42~ 78.96 ng/L。FF 检出质量浓度最高(51.42~74.51 ng/L,均值为59.60 ng/L),这与水源地上游太浦河 水体和长江水环境中 FF 的浓度特征相似,FF 均是 频繁检出且浓度较高的抗生素[12-13]。太湖流域下 游水系密集,水产养殖业发达,自 CAP 被农业部禁 用后,FF作为其主要的替代抗生素,在水产养殖中 具有广泛应用,是其在水环境中残留浓度高的主要 原因[14]。SG、SMX、SMZ 是检出浓度相对较高的磺胺 类抗生素,质量浓度分别为 31.66~41.09、21.02~ 26.81、22.77~23.82 ng/L。磺胺类抗生素是人畜共 用类抗生素,由于化学结构稳定和具备酸碱两性特 征,在水环境迁移能力较好,是各类水环境中主要检 出的抗生素种类[15]。

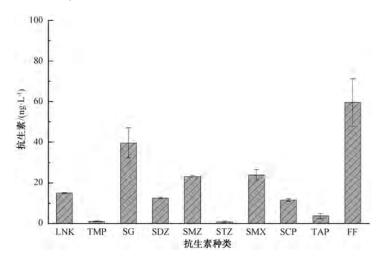


图 1 水源地原水中抗生素浓度

Fig. 1 Antibiotics Concentration in Raw Water

2.2 PAC 吸附对原水抗生素总体去除效果

调试运营期间 A 水厂和 B 水厂进厂原水抗生素变化如图 2 所示。水源地输水区原水抗生素总质量浓度为 184.75~195.72 ng/L,波动范围较小,均值为 189.77 ng/L。可以看出水厂进厂原水中抗生素浓度随 PAC 的投加量增加而明显降低。PAC 投加量为 5 mg/L 时, A 水厂进厂原水抗生素总质量浓

度为75.45~94.42 ng/L,均值为87.08 ng/L;水厂B进厂原水抗生素总质量浓度为55.47~66.04 ng/L,均值为62.06 ng/L。PAC 投加量为10 mg/L,A水厂和B水厂进厂原水抗生素质量浓度相近,分别为25.77~40.09 ng/L和27.52~35.28 ng/L,均值分别为33.54 ng/L和31.40 ng/L,进厂原水抗生素浓度明显降低。PAC 投加量增加至20 mg/L,A和B水

厂进厂原水抗生素总质量浓度分别进一步降低至8.05~10.92 ng/L和3.47~12.66 ng/L,均值分别降低至9.49 ng/L和8.06 ng/L。

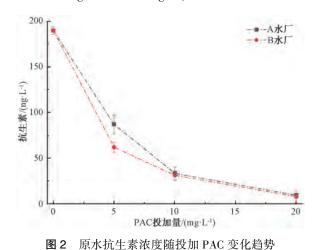


Fig. 2 Changing Trend of Antibiotics Concentration in Raw Water with PAC Dosing

分析 PAC 吸附对原水抗生素去除效果,PAC 投加质量浓度分别为 5、10、20 mg/L 时,A 水厂进厂原水抗生素相比水库输水区平均分别降低 54.1%、82.3%、95.0%;B 水厂进厂原水比水库输水区平均降低 67.3%、83.5%、95.8%。结果表明,在水源地启用 PAC 吸附原水预处理可显著有效地控制后续水厂进厂原水中抗生素,抗生素浓度随 PAC 投加量增加而明显降低。PAC 对原水中的其他溶解类有机物也有一定的吸附去除效果,投加 5、10、20 mg/L的 PAC,水厂 A 进厂原水 COD_{Mn} 相比水源地输水区分别降低 5.39%、8.24%、12.20%;水厂 B 进厂原水 COD_{Mn} 则分别降低 7.06%、9.72%、12.40%。

