

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第3期

Vol.39 No.3

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

长三角典型站点冬季大气 PM_{2.5} 中 OC、EC 污染特征 康晖, 朱彬, 王红磊, 施双双 (961)

南京北郊能见度变化中二次无机盐消光的重要作用 于超, 于兴娜, 赵天良, 张蕾, 马国煦, 王咏薇 (972)

常州夏冬季 PM_{2.5} 中无机组分昼夜变化特征与来源解析 刘佳澍, 顾远, 马帅帅, 苏亚兰, 叶招莲 (980)

天津市春季道路降尘 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中的元素特征 王士宝, 姬亚芹, 李树立, 张伟, 张蕾 (990)

北京、新乡夏季大气颗粒物中重金属的粒径分布及人体健康风险评价 张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 王小颖, 杨帅, 许骜鹏, 王书亭, 谷超, 王梦蕾, 任浩, 张子洋, 闫广轩, 曹治国, 王跃思 (997)

山西省武乡县城大气 PM_{2.5} 痕量重金属的生态和健康风险分析 郭墨霞, 耿红, 张晋宏, 周欢, 彭妍, 翟帅莹, 李金磊, 陈雨杉 (1004)

隧道中机动车排放颗粒物及无机元素特征 李凤华, 张衍杰, 张静, 袁远, 吴琳, 毛洪钧 (1014)

河南省 2013 年大气氨排放清单建立及分布特征 王琛, 尹沙沙, 于世杰, 卫军华, 谷幸珂, 官密秘, 张瑞芹 (1023)

城市道路行道树池裸地扬尘排放特征 李贝贝, 秦建平, 祁丽荣, 杨涛, 曲松, 石爱军, 黄玉虎 (1031)

DOC 和 CDPF 对柴油公交车颗粒物组分影响 楼狄明, 耿小雨, 宋博, 谭丕强, 胡志远, 刘继跃 (1040)

南水北调中线工程总干渠河南段原水中消毒副产物前体物变化规律 黄飘逸, 徐斌, 郭东良 (1046)

广州市流溪河水体中 6 种内分泌干扰素时空分布特征与环境风险 樊静静, 王赛, 唐金鹏, 戴玉女, 王林, 龙胜兴, 何文祥, 刘帅磊, 王佳希, 杨扬 (1053)

西藏拉萨河流域河水主要离子化学特征及来源 张清华, 孙平安, 何师意, 文化, 刘明隆, 于爽 (1065)

太子河下游河流硝酸盐来源及其迁移转化过程 李艳利, 杨梓睿, 尹希杰, 孙伟 (1076)

海南岛北部海湾沉积物重金属来源、分布主控因素及生态风险评价 曾维特, 杨永鹏, 张东强, 刘兵, 张航飞, 吴多誉, 王晓林 (1085)

天津农田重金属污染特征分析及降雨沥浸影响 许萌萌, 刘爱凤, 师荣光, 蓝靖, 田永, 赵宗山 (1095)

太湖出入湖河道与湖体水质季节差异分析 查慧铭, 朱梦圆, 朱广伟, 杨周生, 许海, 沈睿杰, 钟春妮 (1102)

春季敏感时期三峡水库典型支流沉积物-水界面氮释放特性 李欣, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 苏青青, 吕林鹏, 王雄, 黄亚男, 吴庆 (1113)

不同湖泊入湖河流沉积物可转化态氮的空间分布及其影响因素 周睿, 袁旭音, Marip Ja Bawk, 于辉辉, 章琪, 唐豆豆 (1122)

水文气象因素对东南山区水库硅藻异常增殖的影响 孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽 (1129)

深水型水库热分层诱导水质及真菌种群结构垂向演替 商潘路, 陈胜男, 黄廷林, 张海涵, 康鹏亮, 王跃, 钊珍芳, 刘彤彤 (1141)

太湖竺山湾春季浮游细菌群落结构及影响因素 薛银刚, 刘菲, 孙萌, 江晓栋, 耿金菊, 滕加泉, 谢文理, 张皓, 陈心一 (1151)

分层型水源水库沉积物需氧量特性 苏露, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 文刚, 李扬, 陈家炜, 王晓江 (1159)

污水氮浓度和 NH₄⁺/NO₃⁻ 比对粉绿狐尾藻去氮能力和植物体氮组分的影响 马永飞, 杨小珍, 赵小虎, 胡承孝, 谭启玲, 孙学成, 吴金水 (1167)

水体氮营养负荷对苦草净化能力和光合荧光特性的影响 周裔文, 许晓光, 韩睿明, 周晓红, 冯德友, 李致春, 王国祥 (1180)

化学预氧化耦合生物锰氧化对水中有机物的去除 菅之舆, 常洋洋, 王立新, 梁金松, 柏耀辉 (1188)

铜铁氧体法处理模拟染料废水 韩志勇, 韩昆, 郝昊天, 于建伟, 石宝友, 庄媛, 孔岩 (1195)

草酸根对 α-FeOOH 多相 UV-Fenton 催化能力的增效实验 苗笑增, 戴慧旺, 陈建新, 蒋柏泉, 龚烟 (1202)

生物基纳米 HZO 杂化材料的研制及其除磷特性 邱慧, 秦智峰, 刘凤玲, 梁晨, 宋明霞, 许正文, 管益东 (1212)

铁锰氧化物/生物炭复合材料对水中硝酸根的吸附特性 郑晓青, 韦安磊, 张一璇, 史良干, 张潇 (1220)

PAAm/HACC 半互穿网络水凝胶的制备及其对水中腐殖酸的吸附性能 刘泽瑛, 周少奇, 马福臻 (1233)

二氧化钛对地下水中砷硅的吸附及再生回用 马文静, 阎莉, 张建锋 (1241)

一体式絮体-超滤工艺去除腐殖酸效能与机制 李文江, 于莉芳, 苗瑞, 马百文 (1248)

中国城镇污水处理厂温室气体排放时空分布特征 闫旭, 邱德志, 郭东丽, 齐星昊, 郑仕侃, 程轲, 孙剑辉, 刘建伟 (1256)

硝化耦合 CANON 的铁锰生物净化工艺启动与运行 李冬, 曹瑞华, 杨航, 王艳菊, 吕赛赛, 张杰 (1264)

纤维载体的生物膜 CANON 反应器的启动特性 顾澄伟, 陈方敏, 李祥, 黄勇, 尤星怡, 金润, 张文静, 董石语 (1272)

DO/NH₄⁺-N 实现短程硝化过程中生物膜特性 赵青, 卞伟, 李军, 王文啸, 孙艺齐, 梁东博, 张舒燕 (1278)

AUSB 中置曝气对 CANON 颗粒污泥工艺的影响 成朔, 李冬, 张杰, 李帅, 曹瑞华, 吕赛赛 (1286)

有机碳源对启动及运行 CANON 颗粒污泥工艺的影响 李冬, 王艳菊, 吕育锋, 曹瑞华, 李帅, 张杰 (1294)

中试一体式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器的启动与区域特性 周正, 王凡, 林兴, 董石语, 朱强, 李祥, 黄勇 (1301)

硝化液回流比对 ABR-MBR 工艺反硝化除磷效能的影响 吕亮, 尤雯, 张敏, 吴鹏, 沈耀良 (1309)

磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响 宿程远, 郑鹏, 卢宇翔, 袁秋红, 赵力剑, 廖黎明, 黄智 (1316)

