

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

- 主办 中国科学院生态环境研究中心
- 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.11
第40卷 第11期

目次

2018年中国长江三角洲地区气溶胶的垂直分布特征 沈吉, 曹念文(4743)

2018年石家庄市秋冬季典型霾污染特征 宿文康, 鲍晓磊, 倪爽英, 赵卫凤(4755)

武汉市PM_{2.5}化学组分时空分布及聚类分析 张会涛, 田瑛泽, 刘保双, 杨佳美, 郁佳, 官攀, 吴建会, 张裕芬(4764)

郑州市某生活区大气PM_{2.5}中重金属污染特征及生态、健康风险评估 何瑞东, 张轶舜, 陈永阳, 靳孟洁, 韩士杰, 赵金帅, 张瑞芹, 燕启社(4774)

厦门市降水中金属元素含量分布特征及来源解析 王珊珊, 程奕枫, 颜金培, 胡恭任(4783)

2015~2017年上海郊区大气新粒子生成特征 霍俊涛, 王新宁, 段玉森, 伏晴艳, 陈冰怡(4791)

太原市秋冬季大气污染特征和输送路径及潜在源区分析 闫世明, 王雁, 郭伟, 李莹, 张逢生(4801)

东北区域空气质量时空分布特征及重度污染成因分析 陈卫卫, 刘阳, 吴雪伟, 鲍秋阳, 高枫亭, 张学磊, 赵红梅, 张世春, 修艾军, 程天海(4810)

艾比湖流域气溶胶光学厚度时空演变及影响因素 陈香月, 丁建丽, 王敬哲, 葛翔宇, 梁静(4824)

中国住宅室内BTEX浓度水平及其影响因素 侯贝贝, 尹奕卉, 裴晶晶, 刘俊杰(4833)

石家庄地区芳香族化合物的污染特征及来源分析 杨阳, 李杏茹, 刘水桥, 杨玉磊, 赵清, 陈曦, 徐静(4841)

郑州市碳素行业无组织VOCs排放特征分析及健康风险评估 张轶舜, 王佳, 韩士杰, 何瑞东, 陈永阳, 靳孟洁, 赵庆炎, 张瑞芹, 燕启社(4847)

典型化工行业有害VOCs排放清单及长三角地区应用 鲁君, 黄奕玮, 黄成(4856)

2013~2017年江苏省人为源氨排放清单的建立及特征 侯新红, 于兴娜, 沈丽, 赵睿东, 王国祯, 张毓秀(4862)

焦化厂建筑物和生产设施表面PAHs的赋存特征及健康风险 赵一澍, 廖晓勇, 李尤, 罗俊鹏, 龚雪刚, 侯艺璇(4870)

中国南海流沙湾中雄激素、糖皮质激素和孕激素的污染特征及其生态风险评价 杨雷, 张晋娜, 徐敏, 彭涛, 史文俊, 石义静, 应光国(4879)

岩溶流域洪水过程水化学动态变化及影响因素 原雅琼, 孙平安, 苏钊, 于爽, 钟丽华, 何师意, 徐茜(4889)

长江水体常量和微量元素的来源、分布与向海输送 吴文涛, 冉祥滨, 李景喜, 王昊, 李梦露, 刘军, 臧家业(4900)

望虞河西岸河网重金属污染特征及生态风险评价 徐晨, 王沛芳, 陈娟, 袁秋生, 胡斌(4914)

不同雨强对太湖河网河道入湖营养盐负荷影响 陈洁, 朱广伟, 许海, 詹旭, 朱梦圆, 笪文怡, 黄亚文(4924)

合肥市十八联圩湿地表层沉积物营养盐与重金属分布及污染评价 陈姗, 许凡, 谢三桃, 郭天星, 彭久赞, 雷琦, 张玮, 王丽卿(4932)

三峡库区不同河段支流丰水期叶绿素a和营养盐的空间分布特征 杨凡, 杨正健, 纪道斌, 苏青青, 龙良红, 刘心愿, 王耀耀, 赵冲(4944)

丹江口水库氮磷内源释放对比 王志齐, 刘新星, 姚志宏, 姚伦广, 常跃, 刘卓初, 曹连海(4953)

不同沉水植物净水能力与植株体细菌群落组成相关性 李琳, 岳春雷, 张华, 李贺鹏, 杨乐, 王瑀(4962)

纳米氧化锌粒径对人工湿地性能及微生物群落的影响 王森, 任伶, 刘琳琳, 李颖, 张振, 孔范龙(4971)

水生植物生物质炭去除水体中氮磷性能 刘舒蕾, 彭慧君, 杨佳怡, 肖琳(4980)