结合原水输配过程分析预处理对进厂原水抗生素去除效果的差异性。水源地 PAC 加注点至水厂A 的原水管网长度为 34.2 km,水流流速为 1.4~2.0 m/s,原水输配时间为 8.2 h;至水厂B 的原水管网长度为 78.2 km,水流流速为 0.3~0.6 m/s,原水输配时间为 36.1 h。原水的管网长度和输配时间直接影响 PAC 与水体中有机物的接触时间,长距离的原水管网和输配时间使 PAC 在原水输配过程中更好地发挥吸附作用。此外,原水管网中较低的水流流速也有利于 PAC 对有机物的吸附。

2.3 PAC 吸附对不同种类抗生素去除效果

分析 PAC 吸附对原水中不同种类抗生素去除效果,如图 3 所示。PAC 投加量为 5 mg/L,水厂 A

和 B 进厂原水单种抗生素去除率分别为 31.5%~ 92.7%和30.7%~100%,抗生素平均去除率分别为 54.1%和67.3%; PAC 投加量为10 mg/L, 两水厂进 厂原水单种抗生素去除率分别为 65.5%~100%和 63.4%~100%,抗生素平均去除率分别为82.3%和 83.5%; PAC 投加为 20 mg/L, 进厂原水单种抗生素 去除率分别为 79.7%~100%和 91.2%~100%, 抗生 素平均去除率分别为 95.0%和 95.8%。可以看出, 随着 PAC 投加质量浓度达到 20 mg/L, LNK、TMP、 STZ、TAP 能完全被 PAC 吸附去除, SG、SDZ、SMZ、 FF、SCP 和 SMX 去除率位于 90.4%~98.7%,未能 被PAC吸附完全去除。活性炭对有机物的吸附性 能强弱与其分子质量、正辛醇-水分配系数等理化 性质有关,通常与吸附质的辛醇-水分配系数呈正 相关性[16-17]。正辛醇-水分配系数相对较高的 LNK、TMP 吸附处理效果好,正辛醇-水分配系数相 对较低的 SG、SDZ、SMX、FF 也低于其他抗生素处理 效果。

B水厂由于原水输配过程中具有更长的接触时间,在5、10 mg/L 相同的 PAC 条件下,单种抗生素去除率相比 A 水厂高出 8.8%~40.4%。当 PAC 增加到 20 mg/L 时,去除率差距明显减小,仅高出 2.5%~11.5%,表明在较高浓度的 PAC 投加工况下,输水距离和接触时间对抗生素去除率的影响逐渐降低。从不同类别抗生素来分析,原水 PAC 投加量为 5~20 mg/L,进厂原水林可酰胺类去除率为 31.5%~100%,磺胺类去除率为 62.9%~94.5%,氯霉素类去除率为 26.6%~96.9%。PAC 吸附对不同种类抗生素去除效果表现为林可酰胺类去除效果最高,可被 PAC 吸附完全去除,磺胺类去除效果次之,氯霉素类去除效果低于林可酰胺类和磺胺类。

2.4 出厂水抗生素浓度变化

在水源地投加 PAC 有效降低进厂原水抗生素的同时,出厂水抗生素也随 PAC 的投加而显著降低。PAC 投加从 5 mg/L 增加至 10 mg/L 和 20 mg/L,A水厂出厂水抗生素总质量浓度均值依次从 22.13 ng/L降低至 11.38 ng/L 和 2.33 ng/L,B水厂出厂水抗生素总均值依次从 15.12 ng/L 降低至 4.86 ng/L 和 1.80 ng/L。总体上 B 水厂出厂水抗生素浓度低于 A 水厂出厂水。结果表明在水源水库投加PAC 进行原水预处理,可有效控制进厂原水和水厂出厂水中的抗生素类新污染物。在应对水源水库抗