好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物的特征及主要组分 杨丹, 刘东方, 杜丽琼, 黄文力 (1325)

环丙沙星对膜生物反应器中微生物群落及抗性基因的影响 戴琦, 刘锐, 梁玉婷, 舒小铭, 徐灿灿, 陈吕军 (1333)

CEM-UF 组合膜-硝化/反硝化系统处理低 C/N 废水及种群结构分析 邢金良, 张岩, 陈昌明, 张博康, 郭威, 马翔山 (1342)

磷对混养反硝化污泥活性和微生物群落结构的影响 王佩琦, 周伟丽, 何圣兵, 黄荣振 (1350)

甲烷厌氧氧化协同硝酸盐还原菌群驯化及其群落特征 薛松, 张梦竹, 李琳, 刘俊新 (1357)

城市尾水排海过程中微生物及主要致病菌扩散规律 徐爱玲, 牛成洁, 宋志文, 郎秀璐, 郭明月 (1365)

氧四环素的微生物燃料电池处理及微生物群落 严伟富, 肖勇, 王淑华, 丁蕊, 赵峰 (1379)

近 30 年余干县耕地土壤碳氮比时空变异特征及其影响因素 江叶枫, 钟珊, 李婕, 王澜珂, 郭熙 (1386)

中宁枸杞土壤碳组分分布特征及其空间异质性 王幼奇, 赵云鹏, 白一茹, 张兴 (1396)

滨海滩涂围垦区不同围垦年限土壤酶活性变化及其与理化性质关系 解雪峰, 濮励珊, 王琪琪, 朱明, 王小涵 (1404)

青藏高原中东部表层土壤中多环芳烃的分布特征、来源及生态风险评价 周雯雯, 李军, 胡健, 朱兆洲 (1413)

基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤重金属源解析 卢鑫, 胡文友, 黄标, 李元, 祖艳群, 湛方栋, 卞荣禧 (1421)

铁锰双金属材料在不同 pH 条件下对土壤 As 和重金属的稳定化作用 费琦, 阎秀兰, 李永华 (1430)

我国 3 个城市人体血清中新型溴代阻燃剂水平趋势及分布特征 王庆华, 袁浩东, 金军, 李鹏, 马玉龙, 王英 (1438)

《环境科学》征订启事(979) 《环境科学》征稿简则(996) 信息(1022, 1064, 1293)

氧四环素的微生物燃料电池处理及微生物群落

严伟富^{1,2}, 肖勇^{1*}, 王淑华^{1,2}, 丁蕊^{1,2}, 赵峰¹

(1. 中国科学院城市环境研究所, 中国科学院城市污染物转化重点实验室, 厦门 361021; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 氧四环素(OTC)作为一种广谱性抗生素而被大量使用, 其滥用不仅直接破坏生态系统, 更容易引起微生物耐药性和抗性基因污染等问题. 本研究利用微生物燃料电池(MFC)处理 OTC, 研究 OTC 在 MFC 不同运行时期的去除率变化情况, 发现在运行 150 d 后, MFC 对 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ OTC 的去除率在 132 h 达到 99.0%. 利用高通量测序技术分析并比较了原始接种猪粪与运行 150 d 后 MFC 阳极生物膜的微生物群落结构, 发现厚壁菌门(Firmicutes)处于优势地位, 但相比于原始接种猪粪, MFC 生物膜上的变形菌门(Proteobacteria)的丰度从 2.84% 提高至 8.92% ~ 22.75%, 此外, 真菌菌属(*Eubacterium*)的比例从几乎为 0.00% 显著提高至 20.49% ~ 49.00%. 根据现有研究报道, *Eubacterium* spp. 对多种氧杂环芳香族化合物具有一定的生物降解能力, 本研究表明 *Eubacterium* spp. 可能是一类具有较强 OTC 降解能力的功能微生物.

关键词: 微生物燃料电池; 氧四环素; 抗生素抗性; 微生物群落; 高通量测序

中图分类号: X172; X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)03-1379-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.201708189

Oxytetracycline Wastewater Treatment in Microbial Fuel Cells and the Analysis of Microbial Communities

YAN Wei-fu^{1,2}, XIAO Yong^{1*}, WANG Shu-hua^{1,2}, DING Rui^{1,2}, ZHAO Feng¹

(1. Key Laboratory of Urban Pollutant Conversion, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Oxytetracycline (OTC) as an important broad spectrum antibiotic has been widely used in animal husbandry. However, the abuse of OTC not only has a direct adverse impact on ecosystems, but also exacerbates the appearance of antibiotic resistance bacteria and antibiotic resistance genes. OTC-containing wastewater was treated using microbial fuel cells (MFCs), and the removal efficiency of OTC in MFCs in different operation periods was investigated. Result showed that the removal efficiency of $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ OTC by MFCs within 132 h was up to 99.0% after 150 d of operation. The bacterial communities in raw pig mature and anodic biofilms were studied by high-throughput sequencing. This showed that Firmicutes were both dominant on phylum a level; However, compared to the raw pig mature, the abundance of Proteobacteria greatly increased from 2.84% to 8.92% - 22.75% in the anodic biofilm. In addition, the abundance of *Eubacterium* spp. in the anodic biofilm increased obviously from nearly 0.00% to 20.49% - 49.00%. It has been reported that some *Eubacterium* spp. were able to biodegrade oxygen heterocyclic aromatic compounds contained in OTC. Therefore, *Eubacterium* spp. is suggested as potential functional species in the biodegradation of OTC and/or its metabolites. This work proves the feasibility and effectiveness of removing OTC-containing wastewater by using MFCs.

Key words: microbial fuel cell; oxytetracycline(OTC); antibiotic resistance; microbial community; high-throughput sequencing

自 1928 年被发现以来, 抗生素使用量逐年增加, 现已被认为是一种新兴有机污染物并引起广泛关注^[1~3]. 氧四环素(oxytetracycline, OTC)作为一种重要的广谱性抗生素, 被广泛应用于畜牧养殖业, 但由于其过度使用, 加之约 30% ~ 90% 的抗生素活性成分难以被机体代谢, 因此每年通过尿液等排放到环境中的 OTC 及其活性成分极其巨大^[4], 已广泛进入地表水、地下水、饮用水和底泥沉积物等环境媒介^[5, 6]. 但是, 传统废水处理方法难以有效去除残留于环境中的 OTC^[7]. OTC 不仅会长期存在于环境中对生态系统产生直接的破坏, 也会加速微生物产生抗药性和抗性基因等污染问题^[8]. 因此, OTC 等抗生素污染的有效处理已成为当今环境

研究领域的热点.

