

污水中溶解性有机质对土壤吸附四溴双酚 A 的影响

孙兆海, 毛 丽, 冯 政, 余益军, 于红霞

(污染控制与资源化研究国家重点实验室, 南京大学环境学院, 江苏 南京 210093)

摘 要:采用批量平衡实验方法,研究了城市污水处理厂进水和出水中的溶解性有机质(DOM)对四溴双酚 A(TBBPA)在 3 种土壤中吸附行为的影响。结果表明,TBBPA 在 3 种土壤中的分配系数为 20.0~465.7 L·kg⁻¹,pH 和有机质含量是影响土壤吸附 TBBPA 的重要因素。DOM 对土壤吸附 TBBPA 的影响与 DOM 添加浓度和土壤性质有关。DOM 的加入没有抑制 TBBPA 在潮土和草甸棕壤中的吸附,但显著抑制了 TBBPA 在灰色石灰土中的吸附。DOM 对土壤吸附 TBBPA 的影响主要是 TBBPA 与 DOM 在土壤中的累积吸附效应和溶液 pH 等共同作用的结果。

关键词:四溴双酚 A;溶解性有机质;吸附;污水;土壤

中图分类号: X53;X131.3 **文献标识码:**A **文章编号:**1672-2043(2008)06-2222-05

Effects of Dissolved Organic Matter from Wastewater on Sorption of Tetrabromobisphenol A to Soils
SUN Zhao-hai, MAO Li, FENG Zheng, YU Yi-jun, YU Hong-xia
(State Key Laboratory of Pollution Control and Resource Reuse, School of the Environment, Nanjing University, Nanjing 210093, China)
Abstract: Sorption of tetrabromobisphenol A (TBBPA) on soil influences the fate and transport of TBBPA in environment, and the sorption process on soil may be complicated in the presence of dissolved organic matter (DOM). Using batch equilibrium experiments, the effects of DOM isolated from the influent and effluent of a municipal wastewater treatment plant on the sorption of TBBPA to three soils were investigated. The results showed that the distribution coefficients of TBBPA in the three soils ranged from 20.0 to 465.7 L·kg⁻¹, and that the pH and organic matter content of the soils played an important role in the sorption of TBBPA. The effects of DOM on the sorption were strongly related to the concentration of the DOM and the properties of the soils. While the presence of DOM did not inhibit the sorption of TBBPA to the fluvo-aquic soil (sandy loam) and the meadow brown soil (loamy clay), it significantly suppressed the sorption of TBBPA to the grey lime soil (silt loam). The impacts of the DOM on the sorption of TBBPA were mainly controlled by the cumulative sorption effect and the solution pH. The results of this work would help to understand the sorption and transport behaviors of TBBPA in soils irrigated with wastewater.
Keywords: tetrabromobisphenol A; dissolved organic matter; sorption; wastewater; soil

水资源短缺是全世界面临的严峻问题,为解决这一问题,采用污水或者处理后的污水灌溉已成为较为普遍的现象,在干旱和半干旱地区尤为明显。污水灌溉在带来社会效益的同时,也会带来环境问题。污水中不但含有有毒有害的重金属和有机污染物^[1-3],还含有相对较高浓度的溶解性有机质(DOM)^[3]。土壤中 DOM 的输入对污染物的吸附和迁移行为具有重要的影响,已引起研究者的广泛关注^[4-8]。研究表明,

DOM 对有机污染物吸附的影响不仅取决于土壤和 DOM 的性质,也与污染物的性质密切相关^[6-8]。迄今为止,关于这方面的研究所选用的目标化合物多集中在农药上^[6-7],对多环芳烃(PAHs)吸附的影响也有报道^[8]。

四溴双酚 A(TBBPA)是一种具有较强疏水性的离子型有机污染物,其 lgK_{ow} 为 4.5、水溶解度为 4.16 mg·L⁻¹、pK_{a1} 和 pK_{a2} 分别为 7.5 和 8.5^[9],其性质与研究较多的农药如阿特拉津等和非极性的 PAHs 存在较大差异。作为使用量最大的溴化阻燃剂,TBBPA 已在环境中普遍检出^[10-12],但目前关于 TBBPA 的研究多集中在毒性效应和降解行为上^[13-15],在土壤中吸附行为的研究还鲜见报道。本文以 TBBPA 为目标化合物,研究了城市污水处理厂进水和出水中的 DOM 对其在土

