

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第9期

Vol.39 No.9

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

长三角区域非道路移动机械排放清单及预测 黄成, 安静宇, 鲁君 (3965)

基于 COPERT 模型的江苏省机动车时空排放特征与分担率 李荔, 张洁, 赵秋月, 李慧鹏, 韩军赞 (3976)

上海典型燃烧源铅和汞大气排放趋势分析 杨静, 陈龙, 刘敏, 孟祥周, 张希 (3987)

广东省秸秆燃烧大气污染物及 VOCs 物种排放清单 孙西勃, 廖程浩, 曾武涛, 张永波, 梁小明, 叶代启 (3995)

重庆市北碚城区气溶胶中水溶性无机离子的质量浓度及其粒径分布 李彦沛, 郝庆菊, 温天雪, 吉东生, 刘子锐, 王跃思, 江长胜 (4002)

济南市夏、冬季 PM_{2.5} 中化学组分的季节变化特征及来源解析 刘晓迪, 孟静静, 侯战方, 李静, 邢继钊, 魏本杰, 张二勋, 刘加珍, 董杰 (4014)

聊城冬季一重污染过程 PM_{2.5} 污染特征及成因分析 张敬巧, 吴亚君, 张萌, 王涵, 陈振兴, 胡君, 李慧, 范晓龙, 柴发合, 王淑兰 (4026)

夏季青岛大气气溶胶中不同形态磷的浓度、来源及沉降通量 王楠, 马森, 石金辉, 高会旺, 姚小红 (4034)

晋城市冬季环境空气中挥发性有机物的污染特征及来源解析 杨帆, 闫雨龙, 戈云飞, 李如梅, 李颖慧, 余化龙, 彭林 (4042)

北京冬季降尘重金属富集程度及综合污染评价 熊秋林, 赵文吉, 李大军, 周涛 (4051)

合肥市典型交通干道大气苯系物的特征分析 孟凡昊, 秦敏, 梁帅西, 谢品华, 夏晖晖, 段俊, 方武, 唐科, 李昂, 魏楨, 王凤 (4060)

填埋场作业面 NMOCs 臭氧生成潜势及高贡献物质 李昊, 刘彦君, 陈坦, 闫秋鹤, 代辉祥, 王洪涛, 陆文静 (4070)

北京市混凝土搅拌站风蚀扬尘排放特征 李贝贝, 韩凯丽, 秦建平, 王鑫, 宋博, 黄玉虎, 张春来 (4078)

基于源解析的傍河水源地污染风险季节性变化特征分析 高翔, 左锐, 郭学茹, 孟利, 刘鑫, 王朕, 滕彦国, 王金生 (4086)

透水路面-生物滞留池组合道路的城市面源污染控制效果评估 官曼莉, 左俊杰, 任心欣, 赵洪涛, 罗茜, 廖云杰, 李叙勇 (4096)

黄河兰州段水体中有色溶解性有机质组成、空间分布特征及来源分析 赵夏婷, 李珊, 王兆炜, 谢晓芸 (4105)

黄河干流宁夏段溶解性有机物组分特征及其与金属离子的相关性 席玥, 王婷, 倪晋仁, 韩鹏, 仪马兰, 郑彤, 蒋咏, 马若绮, 崔锋 (4114)

伊洛河和浑太河春季水体光学吸收特征的对比 李柳阳, 邵田田, 张鑫, 宋炎炎, 苏东辉, 王涛 (4122)

马莲河流域化学风化的季节变化和影响因素 王雨山, 韩双宝, 邓启军, 祁晓凡 (4132)

柳江盆地浅层地下水硝态氮水特征和成因分析 徐进, 何江涛, 彭颖, 曾颖 (4142)

地下水氮污染原位修复缓释碳源材料的研发与物化-生境协同特性 张雯, 尹琳, 周念清 (4150)

三峡水库干流沉积物及消落带土壤磷形态及其分布特征 张志永, 万成炎, 胡红青, 彭建华, 侯娟, 丁庆秋, 袁玉洁 (4161)

蓄水前后三峡库区香溪河沉积物磷形态分布特征及释放通量估算 刘心愿, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 李欣, 黄佳维, 赵冲, 唐咏春, 平明明 (4169)

铅改性沸石添加对重污染河道底泥磷释放和钝化的影响 何思琪, 张薇, 林建伟, 詹艳慧, 李娟英, 邢云青, 高春梅, 黄宏, 梁舒静 (4179)

洱河流域乡镇尺度上人类活动对净氮输入量的影响 李影, 刘宏斌, 雷秋良, 胡万里, 王洪媛, 翟丽梅, 任天志, 连慧妹 (4189)

我国典型潮间带沉积物-水界面无机氮源汇效应 聂家琴, 王东启, 陈杰, 李杨杰, 陈姝, 陈振楼 (4199)

东太湖水产养殖对沉积物中氨氧化原核生物的影响 储瑜, 何肖微, 曾中, 赵大勇, 孙强, 曹萍, 吴庆龙 (4206)

处理采矿废水湿地沉积物中厌氧氨氧化过程 汪海波, 马丁, 岳正波, 陶巍, 陈天虎, 王进 (4215)

华东地区某饮用水源地中磺胺类抗性基因的分布特征 胡亚茹, 姜蕾, 张天阳, 雷丹丹, 姜巍巍, 张东, 林匡飞, 崔长征 (4222)

制革废水处理过程中磺胺类抗生素和抗性细菌的分布特征 花莉, 李璐, 杨春燕 (4229)

人工湿地不同基质和粒径对污水净化效果的比较 赵林丽, 邵学新, 吴明, 姜小三, 陆琳莹 (4236)

城市污水管网中不同生化作用的基质流向 姚翔译, 石炬, 桑浪涛, 金鹏康, 王晓昌 (4242)

微絮凝对腐殖酸超滤过程膜污染的减缓特性 王旭东, 石彩霞, 廖正伟, 贺毓淑, 王磊 (4249)

UV 强化草酸络合 Fe³⁺ 活化过硫酸盐氧化降解苯胺 韩东晖, 李瑛, 李开明, 应光国 (4257)

焦化废水 A/O² 和 A/O/H/O 处理工艺中多环芳烃的削减行为分析 吴海珍, 孙胜利, 刘国新, 韦景悦, 吴超飞, 韦朝海, 钟练文, 彭亚环 (4265)

长期侧流提取对 EBPR 系统除磷及其磷回收性能的影响 俞小军, 李杰, 周猛, 宋璐, 李维维, 王亚娥, 马娟, 吕慧 (4274)

NaCl 盐度对 A²/O 工艺缺氧区胞外聚合物及生物絮凝性的影响 张兰河, 田蕊, 郭静波, 贾艳萍, 张海丰, 李正, 陈子成 (4281)

温度和 pH 值对铁盐型氨氧化过程氮素转化的影响 陈方敏, 金润, 袁琨, 李祥, 黄勇, 顾澄伟 (4289)

游离氨 (FA) 对氨氧化菌 (AOB) 活性抑制动力学试验 孙洪伟, 于雪, 高宇学, 李维维, 祁国平, 许涓 (4294)

HRT 对厌氧氨氧化协同异养反硝化脱氮的影响 安芳娇, 赵智超, 黄利, 黄剑明, 邵兆伟, 陈永志 (4302)

长期储存亚硝化絮状污泥活性的恢复 李田, 魏凡凯, 汪裕昌, 沈耀良, 吴鹏, 宋吟玲 (4310)