生物电化学系统(bioelectrochemical systems, BESs), 包括微生物燃料电池(microbial fuel cells, MFCs)和微生物电解池(microbial electrolysis cells, MECs), 是一种耦合微生物和电化学氧化还原的环境友好的污染物高效处理技术, 在处理染料、重金属、高氯酸盐等众多难处理污染物方面均取得显著效果^[9~11]. 近年来, 该技术被应用于抗生素污染物

收稿日期: 2017-08-21; 修订日期: 2017-09-02

基金项目: 国家自然科学基金项目(51478451, 51208490); 中国科学院知识创新工程青年人才领域前沿项目(IUEQN201306)

作者简介: 严伟富(1991~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为生物电化学技术, E-mail: wfy@iue.ac.cn

* 通信作者, E-mail: yxiao@iue.ac.cn

去除研究,且抗生素去除效率和速率均显著高于仅使用微生物的反应器,揭示了 BESs 作为一种更高效、可行的抗生素处理新方法的潜力^[12-17]。Wen 等^[18, 19]利用单室空气阴极分别处理含头孢曲松钠和盘尼西林废水发现,单室空气阴极在 24 h 对 50 mg·L⁻¹ 头孢曲松钠和 50 mg·L⁻¹ 盘尼西林的去除率达到 91% 和 98%, 并且反应器产电能力相比于仅添加葡萄糖作为底物有较大幅度提高; Guo 等^[20]的研究发现,双室 MFC 在 96 h 对 10 mg·L⁻¹ 磺胺去除率达到 90%, 但 MFC 的产电能力随着抗生素浓度的增大而减小。目前的研究更多关注抗生素对 BESs 性能的影响,较少关注在长期运行过程微生物群落的变化,并且目前没有文献报道 MFC 对 OTC 这一重要抗生素污染物的去除及其关键功能菌群演替变化的研究,而深入了解功能菌群对处理含抗生素废水工艺的快速启动具有重要意义。

因此,本研究利用 MFC 处理 OTC, 研究 OTC 在不同运行时期的去除率变化及电压输出变化,并利用扫描电镜观察阳极生物膜的构建,通过高通量测序技术分析并比较原始接种猪粪与运行 150 d 后阳极生物膜微生物群落的组成,探究在长期处理 OTC 中发挥作用的 key 功能菌群,以期利用 BESs 处理含 OTC 废水提供理论基础。

1 材料与方法

1.1 试剂与药品

氧四环素(纯度 > 95%) 购买于上海阿拉丁生化科技股份有限公司,盐酸土霉素标准品购买于德国 Dr. Ehrenstorfer 公司,戊二醛购买于 Sigma-Aldrich 公司,色谱级乙腈和甲醇购买于德国默克公司,其它试剂为分析纯,购买于国药集团化学试剂有限公司。

1.2 溶液配制

OTC 母液(1.0 g·L⁻¹): 精确称取 1.0 g OTC 药品,利用甲醇溶液溶解并定容于 1 000 mL 容量瓶,而后分装于棕色储样瓶,置于 -20℃ 冰箱避光保存,OTC 母液每月更换。

人工废水: 50 mmol·L⁻¹ 磷酸钠缓冲溶液(pH = 7.0), 1.0 g·L⁻¹ 乙酸钠, 微量金属元素溶液和维生素溶液, 磷酸钠缓冲溶液、金属元素溶液和维生素溶液的具体配方参考文献[21, 22]。

含 OTC(10 mg·L⁻¹) 人工废水: 50 mmol·L⁻¹ 磷酸钠缓冲溶液(pH = 7.0), 加入 10 mL OTC 母液并定容至 1 000 mL 容量瓶使 OTC 终浓度为 10

mg·L⁻¹, 微量金属元素溶液和维生素溶液, 具体配方同上。

1.3 MFC 反应器的构建与运行

采用亚克力板构建双室 MFC 反应器, 其中阴、阳极室为立方体结构(7.0 cm × 5.0 cm × 4.0 cm), 阳极室和阴极室由质子交换膜(浙江千秋环保水处理公司, 中国)分隔, 阴阳极由三层碳毡(4.0 cm × 4.0 cm × 0.2 cm/每片, 甘肃郝氏碳纤维有限公司, 中国)组成, 三层碳毡间依靠钛丝(直径为 1 mm, 上海贵钛金属材料有限公司, 中国)连接并固定, 阴阳两极负载外阻为 500 Ω 的电阻。利用 Keithley2700(吉时利仪器公司, 美国)记录 MFCs 的电压输出变化情况。

阳极室的接种源为猪粪的上清液, 其中猪粪采集自中国厦门市翔安区乐山农场, 阴极液为 50 mmol·L⁻¹ 铁氰化钾溶液。本实验总计 6 个月, 分为两个阶段: ①利用乙酸钠为底物建立 MFCs 生物膜阶段和 ②利用 OTC 作为唯一底物驯化 MFCs 生物膜阶段。在利用乙酸钠为底物建立 MFCs 生物膜的阶段 ①, 阳极液为含 1 g·L⁻¹ 乙酸钠人工废水, 当 MFCs 多次重新换液后电池电压迅速达到 620 mV 左右, 则表示 MFCs 阳极生物膜建立成功, 此时人工废水替换为以 10 mg·L⁻¹ OTC 作为唯一碳源的人工废水, 进入利用 OTC 作为唯一底物驯化 MFCs 生物膜阶段 ②。在阶段 ②, 每个运行周期定时采集 MFC 出水样品并将样品过 0.22 μm 微孔滤头(天津市津腾实验设备有限公司)。在运行 150 d 后, 每 12 h 采集 MFC 出水样品并将样品过 0.22 μm 微孔滤头检测 OTC 浓度变化。无菌对照组是在每次实验前将碳毡放置高温灭菌锅灭菌后进行实验。MFC 与无菌对照组均设置 3 个生物学平行。所有的反应器均放置在生化培养箱(LRH-500 F 型, 上海齐欣科学仪器有限公司, 中国)闭光运行, 运行温度控制在 35℃ ± 2℃。

1.4 高效液相色谱测定 OTC 方法

利用高效液相色谱仪(L-2000, 日立公司, 日本)测定 OTC 浓度变化, 色谱柱为 Agilent Zorbax Eclipse plus C18(4.8 × 250 mm, 5 mm), 柱温为 30℃, 流速为 1 mL·min⁻¹, 检测波长为 278 nm。流动相: A 相为 0.014 mol·L⁻¹ 乙二酸溶液, B 相为乙腈溶液, C 相为甲醇溶液。等度洗脱程序如下: 0 ~ 8 min, 流动相 A、B 和 C 的比例分别为 72%、18% 和 10%。流动相在使用前均过 0.44 μm 混合纤维素酯膜(上海半岛实业有限公司净化器材厂)并利用超

声脱气 30 min.

1.5 微观形貌观察的样品制备

将接种猪粪和阳极生物膜分别放在含 2.5% 戊二醛的 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 磷酸钠缓冲液中, 置于 4°C 冰箱过夜固定后再二次固定 30 min; 将固定好的样品利用不同梯度乙醇溶液逐步脱水: $30\% \rightarrow 30\% \rightarrow 50\% \rightarrow 70\% \rightarrow 90\% \rightarrow 95\% \rightarrow 100\% \rightarrow 100\%$, 每次脱水 10 min; 将脱水好的样品临界干燥 4~6 h 后喷金, 最后利用场发射扫描电子显微镜 (S4800, 日立公司, 日本) 观察并采集照片.

1.6 DNA 提取与高通量测序分析

本实验收集原始接种猪粪和以 OTC 为唯一底物运行 150 d 后的 3 个 MFC 阳极生物膜样品, 分别记为 PRM、MFC1、MFC2 和 MFC3. 对样品冷冻干燥后, 依据生产商使用说明, 利用 FastDNA[®] SPIN Kit for Soil (MP 生物医疗公司, 美国) 试剂盒进行总 DNA 提取.