收稿日期:2008-01-24
基金项目:国家自然科学基金项目(20737001,20577020)
作者简介:孙兆海(1978—),男,博士研究生,主要研究方向为有机污染物的土壤环境化学与污染控制。
E-mail: zhsun2005@126.com

壤中吸附行为的影响, 以期为污灌区 TBBPA 的环境风险预测和污染土壤的修复提供理论基础。

1 材料与方法

1.1 供试土壤

供试土壤为潮土、草甸棕壤和灰色石灰土, 分别采自河南封丘、辽宁沈阳和广西河池农田表层土壤(0~20 cm), 其基本性质列于表 1。土壤自然风干后过 0.25 mm 筛, 用于吸附实验。

表 1 供试土壤的基本理化性质

Table 1 Physical and chemical properties of the tested soils							
土壤名称	pH	有机碳/ g·kg ⁻¹	CEC/ cmol·kg ⁻¹	粒径组成/%			土壤质地
				黏粒	粉砂粒	砂粒	
潮土	8.16	8.47	10.8	13.4	24.2	62.4	砂质壤土
草甸棕壤	7.81	13.7	22.6	26.9	21.8	51.3	壤质黏土
灰色石灰土	7.11	21.3	9.50	12.8	45.9	41.3	粉砂壤土

1.2 仪器与试剂

Agilent 1100 高效液相色谱仪(美国安捷伦公司); Shimadzu TOC-5000A 有机碳分析仪(日本岛津公司); 恒温高速离心机(美国 Beckman 公司); 气浴恒温振荡器(金坛市医疗仪器厂); Mettler-Toledo 320-S 型 pH 计(上海梅特勒-托利多公司); DDSJ-308-A 型电导率仪(上海雷磁仪器厂)。四溴双酚 A [4,4'-isopropylidenebis(2,6-dibromophenol); TBBPA], 购于 Aldrich 公司(美国), 纯度>97%。甲醇为色谱纯(美国 Tedia 公司), 其余试剂为分析纯。

1.3 实验方法

1.3.1 污水中 DOM 的提取

采集的污水样品为南京锁金村污水处理厂的进水和处理后的出水, 污水处理工艺为活性污泥法。采集的样品在 4℃条件下 10 000 r·min⁻¹ 离心 15 min 后过 0.45 μm 滤膜, 得到的溶液即为 DOM 溶液。进水和出水 DOM 溶液的 pH 值分别为 7.88 和 8.11, 电导率分别为 902 和 915 μS·cm⁻¹, 溶解性有机质(以溶解性有机碳表示)的浓度分别为 78 和 53 mg DOC·L⁻¹。DOM 溶液加入 100 mg·L⁻¹ NaN₃ 后放入 4℃冰箱保存, 用于吸附实验。

1.3.2 TBBPA 的吸附实验

TBBPA 在土壤中的吸附采用批量平衡实验方法。准确称取一定量土壤于 15 mL 玻璃离心管中, 加入 10 mL 含有不同浓度 DOM 的背景电解质溶液(pH 值均调为 8.0)。背景电解质为 0.01 mol·L⁻¹ CaCl₂ 和