广西西江流域农田土壤重金属含量特征及来源解析 宋波, 张云霞, 庞瑞, 杨子杰, 宾娟, 周子阳, 陈同斌 (4317)

紫色土壤有机碳活性组分对生物炭施用量的响应 罗梅, 田冬, 高明, 黄容 (4327)

秸秆及生物炭还田对油菜/玉米轮作系统碳平衡和生态效益的影响 李娇, 田冬, 黄容, 徐国鑫, 黎嘉成, 高明, 王子芳 (4338)

低积累水稻品种联合腐殖酸、海泡石保障重镉污染稻田安全生产的潜力 谢晓梅, 方至萍, 廖敏, 黄宇, 黄小辉 (4348)

臭氧和干旱交互作用对杨树叶片抗氧化酶活性的影响 周慧敏, 李品, 高峰, 冯兆忠, 张殿波 (4359)

再生水不同灌水水平对土壤酶活性及耐热大肠菌群分布的影响 韩洋, 李平, 齐学斌, 崔丙健, 常迪, 马欢欢 (4366)

黄淮海地区鸡粪有机肥重金属含量特征及环境风险 李发, 徐应明, 王林, 梁学峰, 孙约兵, 纪艺凝, 栾润宇 (4375)

村镇生活垃圾重金属含量及其来源分析 靳琪, 高红, 岳波, 黄启飞, 王瑜堂, 吴小丹, 於俊颖, 杨惠媛 (4385)

《环境科学》征订启事 (3986) 《环境科学》征稿简则 (4050) 信息 (4085, 4104, 4337)

制革废水处理过程中磺胺类抗生素和抗性细菌的分布特征

花莉, 李璐, 杨春燕

(陕西科技大学环境科学与工程学院, 西安 710021)

摘要: 针对两家制革厂废水处理过程中 3 种磺胺类抗生素和磺胺类抗性细菌的丰度和分布特性以及两个不同工艺污水处理厂对抗生素的去除规律做了相关研究. 结果表明, 3 种抗生素在两家制革污水处理过程中均有检出, 水样中 3 种抗生素的总质量浓度在 $59.1 \sim 706.7 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间; 两家制革厂废水处理剩余污泥中 3 种抗生素的总含量分别为 $4388 \text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $2979.4 \text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}$, 与市政污水处理厂中的抗生素含量相差不大. 不同的污水处理工段对 3 种抗生素去除效果不同, 但去除效率均大于 70%. 生物处理单元对抗生素的去除率相对较高, 而厌氧池是去除抗生素的主要阶段 (去除率 > 50%). 两个制革厂的进出水和剩余污泥中共筛选出 8 株抗性细菌, 这 8 个分离菌株可分为 5 个菌属. 进出水中的抗性细菌含量介于 $9.37 \times 10^3 \sim 5.08 \times 10^5 \text{ CFU}\cdot\text{mL}^{-1}$ 之间, 剩余污泥中的磺胺类抗性细菌含量较高分别为 $1.17 \times 10^7 \text{ CFU}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $7.2 \times 10^6 \text{ CFU}\cdot\text{g}^{-1}$. 两个制革污水处理厂对磺胺甲噁唑抗性细菌的去除率分别达到了 1.34 log 和 2.15 log.

关键词: 制革废水; 抗生素; 抗生素抗性细菌; 丰度; 去除率

中图分类号: X703; X832 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)09-4229-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.201710173

Distribution Characteristics of Sulfonamides and Sulfamethoxazole-Resistant Bacteria in Tannery Wastewater Treatment Processes

HUA Li, LI Lu, YANG Chun-yan

(College of Environmental Science and Engineering, Shaanxi University of Science and Technology, Xi'an 710021, China)

Abstract: The study investigated abundance and distribution of three sulfonamides and sulfonamide-resistant bacteria in the wastewater treatment processes of two tannery wastewater plants, as well as the extent of their removal in different treatment units of the plants. Results showed that the three sulfonamides were detected in two different tannery wastewater treatment processes, with total content in water samples of $59.1\text{--}706.7 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. The content of sulfonamides in excess sludge samples from the two plants was $4388 \text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ and $2979.4 \text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively. Antibiotic content was therefore similar to that in municipal wastewater treatment plants. The three sulfonamides were removed in two different sewage treatment processes; both led to removal extents > 70%. Antibiotic removal extent was relatively high in the biological unit, especially in anaerobic tanks (removal extent > 50%). Eight strains of resistant bacteria were screened out from influent, effluent, and excess sludge samples of the two plants. These were identified as five kinds of sulfonamide-resistant bacteria. The content of resistant bacteria in influent and effluent was between $9.37 \times 10^3\text{--}5.08 \times 10^5 \text{ CFU}\cdot\text{mL}^{-1}$ and the content of sulfonamides was $1.17 \times 10^7 \text{ CFU}\cdot\text{g}^{-1}$ and $7.2 \times 10^6 \text{ CFU}\cdot\text{g}^{-1}$ in excess sludge samples. The removal extent of sulfamethoxazole-resistant bacteria in the two plants was 1.34 log and 2.15 log, respectively.

Key words: tannery wastewater; antibiotics; antibiotic-resistant bacteria; abundance; removal extent

近年来, 抗生素在人畜医药中被广泛用于防止细菌感染, 另一方面也可作为家畜的生长促进剂^[1]. 抗生素的大量使用, 造成环境中抗生素的污染加重, 抗生素在环境中的降解能力有限, 在水环境中不易分解, 这就会使抗生素在环境中积累, 出现“假持久性”^[2], 这种在环境中的残留累积会在一定程度上诱导细菌类微生物产生选择性压力, 使其逐渐成为具有耐药性的细菌群, 使致病菌对抗生素产生抗性, 从而导致抗生素的剂量和种类不断地增加, 这一恶性循环最终会导致复杂的生态风险^[3]. Kosma 等^[4]调查了希腊某地区市政和制药废水处理厂中抗生素的分布含量, 其所测抗生素的平

均浓度在 $0.6 \sim 70.1 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 之间. Zhu 等指出^[5], 污水排放是微生物全球大迁徙的推手之一, 一旦和这些微生物一起旅行的污染物中含有抗生素, 那么到达目的地的时候可能已经诞生了一些超级细菌. 关注细菌耐药性问题已经到了刻不容缓的地步. Jiang 等^[6]在研究大肠杆菌的抗性中发现, 高达 81% 的菌株同时对 5~6 种不同抗生素具有抗性. 这种动物源性耐药菌产生的“抵抗力”会主动地影响逐渐变化的环境. 李佳楠^[7]调查了两个污水处理

收稿日期: 2017-10-22; 修订日期: 2018-03-07

作者简介: 花莉(1978~), 女, 博士, 教授, 主要研究方向为水污染控制技术 & 废物资源化, E-mail: tuliphua@126.com

厂中抗四环素细菌和抗磺胺甲噁唑细菌的含量,其进水中两种抗性细菌数目分别达到 $3.70 \times 10^5 \text{ CFU} \cdot \text{mL}^{-1}$ 和 $4.30 \times 10^6 \text{ CFU} \cdot \text{mL}^{-1}$, 出水中两类细菌数目分别为 $8.00 \times 10^2 \text{ CFU} \cdot \text{mL}^{-1}$ 和 $3.44 \times 10^4 \text{ CFU} \cdot \text{mL}^{-1}$.