净 水 技 术 WATER PURIFICATION TECHNOLOGY

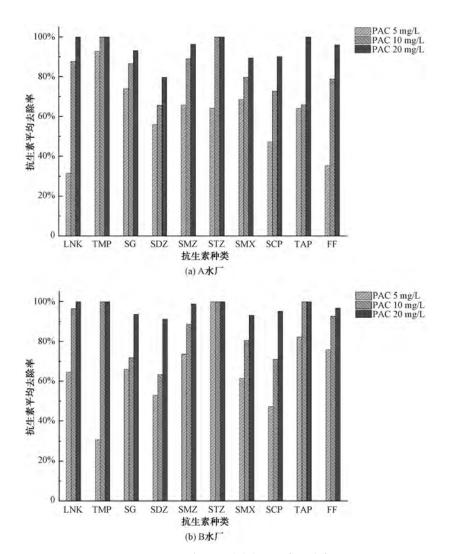


图 3 PAC 吸附对不同种类抗生素去除率

Fig. 3 Removal Rate of Different Types of Antibiotics by PAC Adsorption

生素类新污染物突发污染时,建议在水源地 PAC 吸附原水预处理工艺投加 20 mg/L 的 PAC,利用原水管网输配过程的 PAC 吸附作用,可有效削减后续水厂进厂原水和出厂水中的抗生素。

3 结论

- (1)水源地输水区原水检出 10 种抗生素,总质量浓度在 184.75~195.72 ng/L,均值为 189.77 ng/L,磺胺类和氯霉素类抗生素是原水中主要检出的抗生素,其中 FF 检出浓度最高。
- (2)原水 PAC 吸附预处理对水体中的抗生素具有良好去除效果,投加 5~20 mg/L 的 PAC,抗生素总均值降低 54.1%~95.8%。PAC 吸附可完全去除原水中林可酰胺类抗生素,磺胺类去除效果次之,氯霉素类去除效果低于林可酰胺类和磺胺类。

(3)通过在水源水库投加 PAC 进行原水预处理,可有效控制进厂原水和水厂出厂水中的抗生素类新污染物,对饮用水抗生素类新污染物风险控制具有重要技术支撑作用。

参考文献

- [1] 李振环,朱英,胡小键,等. 抗生素的人体健康风险、内暴露特征及检测技术研究进展[J]. 环境化学,2023,42(12):4051-4066.
 - LIZH, ZHUY, HUXJ, et al. Research progress on human health risk, internal exposure characteristics and analysis technologies of antibiotics[J]. Environmental Chemistry, 2023, 42(12): 4051-4066.
- [2] 蔡东明,欧阳洁,丁锦建,等. 抗生素消毒副产物的分析检测及毒性效应研究进展[J]. 分析化学,2022,50(3):327-340.

- CAI D M, OUYANG J, DING J J, et al. Research progress on identification and toxic effects of antibiotics disinfection byproducts[J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2022, 50(3): 327–340.
- [3] 张晶晶,陈娟,王沛芳,等.中国典型湖泊四大类抗生素污染特征[J].中国环境科学,2021,41(9):4271-4283.

 ZHANG J J, CHEN J, WANG P F, et al. Pollution characteristics of four-type antibiotics in typical lakes in China [J]. China Environmental Science, 2021,41(9):4271-4283.
- [4] 孔慧敏, 赵晓辉, 徐琬, 等. 我国地下水环境抗生素赋存现状及风险评价[J]. 环境工程, 2023, 41(2): 219-226.