100 mg·L⁻¹ NaN₃ 溶液。由于 TBBPA 的溶解度较小, 先将 TBBPA 配制成高浓度的甲醇贮备液, 然后将甲醇贮备液加入离心管土水悬液中。为了避免共溶效应, 甲醇的体积占溶液总体积的比例不超过 0.1%。加入 TBBPA 系列浓度贮备液后, 盖上具有聚四氟乙烯垫片的盖子, 在恒温振荡箱中 25℃条件下 150 r·min⁻¹ 振荡 48 h(吸附动力学实验表明在 48 h 时吸附已基本达到平衡)。振荡平衡后, 4 000 r·min⁻¹ 离心 10 min, 取出 1 mL 上清液用于测定 TBBPA 的浓度。每个处理 2 个重复。pH 对土壤吸附 TBBPA 的影响实验采用 1.0 mol·L⁻¹ HCl 和 1.0 mol·L⁻¹ NaOH 调节体系的 pH 值, 最初加入的 TBBPA 浓度为 0.4 mg·L⁻¹, 平衡离心后测定上清液 pH 值及 TBBPA 的浓度。TBBPA 的吸附量采用差量法计算, 即吸附前后溶液中 TBBPA 量的差值为土壤吸附量。无土对照实验表明, 实验过程中因挥发、降解和吸附到瓶壁而造成的 TBBPA 损失可以忽略不计。

1.4 TBBPA 的分析方法

溶液中 TBBPA 的浓度采用高效液相色谱(Agilent 1100)测定, 流动相为甲醇和 0.2% 乙酸溶液(体积比, 85:15), 流速为 1 mL·min⁻¹, 柱温为 30℃, 检测波长为 210 nm。

2 结果与讨论

2.1 TBBPA 在土壤的吸附

TBBPA 的吸附等温线采用线性方程(式 1)拟合, 其拟合参数如表 2 所示。

$$q = K_d c_e$$

(1)

式中: q 表示土壤中 TBBPA 的吸附量, mg·kg⁻¹; K_d 为 TBBPA 在土壤中的分配系数, L·kg⁻¹; c_e 为平衡时溶液中 TBBPA 的浓度, mg·L⁻¹。从表 2 可以看出, 线性方程可以较好地拟合 TBBPA 的吸附等温线($R^2 \geq 0.939$), 表明 TBBPA 在土壤中的吸附主要以分配作用为主。TBBPA 在潮土、草甸棕壤和灰色石灰土中的分配系数分别为 20.0、80.8 和 465.7 L·kg⁻¹。TBBPA 在土壤中的碳标化分配系数 K_{oc} 可以用式(2)计算:

$$K_{oc} = K_d / f_{oc}$$

(2)

式中: f_{oc} 表示土壤中有机碳的含量。计算得到的 TBBPA 在 3 种土壤中的 K_{oc} 分别为 2 361、5 898 和 21 864 L·kg⁻¹。 K_{oc} 在 3 种土壤中的值相差很大, 其主要原因可能与土壤 pH 有关。对于离子型有机污染物来说, pH 对其在土壤中吸附的影响非常显著^[16-17]。在 3 种土壤中, K_{oc} 随 pH 的变化情况如图 1 所示。从中可

以看出,随着 pH 的升高, K_{oc} 逐渐下降,主要是因为 TBBPA 在考察的 pH 值范围内,随 pH 的升高,离子态含量逐渐增加,TBBPA 与土壤表面负电荷的斥力也逐渐增强,土壤对 TBBPA 的吸附能力减弱。将 3 种土壤比较来看,在相同的 pH 条件下,在溶液 pH<7.0 时,3 种土壤中 K_{oc} 表现出潮土>草甸棕壤>灰色石灰土的趋势,在 pH>7.0 后, K_{oc} 在 3 种土壤中相差不大,其原因可能与不同土壤有机质的结构和性质不同有关。对于分配系数 K_d 来说,土壤 pH 和有机质含量是影响其大小的重要因素。

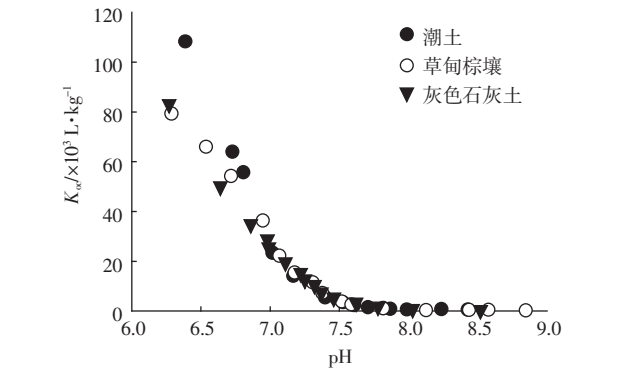


图 1 pH 对 TBBPA 在土壤中 K_{oc} 的影响
Figure 1 Effects of pH on K_{oc} of TBBPA in the soils