人们对于抗生素的关注、研究目前主要集中在市政污水、医疗、制药、养殖废水领域. 许多国家的医药行业和养殖业过度使用抗生素现象越来越严重. 制革工业是我国的传统产业之一, 近年来虽然制革工业给国民经济创造了显著的效益, 但也给环境保护、生态平衡带来巨大的负担和压力^[8]. 同时因为制革工业的原材料来源为动物皮毛, 磺胺类抗生素经常被养殖行业用作动物的炎症治疗药物, 最终由于脂溶性强而大量累积于动物的皮肤及脂肪里, 因此制革废水中往往存在一定浓度的磺胺类药物. 然而, 在制革废水处理过程中磺胺类抗生素和抗性细菌的丰度、分布和相关性目前还没有相关研究, 不利于对制革生产中的抗生素污染风险进行全面的评价.

本文以 3 种常见的抗生素磺胺嘧啶、磺胺甲基嘧啶、磺胺甲噁唑和磺胺类抗性细菌为目标, 以河北两家大型制革厂污水处理过程中各工艺段的水样和剩余污泥为研究对象, 对比两家制革污水处理过程中目标污染物的浓度水平和分布情况, 并在此基础上深入讨论抗生素的含量水平对抗生素抗性细菌丰度的影响, 以期为制革行业中抗生素和抗性细菌的污染控制提供依据.

1 材料与方法

1.1 样品采集

水样取自河北两家制革污水处理厂, W1 厂和 W2 厂制革废水处理工艺充分利用厌氧好氧单元交替进行去除污染物, 这是制革污水处理厂普遍采用的工艺. W1 厂主要采用传统的多段 A/O 工艺去除制革废水中的 COD 和 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$. W2 厂与 W1 厂相比, 在水解酸化池前加了一个一级生化池, 以便在后续处理前先去除一部分 COD, 再进入多段 A/O 工艺, 使得制革废水 COD 得到进一步去除, 同时实现 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 的去除. 本试验于 2016 年 12 月 ~ 2017 年 4 月定期在两家制革污水处理厂的各工艺单元采集 4 次水样和污泥样品, 以 4 次检测结果的平均值作为最终分析依据. 水样使用棕色玻璃瓶 24 h 混合采样, 在 4℃ 下避光保存样品, 尽快送回实验室进行进一步处理. 污泥样品用锡箔纸包好尽快送到实验

室进行冷冻干燥, 然后进行下一步处理. 每个样品做 3 个平行. 两厂的工艺流程和采样点如图 1 和图 2.

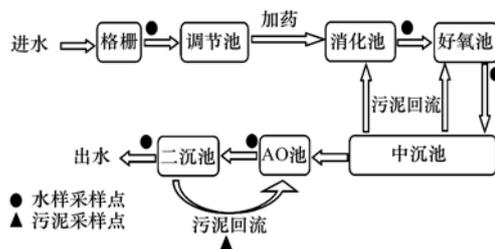


图 1 W1 制革污水处理厂污水处理工艺及采样点

Fig. 1 Sewage treatment process and sampling points from W1

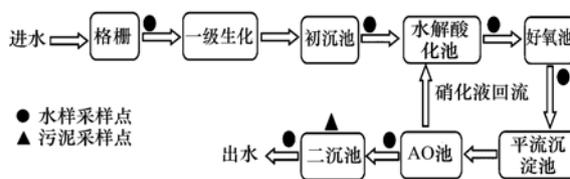


图 2 W2 制革污水处理厂污水处理工艺及采样点

Fig. 2 Sewage treatment process and sampling points from W2

1.2 样品的处理和分析

1.2.1 试剂

磺胺类标准品: 磺胺嘧啶 (sulfadiazine, SD, 纯度 > 99.9%)、磺胺甲基嘧啶 (sulfamerazine, SM1, 纯度 > 99.9%)、磺胺甲噁唑 (sulfamethoxazole, SMX, 纯度 > 99.9%). 均购于德国奥格斯堡公司 (Dr. Ehrenstorfer, Germany)

其他试剂: 乙腈 (色谱纯) 和甲醇 (色谱纯) 均购于 Merck 公司, Na_2EDTA (分析纯)、柠檬酸钠 (分析纯) 和柠檬酸 (分析纯) 均购于天津瑞金特化学品有限公司, 甲酸 (分析纯) 购于天津市科密欧化学试剂有限公司.

1.2.2 抗生素分析

(1) 样品的提取

水样: 经 $0.22 \mu\text{m}$ 水系滤膜抽滤后调节 pH 到 5, 然后经固相萃取富集到 2 mL, 过 $0.22 \mu\text{m}$ 滤膜, 上机.

泥样: 采用振荡-超声-离心法^[9] 提取固体样品中待测抗生素. 具体操作如下: 将经冷冻干燥的固体污泥样品研磨后过 80 目筛. 准确称取样品 1 g, 加入 15 mL 提取液 (甲醇- Na_2EDTA -McIlvaine 缓冲溶液, 1:1, 体积比), 振荡 5 min, 超声 15 min, $4000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 下离心 10 min, 收集上清液, 再重复此过程 3 次, 混合 3 次上清液, 用超纯水稀释至 500 mL, 用稀 HCl 调节 pH 到 5, 之后的操作与水样相同.

(2) 样品的分析检测

美国 Waters UPLC-Hclass 超高效液相色谱仪 [检测器: 紫外可见检测器, 色谱柱: Hydrophilic-Lipophilic Balance (HLB) Oasis 小柱 (6 mL/500 mg, Waters, WatfordUK)].

分析条件, 流动相为: 乙腈 (A), 0.1% 甲酸 (B), 流速 0.8 mL·min⁻¹, 柱温 25℃, 进样量 20 μL, 平行梯度: 0 ~ 10 min, 20% A. 检测波长: 268 nm (参比波长 286 nm).

1.2.3 方法质量学控制

配制一系列浓度为 0.1、0.5、1、5、10、50、100、1 000 μg·L⁻¹ 的 3 种磺胺类抗生素的混合标

准溶液, 根据 1.2.2 节的色谱条件分别进样 ($n = 3$). 以样品浓度 (y) 对应相应组分的出峰面积 (x) 作图, 得到各抗生素目标物的标准曲线. 在 500 mL 水样中添加不同浓度水平的混合标准溶液 (添加水平分别为 50、100、500 ng·L⁻¹), 在 1 g 污泥样品中添加 3 个浓度水平的混合标准溶液 (添加水平分别为 50、100、500 μg·kg⁻¹), 每个添加水平取 4 个平行样进行平行试验. 然后按照 1.2.2 节的样品提取和分析检测方法, 分别计算目标物在水样和污泥样品中的回收率, 按信噪比 (S/N) 为 3 和 10 分别得到 MDL 和 MQL^[10]. 详细结果见表 1.

表 1 分析方法的回收率、检出限、定量限及线性系数

Table 1 Recoveries, MDL, MQL and correlation coefficients of analysis method

化合物	回收率		检出限		定量限		R ²
	污水/%	污泥/%	污水 /ng·L ⁻¹	污泥 /μg·kg ⁻¹	污水 /ng·L ⁻¹	污泥 /μg·kg ⁻¹	
SD	87.3	72.4	6.72	1.83	15.23	8.77	0.999 94
SMI	72.6	69.8	3.84	0.85	12.64	6.43	0.999 92
SMX	83.9	70.1	2.67	1.09	10.19	6.86	0.999 98

1.3 抗性细菌在污水和污泥中的筛选、碳源分析与菌种鉴定

1.3.1 培养基

采用牛肉膏蛋白胨培养基^[11] 制备抗生素培养基, 将称量好的培养基各成分溶解于 1 L 水中搅拌均匀, 加热煮沸至完全溶解, 冷却后, 调节 pH 值为 7.2 ~ 7.4, 在 121℃、0.1 MPa 下灭菌 20 min.