PCR 反应仪器为美国 ABI GeneAmp[®] 9700 型, 采用的引物为 338F: ACTCCTACGGGAGGCAGCAG 和 806R: GGACTACHVGGGTWTCTAAT. 具体的反应体系与 PCR 仪参数详见文献[17]. 最后, 将所获得的 PCR 产物送至上海美吉医药公司 Illumina MiSeq 平台进行测序分析. 对测序所得序列提取非重复序列, 并去除没有重复的单序列, 按照 97% 相似性对非重复序列进行 OTU 聚类, 而后采用 RDP

classifier 贝叶斯算法对所得到的 OTU 代表序列进行分类学分析, 并在门、属水平统计每个样品的群落组成.

2 结果与讨论

2.1 MFC 对 OTC 去除效果

图 1(a) 为不同运行时期, OTC 在 MFC 中运行 5 d 内去除率的变化情况. 从中看出, 在以 OTC 为唯一底物运行的前 30 d, MFC 对 OTC 的去除效果低于 20%. 比较阶段①与②发现, 在阶段①, 生物膜构建成功后, MFC 的电压响应迅速且输出最大值为 0.62 V [图 1(b)], 并且 MFC 的出水具有臭味且含有大量悬浮微生物. 进入阶段②以后, MFC 的输出电压急剧下降, 而阳极室出水变得无臭且清澈, 说明 OTC 作为一种广谱性抗生素, 对阳极室微生物活性具有很强的抑制作用, 且 OTC 难以被微生物作为底物直接利用. 随着运行时间的延长, MFC 对 OTC 的去除率逐步提高, 运行 70 d 后 OTC 去除率为 39.59%, 在运行 112 d 后 OTC 去除率达到了 95.0% 以上, 同时 MFC 的电压输出也开始恢复, 最大值达到 0.55 V 左右, 并且 MFC 的出水发臭且悬浮微生物开始逐渐增多, 碳毡电极表面出现大量气泡, 说明阳极室内的微生物逐渐适应了 OTC 的胁迫, 能够以 OTC 为唯一碳、氮源进行新陈代谢, 从而实现 MFC 对 OTC 的高效去除.

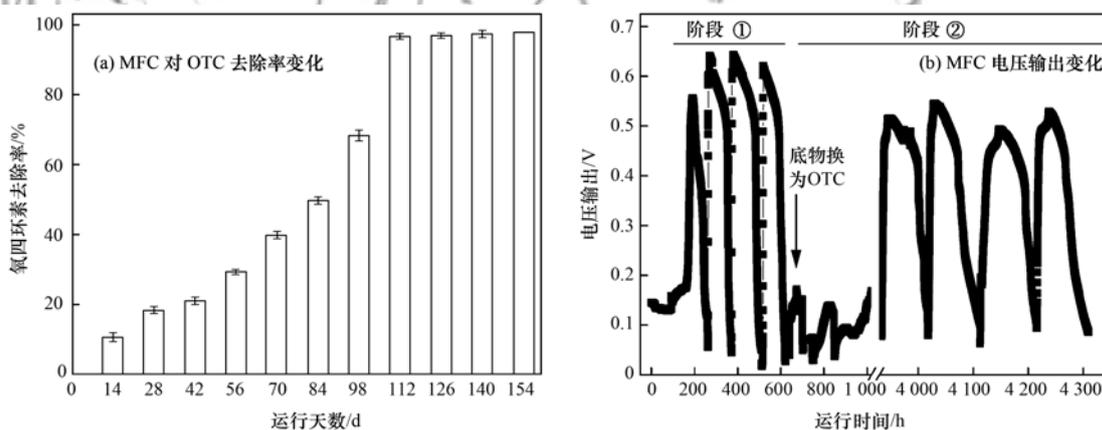


图 1 不同运行时期, MFC 对 OTC 去除率及电压输出变化

Fig. 1 Change in removal efficiency of OTC and voltage output in MFCs

图 2 为 MFC 运行 150 d 后, 在 1 个运行周期内 MFC 组和无菌对照组中 OTC 的浓度变化情况. 在无菌对照组中, $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ OTC 的浓度在 132 h 并未出现较大变化, 说明 OTC 具有较稳定的化学结构, 在没有光照、微生物等作用下, 自身降解十分缓慢. 但经过 150 d 序批式运行, MFC 对 10

$\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ OTC 在 132 h 去除率达到 99.0%, 说明 MFCs 实现了对 OTC 的快速、有效去除.

2.2 微观形貌观察

在长期运行后, MFC 对 OTC 的有效去除与阳极生物膜的作用密不可分, 因此利用扫描电镜观察并比较了接种猪粪及 MFC 阳极生物膜的形貌特征

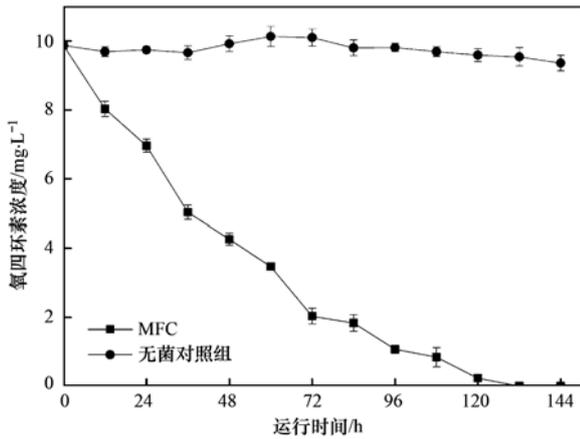
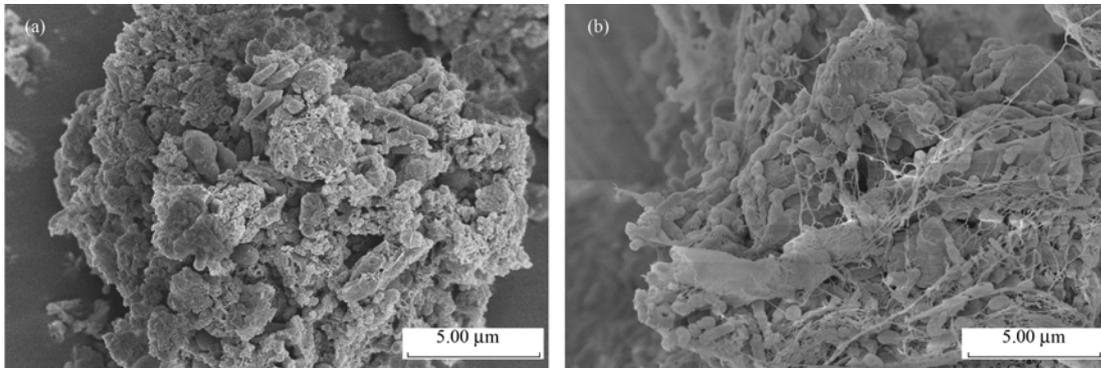


图2 运行 150 d 后在 1 个运行周期内 MFC 对 OTC 的去除
Fig. 2 Change in concentration of OTC in MFCs after 150 d of operation



(a) 接种猪粪; (b) 阳极生物膜
图3 接种猪粪与阳极生物膜电镜照片

Fig. 3 SEM photos of raw pig manure and anodic biofilms

多样性的变化. 由表 1 可知, 4 个样品得到的有效序列在 33 000 ~ 40 000 条之间, 均大于 20 000 条序列, 有效 OTU 数目共计 611 条, 并且 4 个样品的覆盖率都超过 0.999, 说明本次测序的深度基本覆盖了样本中的所有物种, 即该结果反映了样本物种的真实情况.