MgO改性莲蓬壳生物炭的制备及其磷吸附特性 王盛华, 朱丹晨, 邵敬爱, 向家涛, 杨海平, 易娟, 张世红, 陈汉平(4987)

微塑料对短流程膜工艺中膜污染的影响 王博东, 薛文静, 吕永涛, 苗瑞, 马百文(4996)

基于铁锰泥的除砷颗粒吸附剂制备及其比较 曾辉平, 于亚萍, 吕赛赛, 李冬, 张杰(5002)

氯氧铁非均相催化过氧化氢降解罗丹明B 张少朋, 陈瑞, 白淑琴, 刘锐平(5009)

天津市规模化奶牛养殖场废水中典型抗生素处理效果及生态风险评估 陈乾, 赵润, 牟美睿, 白鸽, 史宏伟, 刘海学, 吴惠惠(5015)

废水处理系统中抗生素抗性基因分布特征 姚鹏城, 陈嘉瑜, 张永明, 温东辉, 陈吕军(5024)

全程自养脱氮耦合反硝化除磷的启动及稳定运行 印雯, 陈亚, 张钰, 徐乐中, 吴鹏, 刘文如(5032)

FeCl₃-生化耦合技术调控未知诱因的污泥膨胀 魏东洋, 肖才林, 周雯, 李睿华, 曹茜(5040)

污泥龄对除磷亚硝化颗粒系统的影响 李冬, 刘博, 王文琪, 曹美忠, 李帅, 张杰(5048)

厌氧氨氧化耦合反硝化工艺的启动及微生物群落变化特征 宋壮壮, 吕爽, 刘哲, 时兴东, 潘傲, 张智(5057)

基质暴露水平对ANAMMOX微生物活性及生物量的影响 陈方敏, 高佳琦, 黄勇, 胡羽婷, 李祥, 顾澄伟, 谈新伟, 殷记强, 方文焯, 倪敏(5066)

太浦河流域农田土壤重金属污染特征与来源解析 李伟迪, 崔云霞, 曾撑撑, 朱永青, 彭月, 王凯, 李士俊(5073)

土壤重金属污染风险筛选值划分方法:以Cd为例 王锐, 张凤雷, 徐姝姝, 张永文(5082)

半壁山金矿矿业活动区砷赋存的矿物特征及其对农田土壤砷累积的影响 温其谦, 阎秀兰, 申俊峰, 李鸣凤(5090)

土壤调理剂对镉污染稻田修复效果 周利军, 武琳, 林小兵, 王惠明, 刘晖, 张鸿燕, 胡敏, 石利萍, 张云, 黄欠如(5098)

改性蒙脱土对稻田土壤甲基汞的阻控修复 韩怡新, 何天容, 王祖波(5107)

铈锰改性生物炭对土壤As的固定效应 梁婷, 李莲芳, 朱昌雄, 叶婧(5114)

温和预氧化提高后续生物修复石油污染土壤 徐金兰, 王慧芳, 王荣, 章秋菊, 王杰(5124)

重金属污染农田生菜根际重金属固定细菌群落组成及其阻控效应 王铁军, 苏楠楠, 雷鹏, 邱明洋, 陈兆进, 姚伦广, 韩辉(5133)

双氰胺和3,4-二甲吡唑磷酸盐对蔬菜种植土壤氨氧化细菌和古菌的影响 郭俊丽, 刘毅, 魏文学, 葛体达, 王光军(5142)

不同再生水灌溉方式对土壤-辣椒系统中细菌群落多样性及病原菌丰度的影响 崔丙健, 高峰, 胡超, 李中阳, 樊向阳, 崔二革(5151)

黄土高原地区两种土地利用方式CO₂和N₂O排放特征 韩佳乐, 郝珊, 刘振杰, 张曼, 张阿凤(5164)

生物质炭对华北平原4种典型土壤N₂O排放的影响 张秀玲, 孙贇, 张水清, 岳克, 曹红亮, 林杉(5173)

优化施肥模式对我国热带地区水稻-豇豆轮作系统N₂O和CH₄排放的影响 胡玉麟, 汤水荣, 陶凯, 何秋香, 田伟, 秦兴华, 伍延正, 孟磊(5182)

《环境科学》征订启事(4995) 《环境科学》征稿简则(5039) 信息(4782, 4979, 5056)

废水处理系统中抗生素抗性基因分布特征

姚鹏城^{1,2}, 陈嘉瑜^{1,2}, 张永明¹, 温东辉³, 陈吕军^{1,2*}

(1. 上海师范大学环境与地理科学学院, 上海 200234; 2. 清华大学环境学院, 北京 100084; 3. 北京大学环境科学与工程学院, 北京 100871)