1.3.2 试剂

试剂: 磺胺甲噁唑 (SMX) 标准品 (Dr. Ehrenstorfer GmbH); 乙醇、甲醇、NaCl (分析纯) 购于天津市科密欧化学试剂有限公司; 蛋白胨、琼脂粉、牛肉膏购于北京市奥博星生物技术有限责任公司; ECO 板购于美国 Biolog 公司.

1.3.3 磺胺甲噁唑抗性细菌的分离筛选

抗性细菌数目采用异养菌菌落计数法^[12]. 制备不添加抗生素和添加磺胺甲噁唑的 2 种牛肉膏蛋白胨培养基. 依据临床和实验室标准协会 (Clinical and Laboratory Standards Institute, CLSI) 指出抗生素对细菌的最小抑制浓度确定磺胺甲噁唑的浓度为 50.4 mg·L⁻¹. 样品取回后, 按照 10 倍梯度进行梯度稀释, 涂布, 然后在 30℃ 的培养箱中培养 3d, 最后进行菌落计数 (CFU·mL⁻¹), 每个样品做 3 个平行.

1.3.4 磺胺甲噁唑抗性细菌 ECO 板碳源分析

对 1.3.3 节中筛选出的抗性细菌进行划线纯化

分离后^[13], 挑取适当的菌株到 ECO 板^[14], 进行碳源分析. 用 96 个孔吸光度的平均值 (average well color development, AWCD) 与其时间变化来表示微生物的平均活性.

AWCD 的计算公式为:

$$AWCD = \left[\sum (C_i - R) \right] / n$$

式中, C_i 是除对照孔外各孔吸光度值; R 是对照孔吸光度值.

1.3.5 磺胺甲噁唑抗性细菌的菌种鉴定

对 1.3.3 节中划线纯化后的单菌落平板送到苏州金唯智生物科技有限公司采用 Sanger 测序法, 双向测序进行测序分析. 测序结果到 NCBI 上在线 BLAST 后即可知此种菌所在的属 (NCBI, <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/>).

2 结果与讨论

2.1 抗生素在污水和污泥中的浓度分布

两家制革污水处理厂各工段磺胺类抗生素的分布和水相总去除率见表 2 和表 3. 在整个废水处理过程中 3 种磺胺类抗生素均有检出. 水样中磺胺嘧啶的含量在 28.3 ~ 313.1 ng·L⁻¹ 之间; 磺胺甲基嘧啶的含量在 15.2 ~ 232.3 ng·L⁻¹ 之间; 磺胺甲噁唑的含量在 15.6 ~ 161.3 ng·L⁻¹ 之间. W1 和 W2 两家厂剩余污泥中磺胺嘧啶的含量为 1 287.3 ng·kg⁻¹

和 984.7 ng·kg⁻¹; 磺胺甲基嘧啶的含量为 990.7 ng·kg⁻¹和 788.7 ng·kg⁻¹; 磺胺甲噁唑的含量为 2 110 ng·kg⁻¹和 1 206 ng·kg⁻¹. 剩余污泥中的抗生素浓度均大于进水中的浓度, 这说明磺胺类抗生素容易在污泥中富集, 一旦这种富集多种抗生素的污泥不经过有效处理直接排放到环境中, 可能会造成潜在生态毒性和威胁^[15]. 陈涛等^[16]分析了广州市 3 个污水处理厂进水中磺胺类抗生素含量特征, 结果表明进水和出水中磺胺类抗生素总含量分别为 3 591.9 ~ 7 782.5 ng·L⁻¹ 和 2 216.6 ~ 3 591.9 ng·L⁻¹, Brown 等^[17]在美国新墨西哥州一个大型污水处理厂的进水中检测到磺胺甲噁唑的浓度为 0.399 μg·L⁻¹, 出水中的浓度分别为 0.31 μg·L⁻¹. 由此可见这两家制革污水处理过程中磺胺类抗生素的含量与市政污水处理厂的抗生素含量相差不大, 针对制革污水中的抗生素风险可以与市政污水中抗生素风险划分为同一水平, 采用相同的手段加以控制. 两家制革污水处理厂的污水处理工艺对 3 种抗生素的去除率均大于 70%, W2 厂的污水处理工艺

对 SM1 去除率高达 90.85%.

从表 2 和表 3 可以看出, 初沉池对 3 种磺胺类抗生素的去除率均不高, 在 2.9% ~ 6.4% 之间. Sui 等^[18]也报道过初级处理对污水中待测药物的去除效率较低. 相比于初沉池, 各生物处理单元对抗生素的去除率相对较高, 说明活性污泥对抗生素有较好的去处作用; W1 厂好氧池对 3 种抗生素的总去除率为 33.96%, W2 厂好氧池的总去除率为 24.89%; 而 W1 厂消化池对 3 种抗生素的总去除率为 71.14%, W2 厂水解酸化池对 3 种抗生素的总去除率为 71.32%, 这说明相比于好氧池, 厌氧池对抗生素的去除效果要好, W1 厂厌氧池对磺胺甲噁唑的去除率最低达到了 55.11%, 好氧池对 W1 厂磺胺嘧啶的最高去除率为 35.60%; 两家厂二沉池对抗生素的去除率在 20% 左右, 最高为 27.60%, 最低为 16.65%, 这是由于二沉池在泥水分离过程中, 抗生素大量吸附在了污泥上, 从而使得抗生素得以从水相去除. 这一结果与李佳楠^[7]的报道相同, 生物处理对于抗生素的去除起最主要作用.

表 2 污水处理厂 W1 中各工艺段磺胺类抗生素的含量水平和总去除率¹⁾

Table 2 Concentration and total removal extent of sulfonamide antibiotics in different samples from W1

抗生素	格栅出水	消化池	好氧池	AO 池	出水	污泥	水相总去除率/%
SD	253.6 ± 26.8	62.3 ± 6.6	38.7 ± 4.1	31.7 ± 3.4	28.3 ± 3.0	1 287.3 ± 253.7	88.83
SM1	122.5 ± 19.6	35.3 ± 5.7	22.8 ± 3.6	19.6 ± 3.1	15.2 ± 2.4	990.7 ± 147.7	87.57
SMX	67.8 ± 11.3	30.5 ± 5.1	23.1 ± 3.8	19.6 ± 3.2	15.6 ± 2.6	2 110 ± 459.1	77.06

1) 污水单位: ng·L⁻¹, 污泥单位: ng·kg⁻¹, 下同

表 3 污水处理厂 W2 中各采样点磺胺类抗生素的含量水平和总去除率

Table 3 Concentration and total removal extent of sulfonamide antibiotics in different samples from W2

抗生素	格栅出水	初沉池	水解酸化池	好氧池	AO 池	出水	污泥	水相总去除率/%
SD	313.0 ± 33.1	298.4 ± 31.5	73.7 ± 7.8	58.1 ± 6.1	42.6 ± 4.5	33.9 ± 3.6	984.7 ± 194.1	89.15
SM1	232.2 ± 37.2	217.4 ± 34.8	56.3 ± 9.0	38.2 ± 6.1	29.3 ± 4.7	21.3 ± 4.3	788.7 ± 168.7	90.85
SMX	161.3 ± 26.8	156.6 ± 26.0	62.7 ± 10.4	48.4 ± 8.3	34.9 ± 5.8	28.4 ± 4.7	1 206 ± 262.4	82.36