由表 1 对各样本的 α 多样性统计可知, 对于指示样本物种丰富度的 Chao1 和 ACE 指数, MFC1、MFC2 和 MFC3 样本均低于 RPM 样本, 说明接种猪粪中的物种丰富度最高, 这可能与底物种类有关, 猪进食的物质碳源复杂丰富, 故菌群中含有多种不同功能的微生物, 而当底物转换为以 OTC 为唯一碳源, 特定功能菌群发生变化导致丰富度下降. 对于 Shannon 和 Simpson 指数而言, 二者变化规律相同, 其中接种猪粪的 Shannon 和 Simpson 指数分别为 3.215 996 和 0.099 941, 而 MFC 样本的 Shannon 指数下降至 2.21 ~ 2.90 之间, Simpson 指数则均增高至 0.13 以上, 说明在 OTC 的长期胁迫下, MFC 中的群落多样性开始下降. 以上结果均说明在

(图 3). 如图 3(a) 所示, 作为接种源的猪粪样品中以球状和杆状微生物居多, 但是微生物多被未消化的纤维素等物质包裹住. 从图 3(b) 看出, 大量的微生物生长于电极碳毡上面, 短杆菌占据较高比例, 微生物之间形成大量的丝状结构物质, 这些结构类似于文献报道的“纳米导线”结构, 与微生物间的电子传递有关. 大量的微生物附着于碳毡, 在胞外聚合物包裹之下形成了紧密的生物膜结构, 这种结构有利于微生物间的物质、信息和能量的快速传递, 为快速处理 OTC 废水提供了有力的保障.

2.3 微生物群落多样性变化分析

利用高通量测序方法研究在接种猪粪与 150 d 运行后的 MFCs 阳极生物膜上微生物群落丰富度与

OTC 为唯一碳、氮源的情况下, 随着运行时间的延长, 微生物群落中的物种会向特定功能群落演化, 从而导致物种丰富度和多样性的下降.

2.4 微生物群落结构变化分析

图 4 是接种猪粪及在经过 OTC 驯化 150 d 后的

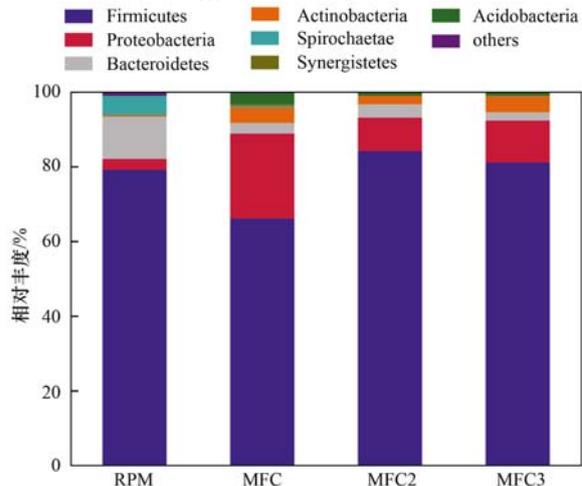


图4 微生物群落门水平柱形图
Fig. 4 Barplot analysis of microbial communities on phylum level of raw pig manure and anodic biofilms

表 1 不同样品的微生物群落丰富度与多样性统计

Table 1 Community richness and diversity indices for all samples

样品	有效序列	有效 OTU	Chao1 指数	Ace 指数	Shannon 指数	Simpson 指数	覆盖值
RPM	41 410	194	206	194. 376 205	3. 215 996	0. 099 941	0. 999 736
MFC1	36 180	146	157	156. 649 474	2. 895 864	0. 131 429	0. 999 507
MFC2	36 641	127	159	141. 499 526	2. 217 308	0. 271 926	0. 999 323
MFC3	33 002	144	155	153. 436 197	2. 728 122	0. 130 504	0. 999 452

生物膜上微生物群落在门水平下的组成分布情况。从中看出，在接种猪粪样品中，主要由厚壁菌门 (Firmicutes)、拟杆菌门 (Bacteroidetes)、螺旋菌门 (Spirochaetae) 和变形菌门 (Proteobacteria) 组成，其中厚壁菌门 (Firmicutes) 所占比例最大 (79. 30%)，而变形菌门 (Proteobacteria) 的比例最小 (2. 84%)。

在阳极生物膜样品中，厚壁菌门 (Firmicutes) 的数量也占据优势地位 (66. 20% ~ 84. 26%)，但是螺旋菌门 (Spirochaetae) 和拟杆菌门 (Bacteroidetes) 大量减少，同时放线菌门 (Actinobacteria) 的数量有所上升，变形菌门 (Proteobacteria) 的比例则大幅提高至 8. 92% ~ 22. 75%。Kiely 等^[23]的研究表明，厚壁菌

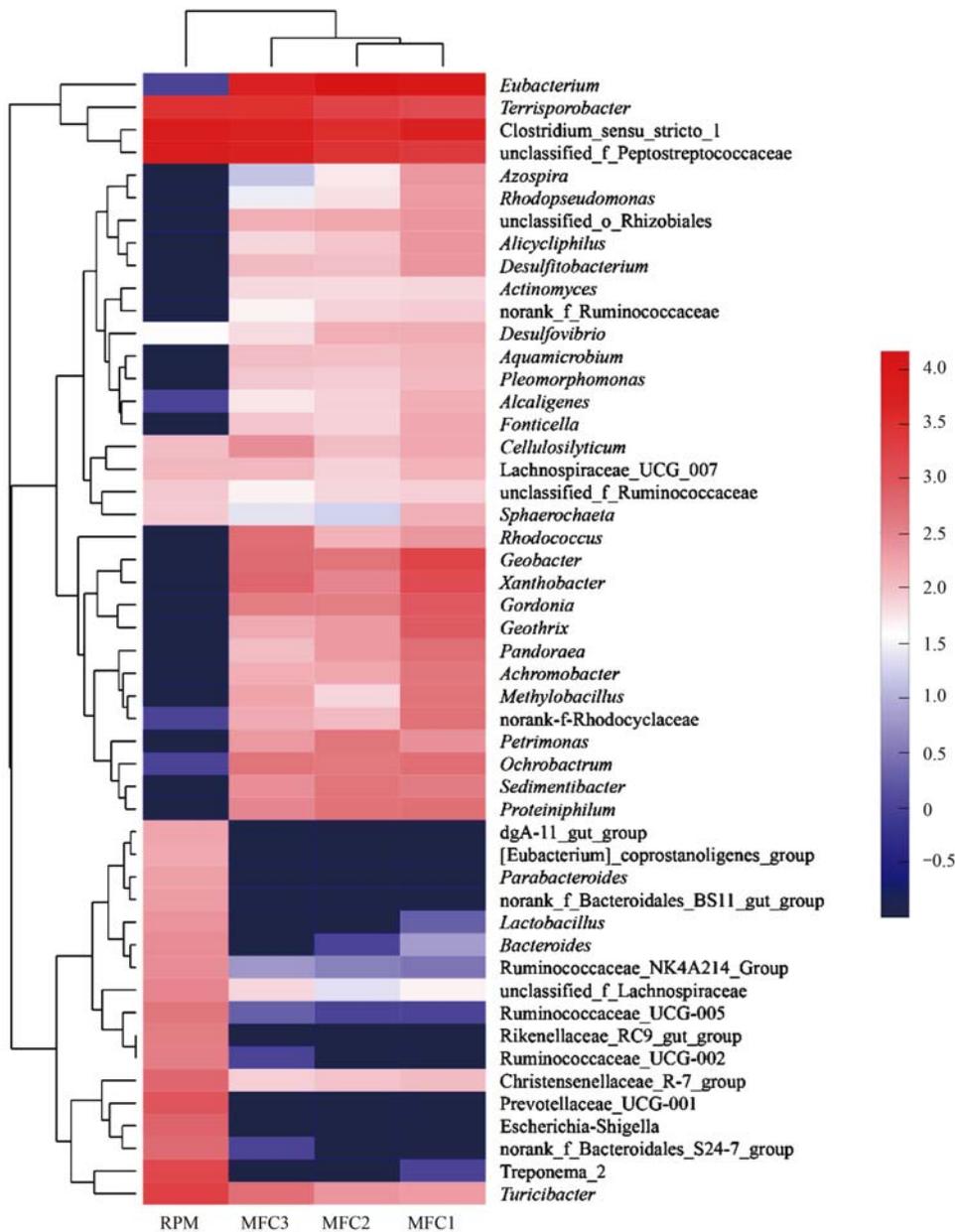


图 5 微生物群落属水平热图

Fig. 5 Heatmap of microbial communities on genus level of raw pig mature and anodic biofilms