摘要: 废水处理厂被认为是抗生素抗性基因(ARGs)的重要污染源. 为探究抗性基因在进水状况复杂的废水处理厂沿程的分布变化特征, 选取以生产抗生素为主导行业的某化工园区废水处理厂, 使用实时荧光定量 PCR 对废水处理厂沿程 ARGs 的种类、丰度变化进行研究. 结果表明, 废水处理厂水体中检出 16 种 ARGs, 四环素类、磺胺类 ARGs 为废水处理厂中占主导的抗性基因, 并检出可移动遗传元件 *intI1*, 其丰度与磺胺类抗性基因的丰度 ($P < 0.05, r > 0.95$) 存在相关性, 表明可移动遗传元件 *intI1* 可能促进了磺胺类抗性基因的迁移和转化. 园区医药企业以合成大环内酯类抗生素为主, 由于选择性压力, 园区废水中, *ermB* 抗性基因的绝对丰度远远高于其他废水中 *ermB* 的绝对丰度. 废水经过废水处理厂生物处理工艺, 总 ARGs 绝对丰度下降了 1.16 个数量级, 经过芬顿工艺处理后, 总 ARGs 绝对丰度下降了 2.46 个数量级, 表明该废水处理工艺中深度处理工艺对 ARGs 的去除效果优于生物处理. 高浓度、可移动的 ARGs 已经存在于水体中, 如果没有得到有效治理, 从废水处理厂排出, 将给环境带来高度风险.

关键词: 抗生素抗性基因(ARGs); 实时荧光 PCR; 废水处理厂(WWTPs); 工业园区; 芬顿氧化

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)11-5024-08 DOI: 10.13227/j.hjkk.201903196

Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Wastewater Treatment Plants

YAO Peng-cheng^{1,2}, CHEN Jia-yu^{1,2}, ZHANG Yong-ming¹, WEN Dong-hui³, CHEN Lü-jun^{1,2*}

(1. School of Environmental and Geographical Sciences, Shanghai Normal University, Shanghai 200234, China; 2. School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China; 3. College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: Wastewater treatment plants (WWTPs) are regarded as the main source for antibiotic resistant genes (ARGs). To explore the features regarding the distribution of ARGs in wastewater with complicated composition in treatment plants, wastewater samples from a chemical industry park that produced antibiotics were selected. qPCR was applied to detect the type and abundance of ARGs in the wastewater flows from the WWTPs. The results indicated that 16 types of ARGs were detected from the wastewater from the WWTPs, among which sulfonamide resistance genes and tetracycline resistance genes were the dominant ARGs that appeared in the wastewater. Additionally, *intI1* was detected and its abundance was correlated with that of sulfonamide resistance genes. This indicated that *intI1* may promote the migration and transformation of sulfonamide resistance genes. The pharmaceutical factories in the park mainly synthesize macrolide antibiotics. Because of the selective pressure, the absolute abundance of *ermB* in the wastewater was much higher than that in the other industrial wastewater. The total ARGs decreased by 1.16 log via traditional biological treatment process, and the total ARGs decreased by 2.46 log via the Fenton process. The results showed that the removal effects of deep treatment processes on ARGs were better than that of biological treatment in this wastewater treatment process. Highly abundant and movable ARGs already exist in the water body, and their release from WWTPs without effective treatment poses high risks to the environment.

Key words: antibiotic resistance genes(ARGs); real-time PCR; wastewater treatment plants(WWTPs); industrial park; Fenton oxidation

抗生素是 20 世纪最重要的医学发现之一, 对控制人类感染性疾病发挥了巨大的作用. 目前, 抗生素主要被用于人类医疗^[1]. 人类使用的抗生素大多不能被充分利用而直接排入环境中. 废水处理厂则是抗生素直接进入到水环境的重要途径^[2]. 长期接触抗生素而产生的选择性压力促使抗生素抗性基因(antibiotic resistance genes, ARGs)广泛分布^[3]. 即使是在低水平的抗生素环境下也可能导致 ARGs 的出现. 在河流^[4-6]、湖泊^[7,8]、土壤^[9]和废水处理厂(wastewater treatment plants, WWTPs)^[10]甚至人类影响较少的地区, 如永冻层沉积物^[11]中都找到

ARGs 的踪迹. ARGs 除了自身遗传外, 还可以从一种细菌到另一种细菌的基因水平转移获得, 移动基因元件在 ARGs 的水平转移过程中发挥着重大作用, 如质粒、整合子和转座子^[12]. ARGs 对人类公共卫生造成了越来越大的威胁.