2.2 抗生素抗性细菌在污水厂中的丰度与鉴定

2.2.1 抗生素抗性细菌在污水厂中的丰度与分布特征

两家制革厂污水处理系统中进水(W1-J 和 W2-J)、出水(W1-C 和 W2-C)和剩余污泥(W1-S 和 W2-S)中总可培养细菌和磺胺甲噁唑抗性细菌的绝对含量(CFU·mL⁻¹或 CFU·g⁻¹)列于图 3. 从中可知, 两家制革厂的磺胺类抗性细菌含量并无太大差异, 进出水中的抗性细菌含量介于 9.37 × 10³ ~ 5.08 × 10⁵ CFU·mL⁻¹之间, 剩余污泥中的磺胺类抗性细菌含量较高, 分别为 1.17 × 10⁷ CFU·g⁻¹ 和 7.2 × 10⁶ CFU·g⁻¹. 两家制革污水处理厂对磺胺甲噁唑

抗性细菌的去除率分别为 1.34 log 和 2.15 log. 李佳楠^[7]研究了两个不同工艺的污水处理厂对磺胺甲噁唑抗性细菌的去除效果, 其去除率分别为 2.10 log 和 1.76 log. 如果剩余污泥未经有效措施处理进入环境中, 就会导致含有大量抗性基因的抗性细菌进一步增殖传播, 造成环境污染^[19].

图 4 总结了两家制革污水处理厂的进出水和剩余污泥中磺胺类抗性细菌在总可培养细菌中的比例情况. 从中可知, W2-J 中磺胺类抗性细菌占总可培养细菌的比例最低, 为 16.43%, W1-S 中的比例最高, 为 45.17%. 在本研究中磺胺甲噁唑的浓度为 50.4 mg·L⁻¹, 可见细菌能耐受高浓度的磺胺甲噁

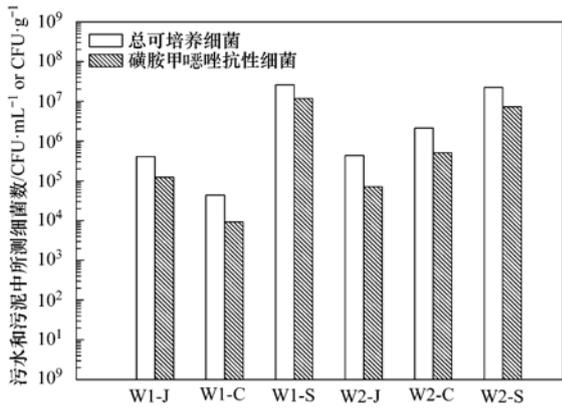


图3 所检测细菌含量

Fig. 3 Detected bacterial content

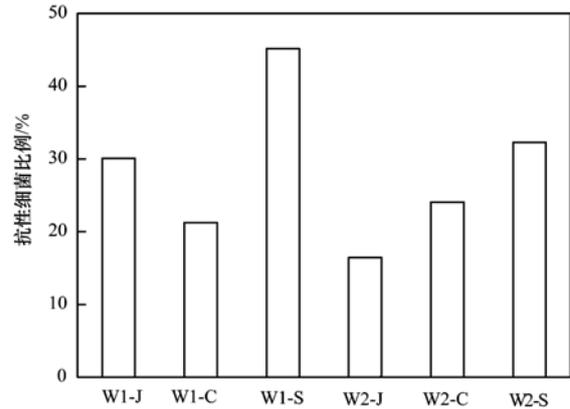


图4 磺胺类抗性细菌含量占总可培养细菌含量的比例

Fig. 4 Percentage of sulfonamide-resistant bacteria content to total cultured bacteria content

唑。剩余污泥中磺胺甲噁唑抗性细菌占总可培养细菌的比例较高，其分别为 45.17% 和 23.29%。

W1 厂磺胺甲噁唑抗性细菌含量占总可培养细菌含量的比例为进水高于出水，可见污水处理对抗生素抗性菌有一定的去除能力，但是 W2 厂出水中磺胺甲噁唑抗性细菌占总可培养细菌的比例反而有所增加。W2 厂进水中细菌对磺胺甲噁唑耐药率为 16.43%，而 W2 厂出水中则增加至 24.08%。Figueira 等^[20] 同样发现了出水中耐药细菌占总可培养细菌的比例高于进水的现象。此外，Kim 等的研究发现^[21]，四环素抗性细菌的增加与活性污泥有机负荷增加和污泥泥龄的减少有关。刘冲等^[22] 认为造成出水中抗性细菌增多的原因有以下几种：①没有专门针对去除抗性细菌的工艺，一般工艺对它的去除效果不大。②一般活性污泥对抗生素的吸附效果很好，当污泥中吸附抗生素时，可能会诱导污泥中的细菌转变成抗性细菌。③在污泥沉淀过程，吸附在污泥中的抗性细菌又被释放到污水中，随出水排出。总体来看，虽然在污水处理过程中，抗生素抗性细菌的总量会有一定量的削减，但是抗生素抗性细菌的耐药率有增加的趋势，故导致出水中仍还有大量抗性细菌，这些抗性细菌进入环境后，会造成水体、土壤等污染，最终影响人体健康^[23]。

2.2.2 磺胺类抗性细菌对 6 种碳源的利用情况

如图 5 所示，从两家制革污水处理厂的进出水和剩余污泥中筛选出的 8 个分离株对 6 类碳源的利用程度存在差异，不同分离株对同一碳源情况不同。如对碳水化合物类物质 W1-J、W1-S1、W2-C 和 W2-S2 这 4 个分离株的利用程度较高，对胺类物质 W1-J 和 W2-C 的利用程度较高。同一分离株对不同碳源的利用程度也有差异，如 W1-C 对氨基酸类物质利用程度最高，而对碳水化合物类物质利用程度较低。

总体来说 8 个分离株在碳源代谢方面优势群落依次为氨基酸类代谢群落，羧酸类代谢群落，胺类代谢群落，碳水化合物代谢群落，酚酞类代谢群落和多聚物类代谢群落。

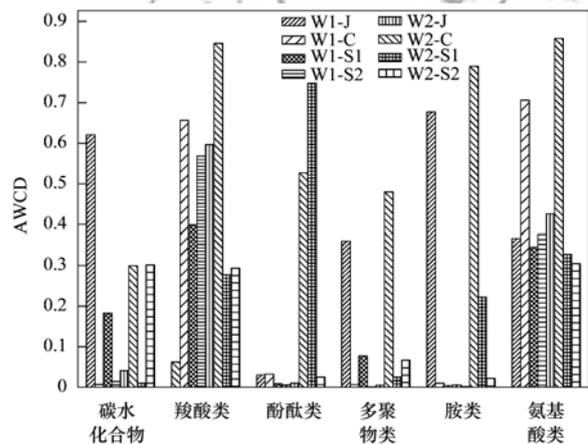


图5 8个分离株基于六大类碳源 AWCD 的变化

Fig. 5 AWCD of eight isolated strains based on six categories of carbon sources

2.2.3 磺胺甲噁唑抗性细菌菌种鉴定结果

由表 4 可以看出，在两家制革污水处理厂的进出水和剩余污泥中总共筛选出 8 个分离菌株可分为 5 个菌属，其进出水中检测到的抗性细菌分别为气单胞菌 (*Aeromonas bivalvium*)、粪产碱杆菌 (*Alcaligenes faecalis*) 和农杆菌 (*Agrobacterium* sp.)，剩余污泥中为枯草芽孢杆菌 (*Bacillus wiedmannii*) 和梭菌 (*Lysinibacillus fusiformis*)。虽然一些抗性菌株没有致病性，但是它们可以通过基因水平转移，将抗性基因转移给致病菌^[24]，使得致病菌携带抗性基因而产生耐药性，导致在疾病治疗过程中抗生素的使用剂量越来越高，疗效也越来越不理想^[25]，从而使疾病救治更加棘手，构成潜在的生

态风险.