2.2 进水 DOM 对土壤吸附 TBBPA 的表观影响

加入进水 DOM 后,TBBPA 在土壤中的吸附行为发生了改变,其吸附等温线可以用线性方程描述,拟合的线性方程参数列于表 2。分配系数 K_d 表示了土

壤对 TBBPA 吸附量的大小,与未加 DOM 的对照相比,如果加入 DOM 后 K_d 变大,则表明 DOM 的加入增加了 TBBPA 的吸附,如果 K_d 减小则表明抑制吸附。从表 2 可以看出,在潮土和草甸棕壤中,添加低浓度 DOM($\leq 18\text{ mg DOC}\cdot\text{L}^{-1}$)时 DOM 的加入增加了 TBBPA 的吸附,但吸附的增加量随 DOM 浓度的增加而减少,如在添加 DOM 浓度为 $9\text{ mg DOC}\cdot\text{L}^{-1}$ 时吸附量与对照相比分别增加了 36.5%和 57.7%,在添加浓度为 $18\text{ mg DOC}\cdot\text{L}^{-1}$ 时吸附量则分别增加了 25.0%和 22.3%。在添加 DOM 浓度为 $36\text{ mg DOC}\cdot\text{L}^{-1}$ 时与对照相比吸附量变化不大。在灰色石灰土中,DOM 的加入均抑制了土壤对 TBBPA 的吸附,在添加 DOM 浓度为 9、18 和 $36\text{ mg DOC}\cdot\text{L}^{-1}$ 时吸附量分别减少了 37.6%、61.0%和 70.9%。

2.3 出水 DOM 对土壤吸附 TBBPA 的表观影响

如表 3 所示,加入出水 DOM 对土壤吸附 TBBPA 的影响与进水 DOM 的趋势一致,但影响的程度有所差别。在潮土和草甸棕壤中,加入出水 DOM 浓度为 $9\text{ mg DOC}\cdot\text{L}^{-1}$ 时吸附量与对照相比分别增加了 65.5%和 13.1%;在添加浓度为 $18\text{ mg DOC}\cdot\text{L}^{-1}$ 时吸附量则分别增加了 23.5%和 2.48%。在灰色石灰土中,在添加 DOM 浓度为 9 和 $18\text{ mg DOC}\cdot\text{L}^{-1}$ 时吸附量分别减少了 62.2%和 69.0%。由此可以看出,污水经过处理后,DOM 的浓度有所降低,但对土壤吸附 TBBPA 的影响仍不可忽视。

2.4 DOM 影响土壤吸附 TBBPA 的内在机制

TBBPA 是一种离子型疏水有机化合物,具有两

表 2 加入进水 DOM 后吸附等温线的线性方程参数和平衡液 pH 值
Table 2 Linear model parameters for sorption isotherms and equilibrium solution pH values in the presence of influent DOM

DOM/mg DOC·L ⁻¹	潮土			草甸棕壤			灰色石灰土		
	$K_d/\text{L}\cdot\text{kg}^{-1}$	R^2	pH	$K_d/\text{L}\cdot\text{kg}^{-1}$	R^2	pH	$K_d/\text{L}\cdot\text{kg}^{-1}$	R^2	pH
0	20.0 ± 0.59	0.987	7.58 ± 0.02	80.8 ± 3.46	0.973	7.45 ± 0.05	465.7 ± 44.3	0.939	7.03 ± 0.05
9	27.3 ± 0.45	0.996	7.72 ± 0.01	127.4 ± 8.33	0.960	7.54 ± 0.02	290.8 ± 19.7	0.964	7.40 ± 0.05
18	25.0 ± 0.54	0.993	7.85 ± 0.01	98.8 ± 5.43	0.968	7.57 ± 0.03	181.7 ± 11.8	0.968	7.60 ± 0.02
36	19.5 ± 0.84	0.971	7.99 ± 0.03	82.9 ± 7.13	0.925	7.69 ± 0.04	135.7 ± 12.8	0.926	7.73 ± 0.03