门在以乙酸和乙醇等简单有机物作为底物时所占比例极小或没有,而当底物更换为乳酸等复杂有机物作为碳源时,其常为优势种群,可见厚壁菌门在降解转化复杂污染物质方面具有一定的优势.原始猪粪中富含大量纤维素等复杂底物,故变形菌门占据优势地位,这与焦燕等^[24]发现长期以牛粪为底物时,变形菌门为 MFC 阳极的优势菌门的结果相一致. OTC 是一种具有十二氢化并四苯基本结构的抗生素,结构稳定且复杂,在以其为唯一底物时,厚壁菌门仍为优势菌门.变形菌门是细菌中最大的一门,常在处理抗生素污染的系统中发现其处于优势地位. Liang 等^[12]利用生物阴极强化氯霉素的降解时发现, α -、 β - 和 γ -Proteobacteria 在阴极生物膜上占据优势地位. 而 Xia 等^[25]利用缺氧/好氧膜生物反应器处理 OTC、四环素和磺胺甲恶唑等多种抗生素也发现 β - 和 γ -Proteobacteria 属于优势菌门,可见变形菌门对抗生素污染物起到了一定的降解转化作用,这与本研究发现在以 OTC 为唯一碳源下,阳极生物膜中变形菌门比例增高的结果相一致.

图 5 是原始猪粪及在经过 OTC 驯化 150 d 后的生物膜上微生物群落在属水平下的热图. 从中看出, *Geobacter*、*Xanthobacter* 和 *Gordonia* 等菌属丰度相比于原始接种猪粪均有提高. *Geobacter* 是一类电化学活性的菌,在 MFC 电刺激的作用下出现一定富集. 而真细菌属 (*Eubacterium* spp.) 的比例显著提高,从 0.004 1% 提高至 20.49% ~ 49.00%. 可见真细菌属菌群对 OTC 的降解起到重要作用. Qiu 等^[26]使用混合上流式厌氧污泥床-膜生物反应器 (UASB-MBR) 处理含黄连素抗生素废水,发现 *Eubacterium* 在上流式厌氧污泥床中为优势菌属,从 OTC 和黄连素二者的结构式比较发现存在一定的相似性,均具有多个苯环相连. 此外 Schneider 等^[27]发现 1 株 *Eubacterium ramulus* 具有 α -和 β -d-葡萄糖苷酶活性,能够降解橡黄素、木樨草素和圣草酚等多种黄酮类药物. Wang 等^[28]分离得到 1 株 *Eubacterium* sp. Strain SDG-2,能够在芳香环上的进行脱羟基作用,且能够断开儿茶素的 C 和 B 环从而使其降解. 可见, *Eubacterium* sp. 中的一些纯菌对多种氧杂环芳香族化合物具有一定的生物降解能力,而从结构式分析,OTC 也是一种含有多羟基的杂环化合物,故结合本研究结果, *Eubacterium* spp. 是一类具有降解 OTC 的功能微生物菌属,故其在以 OTC 为唯一底物时,占据优势地位.

3 结论

(1) 经过一定时间的生物膜驯化, MFCs 能够实现 OTC 的有效去除. 在运行 150 d 后, MFC 对 10 mg·L⁻¹ OTC 在 132 h 内的去除率达到 99.0%, 表明利用 MFC 去除含 OTC 污水是完全可行的.

(2) 通过对群落丰富度与多样性研究可知,在 MFC 中,长期地以 OTC 为唯一底物运行会降低阳极微生物群落的丰富度与多样性. 对群落组成分析可知, *Eubacterium* spp. 可能是一类具有较强 OTC 降解能力的功能微生物,为后期分离纯化高效 OTC 降解菌株和工业废水处理快速启动等提供了科学依据.

参考文献:

- [1] Sarmah A K, Meyer M T, Boxall A B A. A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment [J]. *Chemosphere*, 2006, **65**(5): 725-759.
- [2] Van Boeckel T P, Brower C, Gilbert M, et al. Global trends in antimicrobial use in food animals [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2015, **112**(18): 5649-5654.
- [3] Van Boeckel T P, Gandra S, Ashok A, et al. Global antibiotic consumption 2000 to 2010: an analysis of national pharmaceutical sales data [J]. *The Lancet Infectious Diseases*, 2014, **14**(8): 742-750.
- [4] Elmund G K, Morrison S M, Grant D W, et al. Role of excreted chlortetracycline in modifying the decomposition process in feedlot waste [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 1971, **6**(2): 129-132.
- [5] Rizzo L, Manaia C, Merlin C, et al. Urban wastewater treatment plants as hotspots for antibiotic resistant bacteria and genes spread into the environment: a review [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **447**: 345-360.
- [6] Kümmerer K. Antibiotics in the aquatic environment-A review-Part I [J]. *Chemosphere*, 2009, **75**(4): 417-434.
- [7] Watkinson A J, Murby E J, Costanzo S D. Removal of antibiotics in conventional and advanced wastewater treatment: Implications for environmental discharge and wastewater recycling [J]. *Water Research*, 2007, **41**(18): 4164-4176.
- [8] Kümmerer K. Antibiotics in the aquatic environment-A review-Part II [J]. *Chemosphere*, 2009, **75**(4): 435-441.
- [9] Logan B E. Scaling up microbial fuel cells and other bioelectrochemical systems [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2010, **85**(6): 1665-1671.
- [10] Wang H M, Ren Z J. A comprehensive review of microbial electrochemical systems as a platform technology [J]. *Biotechnology Advances*, 2013, **31**(8): 1796-1807.
- [11] Wang H M, Luo H P, Fallgren P H, et al. Bioelectrochemical system platform for sustainable environmental remediation and energy generation [J]. *Biotechnology Advances*, 2015, **33**(3-4): 317-334.