在城市水循环系统中, 废水处理厂发挥着重要的作用. 它既是各种污水的汇集地, 又是污染地表

收稿日期: 2019-03-22; 修订日期: 2019-06-01

基金项目: 国家自然科学基金项目(51678003, 51678334)

作者简介: 姚鹏城(1993~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为环境微生物, E-mail: yaopc7283@163.com

* 通信作者, E-mail: chenlj@tsinghua.edu.cn

水的源头, 而地表水又是饮用水的重要来源^[2]. 人类使用的抗生素中, 约 50% ~ 90% 是通过尿液和粪便排出体外, 然后这些化合物被带到 WWTPs^[13]. 废水处理厂汇集了人类生活、生产中的大量废水^[14]. 其污水和污泥被认为是向环境中释放抗生素抗性基因的主要人为污染来源^[15].

通过废水处理厂处理单元, 废水中大部分 ARGs 绝对丰度降低, 其中 ARGs 降低的主要原因是细菌在二沉池中的沉降^[16]. 由于废水处理厂处理工艺的不同, ARGs 在 WWTPs 中可能受到不同的影响, 加拿大某废水处理厂通过 MBR 工艺, ARGs 丰度下降 1.77 ~ 2.69 个数量级^[17], 浙江某市政废水处理厂经过 A/O 工艺, ARGs 丰度降低 1 ~ 3 个数量级^[18], 安徽某废水处理厂经过 A²/O 工艺, ARGs 丰度降低 0.41 ~ 1.60 个数量级^[19]. 有研究发现, 在 Fe²⁺/H₂O₂ 摩尔比为 0.1, H₂O₂ 浓度为 0.01 mol·L⁻¹, pH 为 3.0, 反应时间为 2 h 的最优条件下, 目标 ARGs 基因下降 2.58 ~ 3.79 个数量级^[20].

本研究选取以生产抗生素为主导行业的某化工园区废水处理系统为研究对象, 该厂进水为工业废水, 主要为化工废水、印染废水和制药废水等. 沿污水处理工艺流程采集污水和污泥样品, 对其中 8

类共 26 种 ARGs 进行定性检测, 并对其中 11 种 ARGs、一类整合子及 16S rDNA 进行定量检测, 分析 ARGs 在该废水处理厂中的分布特征及其对 ARGs 的去除效果, 研究含有高抗生素、抗生素抗性基因的污水对废水处理厂处理水体中 ARGs 的影响. 本研究对了解高抗生素浓度废水对废水处理厂沿程 ARGs 分布的影响具有突出的典型意义.

1 材料与方法

1.1 园区污水简介

选取以生产抗生素为主导行业的某化工园区废水处理厂为研究对象, 其进水状况复杂, 医药、染料等难处理废水比重高. 园区内共有 42 家染料制造企业, 20 家医药制造企业, 8 家农药制造企业, 14 家纺织印染企业, 7 家日用化妆品制造企业, 还有 17 家其他化工企业, 这些企业的废水最终排入该废水处理厂. 园区医药制造企业以合成大环内酯类抗药菌为主, 其中克拉霉素、罗红霉素等产品在我国市场占优势地位, 医药企业、农药制造业、纺织印染业和染料制造业废水各占园区总废水的 16%、5%、15% 和 30%. 废水处理厂的进水水质如表 1 所示.

表 1 废水处理厂进水水质

Table 1 Water quality in the influents of the WWTPs

项目	氨氮/mg·L ⁻¹	总氮/mg·L ⁻¹	总磷/mg·L ⁻¹	COD/mg·L ⁻¹
进水 (G-Inf)	15.43	94.70	9.01	212
物化池水 (G-Ph)	18.76	42.97	7.44	238.80
二沉池出水 (G-Se)	1.74	38.76	1.61	263.20
芬顿出水 (G-Eff)	2.00	29.89	0.13	118

1.2 样品采集及预处理

样品于 2018 年 4 月采集, 该废水处理厂的工艺流程以及采样点见图 1, 设计处理水量 22.5 万 m³·d⁻¹, 目前实际处理水量 11.5 万 m³·d⁻¹, 废水处理厂的进水来自于园区的工业废水. 该厂主要处理单元包括调节池(酸碱调节)、物化处理单元(絮凝沉淀)、生物处理单元以及深度处理单元(芬顿工艺), 主要生物处理单元为厌氧池, 氧化沟(缺氧段, 好氧段), 水力停留时间为 11 h.