研究过程中发现枯草芽孢杆菌 (*Bacillus wiedmannii*) 和粪产碱杆菌 (*Alcaligenes feacalic*) 相对于其他抗性细菌, 它们在数量上占一定的优势, 表明这两种抗性细菌是从剩余污泥和废水中筛选出的抗性细菌中的优势菌, 说明这两种抗性细菌有可能成为 SMX 的高效降解菌.

表 4 磺胺甲噁唑抗性细菌鉴定结果

Table 4 Identification of SMX-resistant bacteria in water and sediment

编号	最接近的种	登录号	相似度 /%
1(W1-J)	<i>Aeromonas bivalvium</i>	NR 043885.1	99
2(W1-C)	<i>Alcaligenes feacalic</i>	KT 988067.1	99
3(W1-S)	<i>Bacillus wiedmannii</i>	MF 062955.1	99
	<i>Alcaigenes feacalic</i>	JN 828951.1	99
4(W2-J)	<i>Alcaigenes feacalic</i>	JN 828951.1	99
5(W2-C)	<i>Agrobacterium</i> sp.	AB 905493.1	99
6(W2-S)	<i>Lysinibacillus fusiformis</i>	KX 444651.1	99
	<i>Bacillus wiedmannii</i>	MF 062955.1	99

2.3 抗生素的含量水平对抗性细菌的丰度的影响

Gao 等^[26]报道了污水处理厂进出水中磺胺类

抗生素的总浓度与磺胺甲噁唑抗性细菌间的关联性, 其相关系数为 0.75, 说明磺胺类抗生素的总浓度与磺胺甲噁唑抗性细菌丰度为正相关性. 本论文研究了两个制革厂的进出水中磺胺类抗生素(磺胺嘧啶、磺胺甲基嘧啶和磺胺甲噁唑)总浓度对磺胺甲噁唑抗性细菌丰度的影响, 以及单一抗生素的含量水平对抗性细菌丰度的影响. 由表 5 可知, 通过对比进出水中磺胺类抗生素的总浓度和单一抗生素的浓度与抗性细菌的丰度特征, 发现随着磺胺类抗生素总浓度、磺胺嘧啶、磺胺甲基嘧啶和磺胺甲噁唑抗性细菌含量的增加, 磺胺类抗性细菌也有所增加, 这说明磺胺类抗生素可能会诱导抗性细菌的出现. 因此, 本研究进一步分析了磺胺类抗生素(磺胺嘧啶、磺胺甲基嘧啶和磺胺甲噁唑)总浓度和磺胺甲噁唑抗性细菌浓度的相关性, 以及单一抗生素的含量与抗性细菌含量的相关性, 结果为磺胺类抗生素总浓度、磺胺嘧啶、磺胺甲基嘧啶和磺胺甲噁唑与磺胺类抗性细菌之间均有较好的正相关性, 分别为: $R^2 = 0.84$ 、 $R^2 = 0.64$ 、 $R^2 = 0.92$ 和 $R^2 = 0.98$.

表 5 两个制革污水处理厂的进出水中磺胺类抗生素总浓度、单一抗生素和磺胺甲噁唑抗性细菌的丰度

Table 5 Total concentration of sulfonamides, single antibiotics, and sulfamethoxazole-resistant bacteria in influent and effluent of two tannery sewage treatment plants

项目	抗生素/ng·L ⁻¹				磺胺类抗性细菌 /CFU·g ⁻¹
	SD	SX1	SXM	磺胺类 抗生素总浓度	
W1-出水	28.3	15.2	15.6	59.1	9.3×10^3
W2-出水	33.9	21.3	28.4	83.6	1.08×10^4
W1-进水	253.6	122.5	67.8	443.9	2.04×10^5
W2-进水	313.0	232.2	161.3	706.5	7.1×10^5

3 结论

(1) 两家制革污水处理过程中均检测到 3 种磺胺类抗生素, 并且对 3 种抗生素的去除率均大于 70%. 这两家制革污水处理过程中磺胺类抗生素的含量与市政污水处理厂的抗生素含量相差不大, 针对制革污水中的抗生素产生的风险可以与市政污水中抗生素产生的风险划分为同一水平, 可采用相同的手段加以控制.

(2) 两家制革污水处理过程中共筛选出 5 种磺胺类抗性细菌. 剩余污泥中的抗性细菌的数量与种类都高于进出水中. 制革污水的进出水中磺胺甲噁唑抗性细菌数分别随着磺胺类抗生素总浓度、磺胺嘧啶、磺胺甲基嘧啶和磺胺甲噁唑的浓度增加均有所增加, 这说明磺胺类抗生素可能会诱导大量抗性

细菌的出现.

(3) 两家制革污水处理厂对磺胺甲噁唑抗性细菌的去除率分别为 1.34 log 和 2.15 log, 但出水中抗生素抗性细菌的细菌耐药率有增加的趋势, 导致出水中仍还有大量抗性细菌, 这些抗性细菌进入环境后, 会造成水体、土壤等环境污染, 最终影响人体健康.

参考文献:

- [1] Zhou L J, Ying G G, Liu S, *et al.* Occurrence and fate of eleven classes of antibiotics in two typical wastewater treatment plants in South China[J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **452-453**: 365-376.
- [2] 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.