- [12] Liang B, Cheng H Y, Kong D Y, *et al.* Accelerated reduction of chlorinated nitroaromatic antibiotic chloramphenicol by biocathode [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47** (10): 5353-5361.
- [13] Liang B, Kong D Y, Ma J C, *et al.* Low temperature acclimation with electrical stimulation enhance the biocathode functioning stability for antibiotics detoxification[J]. *Water Research*, 2016, **100**: 157-168.
- [14] Song H, Guo W, Liu M L, *et al.* Performance of microbial fuel cells on removal of metronidazole [J]. *Water Science and Technology*, 2013, **68**(12): 2599-2604.
- [15] Wang L, Liu Y L, Ma J, *et al.* Rapid degradation of sulphamethoxazole and the further transformation of 3-amino-5-methylisoxazole in a microbial fuel cell [J]. *Water Research*, 2016, **88**: 322-328.
- [16] Wang L, Wu Y C, Zheng Y, *et al.* Efficient degradation of sulfamethoxazole and the response of microbial communities in microbial fuel cells[J]. *RSC Advances*, 2015, **5**(69): 56430-56437.
- [17] Cheng Z, Hu X, Sun Z R. Microbial community distribution and dominant bacterial species analysis in the bio-electrochemical system treating low concentration cefuroxime [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, **303**: 137-144.
- [18] Wen Q, Kong F Y, Zheng H T, *et al.* Electricity generation from synthetic penicillin wastewater in an air-cathode single chamber microbial fuel cell [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2011, **168**(2): 572-576.
- [19] Wen Q, Kong F Y, Zheng H T, *et al.* Simultaneous processes of electricity generation and ceftriaxone sodium degradation in an air-cathode single chamber microbial fuel cell [J]. *Journal of Power Sources*, 2011, **196**(5): 2567-2572.
- [20] Guo W, Song H, Zhou L Y, *et al.* Simultaneous removal of sulfanilamide and bioelectricity generation in two-chambered microbial fuel cells [J]. *Desalination and Water Treatment*, 2016, **57**(52): 24982-24989.
- [21] Xiao Y, Wu S, Zhang F, *et al.* Promoting electrogenic ability of microbes with negative pressure [J]. *Journal of Power Sources*, 2013, **229**: 79-83.
- [22] Lovley D R, Phillips E J P. Novel mode of microbial energy metabolism: organic carbon oxidation coupled to dissimilatory reduction of iron or manganese [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1988, **54**(6): 1472-1480.
- [23] Kiely P D, Rader G, Regan J M, *et al.* Long-term cathode performance and the microbial communities that develop in microbial fuel cells fed different fermentation endproducts [J]. *Bioresource Technology*, 2011, **102**(1): 361-366.
- [24] 焦燕, 张国栋, 赵庆良. 牛粪混合液微生物燃料电池长期运行稳定性研究[J]. *环境科学*, 2014, **35**(5): 1981-1987.
Jiao Y, Zhang G D, Zhao Q L. Long-term performance of microbial fuel cell using manure as substrate[J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(5): 1981-1987.
- [25] Xia S Q, Jia R Y, Feng F, *et al.* Effect of solids retention time on antibiotics removal performance and microbial communities in an A/O-MBR process[J]. *Bioresource Technology*, 2012, **106**: 36-43.
- [26] Qiu G L, Song Y H, Zeng P, *et al.* Characterization of bacterial communities in hybrid upflow anaerobic sludge blanket (UASB)-membrane bioreactor (MBR) process for berberine antibiotic wastewater treatment [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **142**: 52-62.
- [27] Schneider H, Blaut M. Anaerobic degradation of flavonoids by *Eubacterium ramulus* [J]. *Archives of Microbiology*, 2000, **173** (1): 71-75.
- [28] Wang L Q, Meselhy M R, Li Y, *et al.* The heterocyclic ring fission and dehydroxylation of catechins and related compounds by *Eubacterium* sp. Strain SDG-2, a human intestinal bacterium [J]. *Chemical and Pharmaceutical Bulletin*, 2001, **49** (12): 1640-1643.