 KONG H M, ZHAO X H, XU W, et al. Occurrence and risk assessment of antibiotics in groundwater environment in china
 [J]. Environmental Engineering, 2023, 41(2): 219-226.
- [5] 张玉多,李彦澄,杨启林,等.贵州双河溶洞地下水体中抗生素污染特征及风险评价[J].环境科学学报,2023,43(6):270-279.
 - ZHANG Y D, LI Y C, YANG Q L, et al. Characteristics and risk assessment of antibiotic in groundwater of Shuanghe Cave in Guizhou [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2023, 43 (6): 270-279.
- [6] 卫承芳,李佳乐,孙占学,等. 水-土壤环境中抗生素污染现状及吸附行为研究进展[J]. 生态毒理学报,2022,17(3):385-399.
 - WEI C F, LI J L, SUN Z X, et al. Research progress of antibiotic pollution and adsorption behavior in water-soil environment [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2022, 17 (3): 385-399.
- [7] 胡敏. 南方某城市饮用水中抗生素残留分布及风险评价研究 [D]. 兰州: 兰州理工大学, 2019. HU M. Study on the distribution characteristics of antibiotic
 - residues and risk assessment in drinking water in a southern city [D]. Lanzhou; Lanzhou University of Technology, 2019.
- [8] JASOVSKY D, LITTMANN J, ZORZET A, et al. Antimicrobial resistance-a threat to the world's sustainable development [J]. Upsala Journal of Medical Sciences, 2016, 121(3): 159-164.
- [9] 梁好, 刘传胜, 谷静静, 等. 碳质材料对饮用水处理中抗生素吸附的研究回顾[J]. 净水技术, 2018, 37(1): 30-39, 111.
 - LIANG H, LIU C S, GU J J, et al. Review and research on carbonaceous material for antibiotics adsorption in drinking water treatment [J]. Water Purification Technology, 2018, 37(1): 30-39, 111.
- [10] 齐凯英,张书源,刘瑛琦,等.颗粒活性炭对磺胺类抗生素

- 的单一和共吸附[J]. 环境工程, 2023, 41(s1): 58-63. QI K Y, ZHANG S Y, LIU Y Q, et al. Single and co-adsorption of sulfonamide antibiotics on granular activated carbon [J]. Environmental Engineering, 2023, 41(s1): 58-63.
- [11] 刘莹. 改性活性炭对水中典型磺胺类抗生素的吸附性能研究 [D]. 济南:山东师范大学, 2018.
 - LIU Y. Study on adsorption characteristics of typical sulfonamides in aquatic solutions by modified activated carbon [D]. Jinan: Shandong Normal University, 2018.
- [12] 金磊,姜巍巍,姜蕾,等. 太浦河水体中抗生素赋存特征及 生态风险[J]. 净水技术, 2022, 41(4): 35-40. JIN L, JIANG W W, JIANG L, et al. Occurrence characteristics and ecological risk of antibiotics in water body of Taipu River [J]. Water Purification Technology, 2022, 41(4): 35-40.
- [13] 陈昱如,段艳平,张智博,等.长江经济带水环境中抗生素 人体健康风险评价[J].中国环境科学,2023,43(7): 3713-3729.
 - CHEN Y R, DUAN Y P, ZHANG Z B, et al. Human health risk assessment of antibiotics in the water environment of Yangtze River Economic Belt[J]. China Environmental Science, 2023, 43(7): 3713-3729.
- [14] 张楷文,张海燕,孔聪,等.水产养殖环境中农兽药物的污染暴露水平及其风险影响评价[J].环境科学,2024,45(1):151-158.
 - ZHANG K W, ZHANG H Y, KONG C, et al. Exposure level and risk impact assessment of pesticides and veterinary drugs in aquaculture environment[J]. Environmental Science, 2024, 45 (1): 151-158.
- [15] 董恒涛, 艾芸, 李月琪, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法测定水产养殖水体中 21 种磺胺类抗生素残留量[J]. 环境化学, 2023, 42(2): 671-674.
 DONG HT, AIY, LIYQ, et al. Determination of sulfonamides
 - DONG H T, AI Y, LI Y Q, et al. Determination of sulfonamides in water from aquaculture environment by UHPLC-MS/MS[J]. Environmental Chemistry, 2023, 42(2): 671-674.
- [16] 姜蕾,金磊,胡涛. 粉末活性炭去除原水中典型抗生素的试验[J]. 净水技术,2022,41(12):127-130,152.

 JIANG L, JIN L, HU T. Experiment of typical antibiotics removal in raw water by powdered activated carbon[J]. Water Purification Technology, 2022,41(12):127-130,152.
- [17] CHEN K L, LIU L C, CHEN W R. Adsorption of sulfamethoxazole and sulfapyridine antibiotics in high organic content soils [J]. Environmental Pollution, 2017, 231: 1163-1171. DOI: 10.1016/j.envpol.2017.08.011.