采样点包括: 进水 (G-Inf)、物化池水 (G-Ph)、二沉池出水 (G-Se)、芬顿出水 (G-Eff)、生物处理

单元不同区段的泥水混合物 (G-An、G-Ax 和 G-Ox), 以及二沉池剩余污泥 (G-WS). 每个采样点采集了 1 L 样品, 水样存放于预先清洗干净的无菌聚乙烯塑料瓶中, 泥样存放于预先清洗干净的铝盒中, 冷藏运输, 回到实验室后水样置于 4℃ 保存, 泥样置于 -20℃ 保存.

1.3 样品 DNA 提取

以 0.22 μm 混合纤维素酯滤膜 (Millipore, 德国) 过滤样品, 再使用 PowerSoil DNA Isolation Kit (Mo Bio, 美国) 试剂盒, 根据试剂盒方法对滤样提取 DNA. 使用质量浓度为 1% 的琼脂糖凝胶电泳和

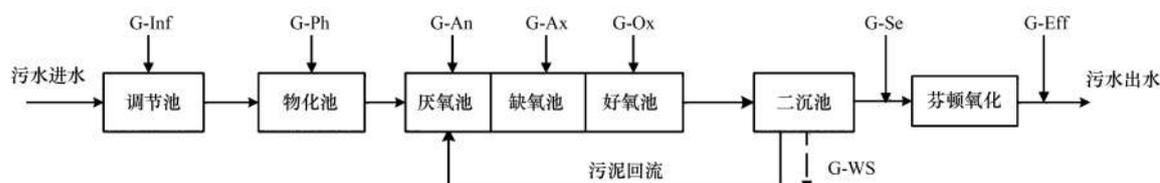


图 1 废水处理系统工艺流程和采样点示意

Fig. 1 Processes and sampling points at the wastewater treatment plant

NanoDrop 2000(Thermo Fisher, 美国)对所提 DNA 纯度和浓度进行检测。

1.4 普通 PCR 检测

本研究选择了 8 类共 26 种 ARGs 进行定性检测,具体包括 6 种四环素类 ARGs (*tetA*、*tetB*、*tetC*、*tetM*、*tetO* 和 *tetW*), 4 种磺胺类 ARGs (*sulI*、*sulII*、*sulIII* 和 *sulA*), 3 种甲氧苄啶 ARGs (*dfrA1*、*dfrA12* 和 *dfrA13*), 3 种 β -内酰胺类 ARGs (*ampC*、*blaSHV* 和 *blaPSE-1*), 2 种大环内酯类 ARGs (*ermA*、*ermB*), 3 种氯霉素类

ARGs (*catI*、*catII* 和 *floR*), 2 种氨基糖苷类 ARGs [*aac(3)-II a*、*aac(3)-IV*] 和 3 种万古霉素类 ARGs (*vanA*、*vanB* 和 *vanC*)。PCR 引物序列如表 2 所示,本实验所使用的引物均由生工生物工程(上海)股份有限公司合成。普通 PCR 采用 25 μ L 体系,包含 12.5 μ L Premix Ex TaqTM Hot Start Version (TaKaRa, 中国),各 1 μ L 的上、下游引物,1 μ L 的 DNA 模板及 9.5 μ L ddH₂O。PCR 产物置于 4 $^{\circ}$ C 保存,并使用质量浓度为 1% ~ 2% 的琼脂糖凝胶电泳进行检测。