表 3 加入出水 DOM 后吸附等温线的线性方程参数和平衡液 pH 值
Table 3 Linear model parameters for sorption isotherms and equilibrium solution pH values in the presence of effluent DOM

DOM/mg DOC·L ⁻¹	潮土			草甸棕壤			灰色石灰土		
	$K_d/\text{L}\cdot\text{kg}^{-1}$	R^2	pH	$K_d/\text{L}\cdot\text{kg}^{-1}$	R^2	pH	$K_d/\text{L}\cdot\text{kg}^{-1}$	R^2	pH
0	20.0 ± 0.59	0.987	7.58 ± 0.02	80.8 ± 3.46	0.973	7.45 ± 0.05	465.7 ± 44.3	0.939	7.03 ± 0.05
9	33.1 ± 1.38	0.973	7.67 ± 0.03	91.4 ± 6.34	0.942	7.57 ± 0.01	175.9 ± 8.71	0.978	7.64 ± 0.04
18	24.7 ± 0.81	0.989	7.85 ± 0.02	82.8 ± 5.45	0.956	7.66 ± 0.01	144.3 ± 6.97	0.983	7.76 ± 0.03

一个可解离的羟基,其 pK_{a1} 和 pK_{a2} 分别为 7.5 和 8.5^[9]。虽然在加入进水和出水 DOM 前把溶液的 pH 值均调为 8.0,但平衡后,溶液的 pH 值发生了改变(表 2、3)。随着 DOM 添加浓度的增加,溶液的 pH 值与未添加 DOM 的处理相比均有所升高,这可能与进水和出水 DOM 的处理相比均有所升高,这可能与进水和出水 DOM 的缓冲能力有关。如 2.1 所述,TBBPA 在土壤中的吸附显著受到 pH 的影响。因此,污水中 DOM 对 TBBPA 吸附的影响主要包括两个方面,一是 DOM 溶液的加入导致了体系 pH 的升高,其影响是抑制 TBBPA 的吸附,二是 DOM 自身对吸附的影响即 DOM 的净影响。

图 2 显示了未添加 DOM 和添加 DOM 时 TBBPA 的分配系数随 pH 的变化曲线。在相同的 pH 时,如果添加 DOM 后 TBBPA 在土壤中的 K_d 大于未添加 DOM 时的值,则表明 DOM 对 TBBPA 的净影响是增加吸附的,如果添加 DOM 时的 K_d 小于未添加 DOM 时的值,则表明 DOM 的净影响是抑制吸附的。从图 2 可以看出,在相同 pH 时,在 3 种土壤中添加 DOM 的 K_d 值均大于未添加 DOM 时的值,说明进水和出水 DOM 的净影响均是促进了 TBBPA 在土壤中的吸附。在添加相同的 DOM 浓度时,进水和出水 DOM 促进吸附的程度有所不同,尤其是在潮土和草甸棕壤中,这可能与进出水 DOM 的性质不同有关。DOM 增加有机污染物在土壤中的吸附主要有两种机制,分别为共吸附和累积吸附^[8]。共吸附是指 DOM 和有机污染物先结合形成复合物,有机污染物以复合物的形式被吸附到土壤中。累积吸附是指 DOM 先被吸附到土壤上,增加了土壤的有机质含量,形成了新的吸附位点,从而增加有机污染物的吸附。在添加进水和出水 DOM 后,吸附等温线呈线性,所以共吸附不是外源 DOM 增加 TBBPA 吸附的主要机制^[8]。在本研究中,进水和出水 DOM 的累积吸附效应可能是增加 TBBPA 在土壤中吸附的主要机制。因此,进水和出水 DOM 的净影响是增加 TBBPA 的吸附,但是 DOM 溶液较高的 pH 和良好的缓冲性能则增加了平衡体系的 pH 值,其影响是抑制 TBBPA 的吸附,表观影响则是这两种影响共同作用的结果。Seol 和 Lee 研究了处理后污水中的 DOM 对三嗪类农药在土壤中迁移的影响,发现观测到的吸附量减少值明显大于只考虑 DOM 影响的模型预测值^[18]。因此,在评价污水中的 DOM 对有机污染物在土壤中吸附和迁移的影响时,也必须考虑到其他因素的影响。