- [3] Jiang L, Hu X L, Xu T, *et al.* Prevalence of antibiotic resistance genes and their relationship with antibiotics in the Huangpu River and the drinking water sources, Shanghai, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **458-460**: 267-272.
- [4] Kosma C I, Lambropoulou D A, Albanis T A. Occurrence and removal of PPCPs in municipal and hospital wastewaters in Greece[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, **179**(1-3): 804-817.
- [5] Zhu Y G, Gillings M, Simonet P, *et al.* Microbial mass movements[J]. *Science*, 2017, **357**(6356): 1099-1100.
- [6] Jiang H X, Lü D H, Chen Z L, *et al.* High prevalence and widespread distribution of multi-resistant *Escherichia coli* isolates in pigs and poultry in China[J]. *The Veterinary Journal*, 2011, **187**(1): 99-103.
- [7] 李佳楠. 城市污水系统中典型抗生素、抗性基因和抗性细菌的丰度与关联性研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2014.
Li J N. The abundance and relationships between typical antibiotics and corresponding resistance in municipal wastewater treatment system[D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2014.
- [8] 高忠柏, 吴琪. 污染——中国制革业不得不面对的难题[J]. *中国皮革*, 2007, (15): 68-72.
- [9] 宋淑敏, 张翔宇, 周佳虹, 等. 超高效液相色谱串联质谱法同时测定城市污水处理厂污泥中 12 种抗生素[J]. *环境化学*, 2017, **36**(9): 1923-1931.
Song S M, Zhang X Y, Zhou J H, *et al.* Simultaneous determination of 12 antibiotics in sewage sludge by ultra performance liquid chromatography-electrospray ionization tandem mass spectrometry[J]. *Environmental Chemistry*, 2017, **36**(9): 1923-1931.
- [10] 洪蕾洁, 石璐, 张亚雷, 等. 固相萃取-高效液相色谱法同时测定水体中的 10 种磺胺类抗生素[J]. *环境科学*, 2012, **33**(2): 652-657.
Hong L J, Shi L, Zhang Y L, *et al.* Simultaneous determination of 10 sulfonamide antibiotics in water by solid-phase extraction and high performance liquid chromatography[J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(2): 652-657.
- [11] GB 4789.2-2016, 食品安全国家标准 食品微生物学检验 菌落总数测定[S].
- [12] 许媛媛, 吴涛, 骆淑媛, 等. 武汉东湖水体中的细菌对抗生素耐性的研究[J]. *科学技术创新*, 2017, (26): 1-3.
- [13] 韩秋菊. 药用微生物[M]. 北京: 化学工业出版社, 2011. 78-82.
- [14] 李明智, 张宇, 梅荣武, 等. Biolog ECO 分析活性污泥微生物功能多样性特征[J]. *环境科学与技术*, 2016, **39**(6): 55-58, 100.
Li M Z, Zhang Y, Mei R W, *et al.* Analysis of microbial community functional diversity of activated sludge by Biolog ECO method[J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **39**(6): 55-58, 100.
- [15] Zhu S C, Chen H, Li J A. Sources, distribution and potential risks of pharmaceuticals and personal care products in Qingshan Lake basin, eastern China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2013, **96**: 154-159.
- [16] 陈涛, 李彦文, 莫渊辉, 等. 广州污水厂磺胺和喹诺酮抗生素污染特征研究[J]. *环境科学与技术*, 2010, **33**(6): 144-147, 180.
Chen T, Li Y W, Mo C H, *et al.* Screening of sulfonamide and fluoroquinolone antibiotics in wastewater of sewage treatment plants in Guangzhou, South China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **33**(6): 144-147, 180.
- [17] Brown K D, Kulis J, Thomson B, *et al.* Occurrence of antibiotics in hospital, residential, and dairy effluent, municipal wastewater, and the Rio Grande in New Mexico[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, **366**(2-3): 772-783.
- [18] Sui Q, Huang J, Deng S B, *et al.* Occurrence and removal of pharmaceuticals, caffeine and DEET in wastewater treatment plants of Beijing, China[J]. *Water Research*, 2010, **44**(2): 417-426.
- [19] Brooks J P, Maxwell S L, Rensing C, *et al.* Occurrence of antibiotic-resistant bacteria and endotoxin associated with the land application of biosolids[J]. *Canadian Journal of Microbiology*, 2007, **53**(5): 616-622.
- [20] Figueira V, Serra E, Manaia C M. Differential patterns of antimicrobial resistance in population subsets of *Escherichia coli* isolated from waste-and surface waters[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, **409**(6): 1017-1023.
- [21] Kim S, Aga D S. Potential ecological and human health impacts of antibiotics and antibiotic-resistant bacteria from wastewater treatment plants [J]. *Journal of Toxicology and Environmental Health, Part B*, 2007, **10**(8): 559-573.
- [22] 刘冲, 黄满红, 肖斌. 城市污水处理厂污水处理系统中四环素类药物耐药菌的分布特性研究[J]. *环境污染与防治*, 2013, **34**(12): 5-8.
Liu C, Huang M H, Xiao B. Study on the distribution characteristics of tetracyclines resistant bacteria in wastewater treatment plant[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2013, **34**(12): 5-8.
- [23] 刘亚兰, 李冰, 邱勇, 等. 无锡市污水处理厂抗生素抗性菌分布与去除特性研究[J]. *环境科学学报*, 2017, **37**(6): 2114-2121.
Liu Y L, Li B, Qiu Y, *et al.* Distribution and removal characteristics of antibiotic resistant bacteria in wastewater treatment plants at Wuxi [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(6): 2114-2121.
- [24] 徐冰洁, 罗义, 周启星, 等. 抗生素抗性基因在环境中的来源、传播扩散及生态风险[J]. *环境化学*, 2010, **29**(2): 169-178.
Xu B J, Luo Y, Zhou Q X, *et al.* Sources, dissemination, and ecological risks of antibiotic resistances genes (ARGs) in the environment[J]. *Environmental Chemistry*, 2010, **29**(2): 169-178.
- [25] Um M M, Barraud O, Kérouédan M, *et al.* Comparison of the incidence of pathogenic and antibiotic-resistant *Escherichia coli* strains in adult cattle and veal calf slaughterhouse effluents highlighted different risks for public health[J]. *Water Research*, 2016, **88**: 30-38.
- [26] Gao P P, Mao D Q, Luo Y, *et al.* Occurrence of sulfonamide and tetracycline-resistant bacteria and resistance genes in aquaculture environment [J]. *Water Research*, 2012, **46**(7): 2355-2364.