表 2 PCR 引物序列

Table 2 Sequences of primers in PCR reactions

目标基因	正向序列	反向序列	片段长度/bp	文献
<i>tetA</i>	GCTACATCCTGCTTGCCTTC	CATAGATCGCCGTGAAGAGG	210	[21]
<i>tetB</i>	CCTTATCATGCCAGTCTTGC	ACTGCCGTTTTTTCGCC	774	[21]
<i>tetC</i>	TGCGTTGATGCAATTTCTATGC	GGAATGGTGCATGCAAGGAG	335	[21]
<i>tetM</i>	ACAGAAAGCTTATTATATAAC	TGGCGTGTCTATGATGTTTAC	171	[22]
<i>tetO</i>	GATGGCATAACGGCACAGACC	GCCCAACCTTTTGCTTCACTA	172	[6]
<i>tetW</i>	GAGAGCCTGTATATGCCAGC	GGGCGTATCCACAATGTTAAC	168	[6]
<i>sulI</i>	CACCGGAAACATCGCTGCA	AAGTTCGCCCGCAAGGCT	158	[22]
<i>sulII</i>	TCCGGTGGAGGCCGCTATCTGG	CGGAATGCCATCTGCCTTGAG	191	[6]
<i>sulIII</i>	TCCGTTACGCGAATTGGTGCAG	TTCGTTACGCCCTTACACCAGC	143	[22]
<i>sulA</i>	TCTTGAGCAAGCACTCCAGCAG	TCCAGCCTTAGCAACCACATGG	198	[22]
<i>dfrA1</i>	TTCAGGTGGTGGGAGATATAC	TTAGAGCGGAAGCTTTGGTAA	150	[21]
<i>dfrA12</i>	AAATTCGGGTGAGCAGAAG	CCCGTTGACGGAATGCTTAG	429	[23]
<i>dfrA13</i>	GCAGTCGCCCTAAAACAAAAG	GATACGTGTGACAGCGTTGA	294	[23]
<i>ampC</i>	TTCTATCAAMACTGGCARCC	CCYTTTTATGTACCCAYGA	550	[24]
<i>blaSHV</i>	TGCGCTGTGTATTATCTCCC	CGCAGATAAATCACCACAATG	857	[21]
<i>blaPSE-1</i>	TGCTTCGCAACTATGACTAC	AGCCTGTGTTGAGCTAGAT	438	[23]
<i>catI</i>	GGCATTTCAGTCAGTTG	CCGCCCTGCCACTCATC	585	[25]
<i>catII</i>	CCTGGAACCGCAGAGAAC	CCTGCTGAAACTTTGCCA	495	[25]
<i>floR</i>	TCGTCATCTACGGCCTTTTC	CTTGACTTGATCCAGAGGGC	188	[21]
<i>ermA</i>	AAGCGGTAAACCCCTCTGA	TTCGCAAATCCCTTCTCAAC	190	[25]
<i>ermB</i>	GATACCGTTTACGAAATTGG	GAATCGGACTTGTGCTGC	364	[25]
<i>aac(3)-II a</i>	CGGCCTGTGTAATCAGTTTC	AAAGCCCACGACACCTTCTC	436	[23]
<i>aac(3)-IV</i>	GTGTGCTGCTGGTCCACAGC	AGTTGACCCAGGGCTGTCCG	627	[21]
<i>vanA</i>	TCTGCAATAGAGATAGCCGC	GGAGTAGCTATCCCAGCATT	377	[24]
<i>vanB</i>	GTGACAAACCGGAGGCGAGGA	CCGCCATCCTCTGCAAAAAA	433	[24]
<i>vanC</i>	GAAAGACAACAGGAAGACCGC	ATCGCATCACAAAGCACCAATC	796	[24]
<i>IntI1</i>	CCTCCCGCAGGATGATC	TCCACGCATGCTCAGGC	280	[6]
16S rDNA	CCTACGGGAGGCAGCAG	ATTACCGCGCTGCTGG	178	[26]

1.5 定量 PCR(qPCR) 检测

根据普通 PCR 定性检测的结果,本研究对 *tetA*、*tetC*、*tetO*、*tetW*、*sulI*、*sulII*、*dfrA1*、*dfrA13*、*floR*、*ermB* 和 *blaPSE-1* 共 11 种 ARGs、一类整合子 *intI1* 及 16S rDNA 进行定量测定。采用 SYBR Green I 方法,使用实时荧光定量 PCR 仪(BioRad CFX96 Touch, 美国)对各目标基因进行定量测定。qPCR 采用 20 μ L 体系,包含 10.0 μ L SYBR Premix Ex TaqTM(TaKaRa, 中国),引物各 0.4 μ L, DNA 模板

1 μ L 及 ddH₂O 8.2 μ L。反应程序为:95 $^{\circ}$ C 预变性 1 ~ 2 min; 95 $^{\circ}$ C 变性 30 s, 退火 30 s, 72 $^{\circ}$ C 延伸 30 s, 共 40 个循环^[27]。溶解曲线程序为 55 ~ 95 $^{\circ}$ C, 每 0.5 $^{\circ}$ C 读数一次,期间停留 30 s。测定时,将标准质粒以 10 倍梯度稀释,再根据质粒浓度计算得到标准质粒的拷贝数,与通过实时荧光定量 PCR 测定得的 Ct 值对应做出标准曲线,标准质粒的构建方法参照张衍等^[28]的研究。各目标基因标准曲线的线性相关系数在 0.993 ~ 0.999 之间。每个样品均设

置 3 个平行样。

2 结果与讨论

2.1 废水处理系统进水中 ARGs 存在情况

表 3 显示了样品中 ARGs 的检出情况。

在进水水样中共检出 7 大类 16 种 ARGs, 并在

进水中检出 *intI1*, 进水中没有检出万古霉素类, 其中四环素类 ARGs 检出的种类最多, 共检出 5 种。四环素广泛应用于人类治疗、畜牧和水产养殖等领域, 在中国抗生素的使用中, 四环素的使用量已排名第一, 四环素难以被人 and 动物代谢和吸收^[24], 这可能导致废水处理厂进水中四环素类 ARGs 检出种类多。