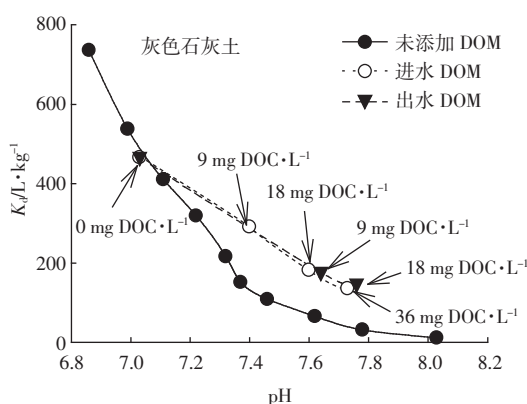
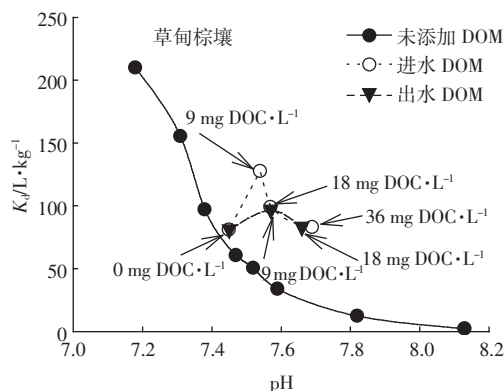
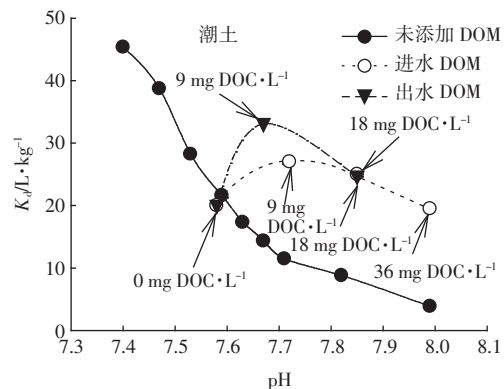


图 2 pH 对 TBBPA 在土壤中 K_d 的影响

Figure 2 Effects of pH on K_d of TBBPA in the soils

TBBPA 的 pK_a 在中性范围内,自然条件下 pH 对 TBBPA 环境行为的影响十分明显。Arnon 等研究发现,TBBPA 的溶解度在 pH>7.5 后随 pH 的增加迅速上升,在 pH=9 时可达 500 mg·L⁻¹,TBBPA 从土柱中淋洗出的量随淋洗液 pH 的增加而增加^[12]。在本研究中,虽然 DOM 的净影响是增加 TBBPA 吸附的,但由于 DOM 溶液较高的 pH 值和良好的缓冲能力仍然导致了灰色石灰土中 TBBPA 吸附量的下降。因此,在利用污水或处理后的污水进行灌溉时,土壤溶液的 pH 可能会升高,从而减少 TBBPA 在土壤中的吸附或

促进吸附到土壤中的 TBBPA 解吸,导致 TBBPA 在土壤中的迁移能力增强,尤其是在低 pH 的土壤中,由此产生的环境风险须值得我们关注。

3 结论

TBBPA 在 3 种土壤中的分配系数(K_d)为 20.0~465.7 L·kg⁻¹,表明土壤对 TBBPA 有较强的结合能力。pH 和有机质含量是影响 TBBPA 在土壤中吸附的重要因素。城市污水处理厂进水和出水中的 DOM 对土壤吸附 TBBPA 的影响与 DOM 添加浓度和土壤性质密切相关。DOM 的加入没有抑制 TBBPA 在潮土和草甸棕壤中的吸附,但显著抑制了 TBBPA 在灰色石灰土中的吸附。DOM 对土壤吸附的影响作用主要是 TBBPA 与 DOM 在土壤中的累积吸附效应和溶液 pH 等共同作用的结果。