CONTENTS

Characterization and Variation of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM _{2.5} During the Winter in the Yangtze River Delta Region, China	KANG Hui, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (961)
Important Effect of Secondary Inorganic Salt Extinction on Visibility Impairment in the Northern Suburb of Nanjing	YU Chao, YU Xing-na, ZHAO Tian-liang, <i>et al.</i> (972)
Day-Night Differences and Source Apportionment of Inorganic Components of PM _{2.5} During Summer-Winter in Changzhou City	LIU Jia-shu, GU Yuan, MA Shuai-shuai, <i>et al.</i> (980)
Characteristics of Elements in PM _{2.5} and PM ₁₀ in Road Dust Fall During Spring in Tianjin	WANG Shi-bao, JI Ya-qin, LI Shu-li, <i>et al.</i> (990)
Particle Size Distribution and Human Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particles from Beijing and Xixiang During Summer	ZHANG Xin, ZHAO Xiao-man, MENG Xue-jie, <i>et al.</i> (997)
Ecological and Health Risks of Trace Heavy Metals in Atmospheric PM _{2.5} Collected in Wuxiang Town, Shanxi Province	GUO Zhao-xia, GENG Hong, ZHANG Jin-hong, <i>et al.</i> (1004)
Characteristics of Particulate and Inorganic Elements of Motor Vehicles Based on a Tunnel Environment	LI Feng-hua, ZHANG Yan-jie, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (1014)
A 2013-based Atmospheric Ammonia Emission Inventory and Its Characteristic of Spatial Distribution in Henan Province	WANG Chen, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i> (1023)
Emission Characteristics of Wind Erosion Dust from Topsoil of Urban Roadside-Tree Pool	LI Bei-bei, QIN Jian-ping, QI Li-rong, <i>et al.</i> (1031)
Particulate Component Emission Characteristic from a Diesel Bus with DOC and CDPF	LOU Di-ming, GENG Xiao-yu, SONG Bo, <i>et al.</i> (1040)
Water Quality in the Henan Intake Area of the South-to-North Water Diversion Project	HUANG Piao-yi, XU Bin, GUO Dong-liang (1046)
Spatio-Temporal Patterns and Environmental Risk of Endocrine Disrupting Chemicals in the Liuxi River	FAN Jing-jing, WANG Sai, TANG Jin-peng, <i>et al.</i> (1053)
Fate and Origin of Major Ions in River Water in the Lhasa River Basin, Tibet	ZHANG Qing-hua, SUN Ping-an, HE Shi-yi, <i>et al.</i> (1065)
Identification of Nitrate Sources and the Fate of Nitrate in Downstream Areas: A Case Study in the Taizi River Basin	LI Yan-li, YANG Zi-rui, YIN Xi-jie, <i>et al.</i> (1076)
Sources, Distribution of Main Controlling Factors, and Potential Ecological Risk Assessment for Heavy Metals in the Surface Sediment of Hainan Island North Bay, South China	ZENG Wei-te, YANG Yong-peng, ZHANG Dong-qiang, <i>et al.</i> (1085)
Characteristics of Heavy Metals Pollution of Farmland and the Leaching Effect of Rainfall in Tianjin	XU Meng-meng, LIU Ai-feng, SHI Rong-guang, <i>et al.</i> (1095)
Seasonal Difference in Water Quality Between Lake and Inflow/Outflow Rivers of Lake Taihu, China	ZHA Hui-ming, ZHU Meng-yuan, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i> (1102)
Characteristics of Nitrogen Release at the Sediment-Water Interface in the Typical Tributaries of the Three Gorges Reservoir During the Sensitive Period in Spring	LI Xin, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (1113)
Spatial Distributions of Transferable Nitrogen Forms and Influencing Factors in Sediments from Inflow Rivers in Different Lake Basins	ZHOU Rui, YUAN Xu-yin, Marip Ja Bawk, <i>et al.</i> (1122)
Effects of Hydrological and Meteorological Conditions on Diatom Proliferation in Reservoirs	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i> (1129)
Vertical Distribution of Fungal Community Composition and Water Quality During the Deep Reservoir Thermal Stratification	SHANG Pan-lu, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (1141)
Community Structure and Influencing Factors of Bacterioplankton in Spring in Zhushan Bay, Lake Taihu	XUE Yin-gang, LIU Fei, SUN Meng, <i>et al.</i> (1151)
Characteristics of Sediment Oxygen Demand in a Drinking Water Reservoir	SU Lu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (1159)
Effects of Wastewater Nitrogen Concentrations and NH ₄ ⁺ /NO ₃ ⁻ on Nitrogen Removal Ability and the Nitrogen Component of <i>Myriophyllum aquaticum</i> (Vell.) Verde	MA Yong-fei, YANG Xiao-zhen, ZHAO Xiao-hu, <i>et al.</i> (1167)
Effect of Nutrient Loadings on the Regulation of Water Nitrogen and Phosphorus by <i>Vallisneria spiralis</i> and Its Photosynthetic Fluorescence Characteristics	ZHOU Yi-wen, XU Xiao-guang, HAN Rui-ming, <i>et al.</i> (1180)
Removal of Organic Matter from Water by Chemical Preoxidation Coupled with Biogenic Manganese Oxidation	JIAN Zhi-yu, CHANG Yang-yang, WANG Li-xin, <i>et al.</i> (1188)
Treating Simulated Dye Wastewater by an <i>In Situ</i> Copper Ferrite Process	HAN Zhi-yong, HAN Kun, HAO Hao-tian, <i>et al.</i> (1195)
Experiment to Enhance Catalytic Activity of α -FeOOH in Heterogeneous UV-Fenton System by Addition of Oxalate	MIAO Xiao-zeng, DAI Hui-wang, CHEN Jian-xin, <i>et al.</i> (1202)
Fabrication of a Biomass-Based Hydrous Zirconium Oxide Nanocomposite for Advanced Phosphate Removal	QIU Hui, QIN Zhi-feng, LIU Feng-ling, <i>et al.</i> (1212)
Characteristic of Nitrate Adsorption in Aqueous Solution by Iron and Manganese Oxide/Biochar Composites	ZHENG Xiao-qing, WEI An-lei, ZHANG Yi-xuan, <i>et al.</i> (1220)
Preparation of PAAm/HACC Semi-Interpenetrate Network Hydrogel and Its Adsorption Properties for Humic Acid from Aqueous Solution	LIU Ze-jun, ZHOU Shao-qi, MA Fu-zhen (1233)
Groundwater Arsenic and Silicate Adsorption on TiO ₂ and the Regeneration of TiO ₂	MA Wen-jing, YAN Li, ZHANG Jian-feng (1241)
Removal Efficiency and Mechanism of Removal by Humic Acid of the Integrated Flocc-ultrafiltration Process	LI Wen-jiang, YU Li-fang, MIAO Rui, <i>et al.</i> (1248)
Emission Inventory of Greenhouse Gas from Urban Wastewater Treatment Plants and Its Temporal and Spatial Distribution in China	YAN Xu, QIU De-zhi, GUO Dong-li, <i>et al.</i> (1256)
Start-up and Operation of Biofilter Coupled Nitrification and CANON for the Removal of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen	LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i> (1264)
Analysis of CANON Process Start-up with Fiber Carrier	GU Cheng-wei, CHEN Fang-min, LI Xiang, <i>et al.</i> (1272)
Characteristics of Biofilm During the Transition Process of Complete Nitrification and Partial Nitrification	ZHAO Qing, BIAN Wei, LI Jun, <i>et al.</i> (1278)
Effect of Intermediate-Setting Aeration on the CANON Granular Sludge Process in the AUSB Reactor	CHENG Shuo, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (1286)
Effect of Organic Carbon Source on Start-up and Operation of the CANON Granular Sludge Process	LI Dong, WANG Yan-ju, LÜ Yu-feng, <i>et al.</i> (1294)
Start-Up and Regional Characteristics of a Pilot-scale Integrated PN-ANAMMOX Reactor	ZHOU Zheng, WANG Fan, LIN Xing, <i>et al.</i> (1301)
Effect of NO _x ⁻ -N Recycling Ratio on Denitrifying Phosphorus Removal Efficiency in the ABR-MBR Combined Process	LÜ Liang, YOU Wen, ZHANG Min, <i>et al.</i> (1309)
Effects of Magnetic Fe ₃ O ₄ Nanoparticles on the Characteristics of Anaerobic Granular Sludge and Its Interior Microbial Community	SU Cheng-yuan, ZHENG Peng, LU Yu-xiang, <i>et al.</i> (1316)
Characterization Composition of Soluble Microbial Products in an Aerobic Granular Sludge System	YANG Dan, LIU Dong-fang, DU Li-qiong, <i>et al.</i> (1325)
Influence of Ciprofloxacin on the Microbial Community and Antibiotics Resistance Genes in a Membrane Bioreactor	DAI Qi, LIU Rui, LIANG Yu-ting, <i>et al.</i> (1333)
Analysis of Low C/N Wastewater Treatment and Structure by the CEM-UF Combined Membrane-Nitrification/Denitrification System	XING Jin-liang, ZHANG Yan, CHEN Chang-ming, <i>et al.</i> (1342)
Effects of Phosphorus on the Activity and Bacterial Community in Mixotrophic Denitrification Sludge	WANG Pei-qi, ZHOU Wei-li, HE Sheng-bing, <i>et al.</i> (1350)
Acclimatization and Community Structure Analysis of the Microbial Consortium in Nitrate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation	XUE Song, ZHANG Meng-zhu, LI Lin, <i>et al.</i> (1357)
Diffusion of Microorganism and Main Pathogenic Bacteria During Municipal Treated Wastewater Discharged into Sea	XU Ai-ling, NIU Cheng-jie, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i> (1365)
Oxytetracycline Wastewater Treatment in Microbial Fuel Cells and the Analysis of Microbial Communities	YAN Wei-fu, XIAO Yong, WANG Shu-hua, <i>et al.</i> (1379)
Spatial and Temporal Variability of Soil C-to-N Ratio of Yugan County and Its Influencing Factors in the Past 30 Years	JIANG Ye-feng, ZHONG Shan, LI Jie, <i>et al.</i> (1386)
Spatial Heterogeneity of Soil Carbon and its Fractions in the Wolfberry Field of Zhongning County	WANG You-qi, ZHAO Yun-peng, BAI Yi-ru, <i>et al.</i> (1396)
Response of Soil Enzyme Activities and Their Relationships with Physicochemical Properties to Different Aged Coastal Reclamation Areas, Eastern China	XIE Xue-feng, PU Li-jie, WANG Qi-qi, <i>et al.</i> (1404)
Distribution, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils of the Central and Eastern Areas of the Qinghai-Tibetan Plateau	ZHOU Wen-wen, LI Jun, HU Jian, <i>et al.</i> (1413)
Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Area Based on UNMIX Model	LU Xin, HU Wen-you, HUANG Biao, <i>et al.</i> (1421)
Stabilization Effects of Fe-Mn Binary Oxide on Arsenic and Heavy Metal Co-contaminated Soils Under Different pH Conditions	FEI Yang, YAN Xiu-lan, LI Yong-hua (1430)
Concentration and Distribution of Novel Brominated Flame Retardants in Human Serum from Three Chinese Cities	WANG Qing-hua, YUAN Hao-dong, JIN Jun, <i>et al.</i> (1438)