表 3 废水处理厂进水中 ARGs 检出情况¹⁾

Table 3 Presence of ARGs in the influents of the WWTPs

样品	四环素类						甲氧苄啶类			磺胺类			
	<i>tetA</i> *	<i>tetB</i>	<i>tetC</i> *	<i>tetM</i>	<i>tetQ</i> *	<i>tetW</i> *	<i>dfrA1</i> *	<i>dfrA12</i>	<i>dfrA13</i> *	<i>sulI</i> *	<i>sulII</i> *	<i>sulIII</i>	<i>sulA</i>
检出情况	+	-	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	-
样品	β-内酰胺类			大环内酯类			氯霉素类		氨基糖苷类		万古霉素类		
	<i>ampC</i>	<i>blaSHV</i>	<i>BlaPSE-1</i> *	<i>ermA</i>	<i>ermB</i> *	<i>catI</i>	<i>catII</i>	<i>floR</i> *	<i>acc(3)-II a</i>	<i>acc(3)-IV</i>	<i>vanA</i>	<i>vanB</i>	<i>vanC</i>
检出情况	-	-	+	-	+	+	-	+	+	-	-	-	-

1) “+”表示检出;“-”表示未检出;“*”表示定量检测 ARGs

定量结果分析表明, 该废水处理厂进水中的绝对丰度最高的为磺胺类 ARGs, 进水中的检测结果如图 2 所示。

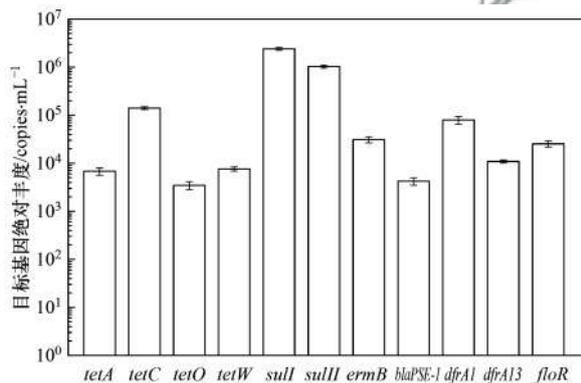


图 2 废水处理厂进水中的目标基因绝对丰度

Fig. 2 Absolute abundances of target genes in the WWTPs

进水中磺胺类的绝对丰度为 2.41×10^6 copies·mL⁻¹ (*sulI*) 和 1.03×10^6 copies·mL⁻¹ (*sulII*), 磺胺是应用最广泛的抗生素之一, 具有高溶解度和持久性的特点, 而磺胺耐药基因的持久性比抗生素本身要长, 因此, 磺胺类耐药基因可能是环境中占主导地位的 ARG^[29]。而后绝对丰度依次递减的是 *tetC*、*dfrA1*、*ermB*、*floR*、*dfrA13*、*tetW*、*tetA*、*BlaPSE-1* 和 *tetO*。图 2 显示 *tetA* 和 *tetC* 的绝对丰度高于 *tetO*。*tetA* 和 *tetC* 基因的抗性机制为编码外排泵蛋白, *tetO* 基因的抗性机制为编码核糖体保护蛋白^[27], 即在该园区的进水中编码外排泵蛋白抗性机制的四环素类 ARGs 的浓度远远高于编码核糖体保护蛋白抗性机制的四环素类 ARGs。

2.2 废水处理厂工艺沿程 ARGs 的分布特征

废水处理厂采集的样品中目标基因的绝对丰度分布情况如图 3 所示。通过废水处理厂各单元处理, 每个基因绝对丰度都发生了显著的变化。

园区废水经过格栅、絮凝沉淀、生物处理和二沉池沉淀各个单元后, 水体中各 ARGs 的绝对丰度发生了巨大变化, 污水在曝气池中进行生物降解并且微生物在曝气池中不断生长, ARGs 和 16S rRNA 基因在曝气池中大量增殖^[16], 曝气池水体中 ARGs 增殖了 0.16~2.34 个数量级, ARG 的去除与水体中微生物量的减少密切相关^[30], 这意味着较低的细菌生长速度有利于去除 ARG。有研究表明, 固液分离去除吸附在活性污泥上的 ARGs 是生物工艺去除 ARG 的主要机制^[31], 污泥浓度、水力停留时间、污泥沉降比和污泥泥龄均对固液分离效果有影响。Fenton 工艺通过过氧化氢和 Fe²⁺ 在溶液中产生羟基自由基来降解细菌的外膜, 增加通透性, 诱发内部反应, 最终使细胞失去活性^[32]。