参考文献:

- [1] Oliveria A D, Bocio A, Trevilato T M B, et al. Heavy metals in untreated/ treated urban effluent and sludge from a biological wastewater treatment plant[J]. *Environ Sci Pollut Res*, 2007, 14(7):483-489.
- [2] Bouwer H. Groundwater problems caused by irrigation with sewage effluent[J]. *J Environ Health*, 2000, 63(3):17-20.
- [3] 胡雪峰,朱 琴,陈 斌,等. 污水处理厂出水的环境质量和农业再利用[J]. 农业环境保护, 2002, 21(6):530-534.
HU Xue-feng, ZHU Qin, CHEN Bin, et al. The environmental quality of treated wastewater and its reuse for irrigation[J]. *Agro-environmental Protection*, 2002, 21(6):530-534.
- [4] 凌婉婷,徐建民,高彦征,等. 溶解性有机质对土壤中有机污染物环境行为的影响[J]. 应用生态学报, 2004, 15(2):326-330.
LING Wan-ting, XU Jian-min, Gao Yan-zheng, et al. Influence of dissolved organic matter(DOM) on environmental behaviors of organic pollutants in soils[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2004, 15(2):326-330.
- [5] Williams C F, Agassi M, Letey A J, et al. Facilitated transport of napropamide by dissolved organic matter through soil columns[J]. *Soil Sci Soc Am J*, 2000, 64(2):590-594.
- [6] Ling W, Wang H, Xu J, et al. Sorption of dissolved organic matter and its effects on the atrazine sorption on soils[J]. *J Environ Sci*, 2005, 17(3):478-482.
- [7] Huang X, Lee L S. Effect of dissolved organic matter from animal waste effluent on chlorpyrifos sorption by soils[J]. *J Environ Qual*, 2001, 30(4):1258-1265.
- [8] Gao Y, Xiong W, Ling W, et al. Impact of exotic and inherent dissolved organic matter on sorption of phenanthrene by soils[J]. *J Hazard Mater*, 2007, 140(1-2):138-144.
- [9] WHO/IPCS. Environmental Health Criteria 172:Tetrabromobisphenol A and derivatives[R]. Geneva, World Health Organization, 1995.
- [10] de Wit C A. An overview of brominated flame retardants in the environment[J]. *Chemosphere*, 2002, 46(5):583-624.
- [11] Law R J, Allchin C R, de Boer L, et al. Levels and trends of brominated flame retardants in the European environment[J]. *Chemosphere*, 2006, 64(2):187-208.
- [12] Arnon S, Ronen Z, Yakirevich A, et al. Evaluation of soil flushing potential for clean-up of desert soil contaminated by industrial wastewater[J]. *Chemosphere*, 2006, 62(1):17-25.
- [13] Birnbaum L S, Staskal D F. Brominated flame retardants: Cause for concern?[J]. *Environ Health Perspect*, 2004, 112(1):9-17.
- [14] Voordeckers J W, Fennell D E, Jones K, et al. Anaerobic biotransformation of tetrabromobisphenol A, tetrachlorobisphenol A, and bisphenol A in estuarine sediments [J]. *Environ Sci Technol*, 2002, 36(4):696-701.
- [15] Eriksson J, Rahm S, Green N, et al. Photochemical transformations of tetrabromobisphenol A and related phenols in water[J]. *Chemosphere*, 2004, 54(1):117-126.
- [16] 张 瑾,司友斌. 除草剂胺苯磺隆在土壤中的吸附[J]. 农业环境科学学报, 2006, 25(5):1289-1293.
ZHANG Jin, SI You-bin. Adsorption of herbicide ethametsulfuron-methyl on soils[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2006, 25(5):1289-1293.
- [17] Kah M, Brown C D. Prediction of the adsorption of ionizable pesticides in soils[J]. *J Agric Food Chem*, 2007, 55(6):2312-2322.
- [18] Seol Y, Lee L S. Coupled effects of treated effluent irrigation and wetting-drying cycles on transport of triazines through unsaturated soil columns[J]. *J Environ Qual*, 2001, 30(5):1644-1652.