CONTENTS

Emission Inventory and Prediction of Non-road Machineries in the Yangtze River Delta Region, China	HUANG Cheng, AN Jing-yu, LU Jun (3965)
Vehicle Exhaust Emission Characteristics and Their Contributions in Jiangsu Province	LI Li, ZHANG Jie, ZHAO Qiu-yue, <i>et al.</i> (3976)
Historical Trends of Atmospheric Pb and Hg Emissions from Fossil Fuel Combustion in Shanghai	YANG Jing, CHEN Long, LIU Min, <i>et al.</i> (3987)
Emission Inventory of Atmospheric Pollutants and VOC Species from Crop Residue Burning in Guangdong Province	SUN Xi-bo, LIAO Cheng-hao, ZENG Wu-tao, <i>et al.</i> (3995)
Mass Concentrations and Size Distributions of Water-soluble Inorganic Ions in Atmospheric Aerosols in Beibei District, Chongqing	LI Yan-pei, HAO Qing-ju, WEN Tian-xue, <i>et al.</i> (4002)
Analysis of Seasonal Variations in Chemical Characteristics and Sources of PM _{2.5} During Summer and Winter in Ji'nan City	LIU Xiao-di, MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, <i>et al.</i> (4014)
PM _{2.5} Pollution Characterization and Cause Analysis of a Winter Heavy Pollution Event, Liaocheng City	ZHANG Jing-qiao, WU Ya-jun, ZHANG Meng, <i>et al.</i> (4026)
Concentrations, Sources, and Dry Deposition Fluxes of Different Forms of Phosphorus in Qingdao Aerosols in Summer	WANG Nan, MA Miao, SHI Jin-hui, <i>et al.</i> (4034)
Characteristics and Source Apportionment of Ambient Volatile Organic Compounds in Winter in Jincheng	YANG Fan, YAN Yu-long, GE Yun-fei, <i>et al.</i> (4042)
Enrichment Levels and Comprehensive Pollution Assessment of Dust Heavy Metals in Winter in Beijing	XIONG Qiu-lin, ZHAO Wen-ji, LI Da-jun, <i>et al.</i> (4051)
Characteristics of Atmospheric BTX near a Main Road in Hefei City	MENG Fan-hao, QIN Min, LIANG Shuai-xi, <i>et al.</i> (4060)
Ozone Generation Potential and Highly Contributing Substances of NMOCs from Landfill Working Face	LI Hao, LIU Yan-jun, CHEN Tan, <i>et al.</i> (4070)
Emission Characteristics of Wind-Eroded Dust from Concrete Batching Plants in Beijing	LI Bei-bei, HAN Kai-li, QIN Jian-ping, <i>et al.</i> (4078)
Seasonal Variation Characteristics of Pollution Risk in a Riverside Source Area Based on Source Apportionment	GAO Xiang, ZUO Rui, GUO Xue-ru, <i>et al.</i> (4086)
Evaluation of Effect of Urban Non-point Source Pollution Control on Porous Asphalt-Bio-retention Combined Roads	GONG Man-li, ZUO Jun-jie, REN Xin-xin, <i>et al.</i> (4096)
Composition, Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Chromophoric Dissolved Organic Matter in the Lanzhou Reach of the Yellow River	ZHAO Xia-ting, LI Shan, WANG Zhao-wei, <i>et al.</i> (4105)
Characterization of Dissolved Organic Matter Fractions in the Ning-Meng Section of the Yellow River and Relationship with Metal Ions	XI Yue, WANG Ting, NI Jin-ren, <i>et al.</i> (4114)
Comparative Characteristics of Optical Absorption in Waters from Yiluo River and Huntai River in Spring	LI Liu-yang, SHAO Tian-tian, ZHANG Xin, <i>et al.</i> (4122)
Seasonal Variations in River Water Chemical Weathering and Its Influence Factors in the Malian River Basin	WANG Yu-shan, HAN Shuang-bao, DENG Qi-jun, <i>et al.</i> (4132)
Characteristics and Genesis of NO ₃ Type Water in Shallow Groundwater in Liujiang Basin	XU Jin, HE Jiang-tao, PENG Cong, <i>et al.</i> (4142)
Development and Evaluation of a Sustainable Long-release Carbon Material Applied for In-Situ Remediation of Groundwater Nitrogen Pollution	ZHANG Wen, YIN Lin, ZHOU Nian-qing (4150)
Phosphorus Forms and Distribution Characteristics in the Sediment and Soil of the Water-Level-fluctuating Zone in the Main Stream of the Three Gorges Reservoir	ZHANG Zhi-yong, WAN Cheng-yan, HU Hong-qing, <i>et al.</i> (4161)
Distribution Characteristics and Release Fluxes of Phosphorus Forms in Xiangxi Bay Sediments in the Three Gorges Reservoir Before and After Impoundment	LIU Xin-yuan, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (4169)
Effect of Zirconium-modified Zeolite Addition on Phosphorus Release and Immobilization in Heavily Polluted River Sediment	HE Si-qi, ZHANG Wei, LIN Jian-wei, <i>et al.</i> (4179)
Impact of Human Activities on Net Anthropogenic Nitrogen Inputs (NANI) at Township Scale in Erhai Lake Basin	LI Ying, LIU Hong-bin, LEI Qiu-jiang, <i>et al.</i> (4189)
Simulation of Inorganic Nitrogen Fluxes at the Sediment-water Interface in a Typical Intertidal Zone, Eastern China	NIE Jia-qin, WANG Dong-qi, CHEN Jie, <i>et al.</i> (4199)
Effects of Aquaculture on Ammonia-oxidizing Prokaryotes in Sediments of Eastern Lake Taihu	CHU Yu, HE Xiao-wei, ZENG Jin, <i>et al.</i> (4206)
Transformation of Ammonia in Wetland Sediments for Treatment of Mining Wastewater	WANG Hai-bo, MA Ding, YUE Zheng-bo, <i>et al.</i> (4215)
Distribution Characteristics of Sulfonamide Antibiotic Resistance Genes in a Drinking Water Source in East China	HU Ya-ru, JIANG Lei, ZHANG Tian-yang, <i>et al.</i> (4222)
Distribution Characteristics of Sulfonamides and Sulfamethoxazole-Resistant Bacteria in Tannery Wastewater Treatment Processes	HUA Li, LI Lu, YANG Chun-yan (4229)
Effects of Different Substrates and Particle Sizes on Wastewater Purification	ZHAO Lin-li, SHAO Xue-xin, WU Ming, <i>et al.</i> (4236)
Substrate Flow by Different Biochemical Activities in the Urban Sewage Network	YAO Xiang-yi, SHI Xuan, SANG Lang-tao, <i>et al.</i> (4242)
Reducing Membrane Fouling from Micro-Flocculation in a Humic Acid Ultrafiltration Process	WANG Xu-dong, SHI Cai-xia, LIAO Zheng-wei, <i>et al.</i> (4249)
Enhanced Degradation of Aniline by PS Oxidation in the Presence of UV and Ferric Oxalate	HAN Dong-hui, LI Ying, LI Kai-ming, <i>et al.</i> (4257)
Behavior and Degradation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Coking Wastewater of A/O ² and A/O/H/O Processes	WU Hai-zhen, SUN Sheng-li, LIU Guo-xin, <i>et al.</i> (4265)
Effects of Long-term Side Stream Extract on Phosphorus Removal and Recovery Performance of EBPR System	YU Xiao-jun, LI Jie, ZHOU Meng, <i>et al.</i> (4274)
Effect of NaCl Salinity on Extracellular Polymeric Substances and Bioflocculation of Anoxic Sludge in A ² /O Process	ZHANG Lan-he, TIAN Rui, GUO Jing-bo, <i>et al.</i> (4281)
Effect of Temperature and pH on Nitrogen Conversion in Feammox Process	CHEN Fang-min, JIN Run, YUAN Yan, <i>et al.</i> (4289)
Inhibitory Kinetics of Free Ammonia (FA) on Ammonia-oxidizing Bacteria (AOB)	SUN Hong-wei, YU Xue, GAO Yu-xue, <i>et al.</i> (4294)
Effect of HRT on Nitrogen Removal Using ANAMMOX and Heterotrophic Denitrification	AN Fang-jiao, ZHAO Zhi-chao, HUANG Li, <i>et al.</i> (4302)
Reactivation Performance of Nitrosation Flocculent Sludge After Long-term Storage	LI Tian, WEI Fan-kai, WANG Yu-chang, <i>et al.</i> (4310)
Analysis of Characteristics and Sources of Heavy Metals in Farmland Soils in the Xijiang River Draining of Guangxi	SONG Bo, ZHANG Yun-xia, PANG Rui, <i>et al.</i> (4317)
Soil Organic Carbon of Purple Soil as Affected by Different Application of Biochar	LUO Mei, TIAN Dong, GAO Ming, <i>et al.</i> (4327)
Effects of Straw and Biochar Addition on Soil Carbon Balance and Ecological Benefits in a Rape-maize Rotation Planting System	LI Jiao, TIAN Dong, HUANG Rong, <i>et al.</i> (4338)
Potential to Ensure Safe Production from Rice Fields Polluted with Heavy Cadmium by Combining a Rice Variety with Low Cadmium Accumulation, Humic Acid, and Sepiolite	XIE Xiao-mei, FANG Zhi-ping, LIAO Min, <i>et al.</i> (4348)
Interactive Effects of Ozone and Drought on Antioxidant Enzyme Activities of Poplar Leaves	ZHOU Hui-min, LI Pin, GAO Feng, <i>et al.</i> (4359)
Effects of Different Levels of Irrigation with Reclaimed Water on Soil Enzyme Activity and Distribution of Thermotolerant Coliforms	HAN Yang, LI Ping, QI Xue-bin, <i>et al.</i> (4366)
Characteristics of Heavy Metals in Chicken Manure Organic Fertilizers in the Huang-Huai-Hai Region and related Environmental Risk Assessment	LI Fa, XU Ying-ming, WANG Lin, <i>et al.</i> (4375)
Heavy Metal Content of Rural Living Solid Waste and Related Source and Distribution Analysis	JIN Qi, GAO Hong, YUE Bo, <i>et al.</i> (4385)