从图 3 中可以看出, *floR*、*tetO*、*tetW* 和 *ermB* 这 4 种 ARGs, 经过絮凝沉淀、二沉池沉淀绝对丰度分别下降了 *floR* (0.30、0.42)、*tetO* (0.36、0.20)、*tetW* (0.42、0.29) 和 *ermB* (0.43、0.28) 个数量级, 经过絮凝沉淀去除的 ARGs 丰度与二沉池沉淀去除的 ARGs 丰度基本一致, 说明这 4 种 ARGs 不能被生物处理单元有效去除, 均是通过微生物的沉淀去除的; 而芬顿工艺对该 4 种 ARGs 的去除为 1.60、1.56、1.43 和 1.82 个数量级, 去除效果均优于絮凝沉淀和二沉池沉淀。*tetA*、*tetC*、*sulI*、*sulII*、*dfrA1* 和 *dfrA13* 这 6 种抗性基因通过混凝沉淀后, 绝对丰度分别下降了 0.25、0.16、0.17、0.30、0.27 和 0.15 个数量级, 这 6 种 ARGs 经过生物处理单元, 绝对丰度下降了 0.88、0.86、1.00、0.89、1.37 和 1.22 个数量级, 生物处理对该 6 种 ARGs 的去除效果显著地优于絮凝沉淀。经过芬顿工艺处理后, 水体中 ARGs 的绝对丰度分别下降了 0.78、1.74、1.34、1.21、1.67 和 1.01 个数量级, 这 6 种 ARGs 在该废水处理厂各工

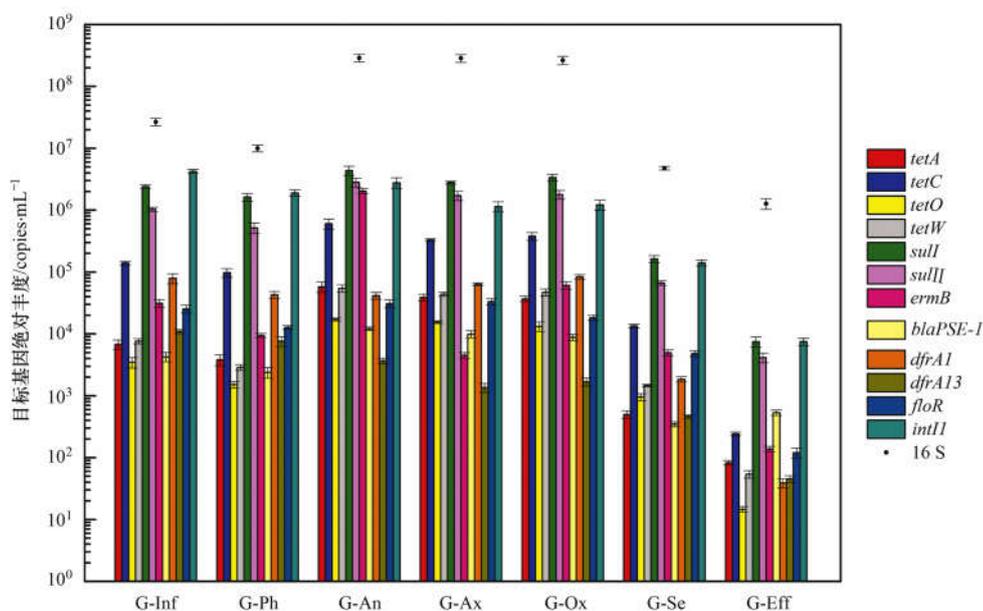


图3 废水处理厂中 ARGs 和 16S rDNA 的分布

Fig. 3 Abundance of ARGs and 16S rDNA in the WWTPs

艺段中,生物处理工艺与芬顿工艺对 ARGs 的去除效果显著优于絮凝沉淀.前4种 ARGs 与后6种 ARGs 在不同工艺中被去除的效果明显不同,可能是由于 ARGs 对抗生素发挥抗药性的机制不同导致. *floR*、*tetO*、*tetW* 和 *ermB* 主要是通过改变抗生素的作用位点遏制抗生素^[33]; *sulI*、*sulII*、*dfrA1* 和 *dfrA13* 通过使抗生素无法作用于目标酶来抑制抗生素^[34]; *tetA* 和 *tetC* 能改变细胞膜通透性使抗生素的胞内浓度降低^[35].该废水处理厂各工艺对 *blaPSE-1* 去除效果不佳,物化池的絮凝沉淀以及芬顿工艺均没有对该抗性基因起到很好地去除作用,经过絮凝沉淀和芬顿工艺,该 ARG 的绝对丰度分别下降了 0.25 和 -0.19 个数量级.

尽管该废水处理厂去除 ARGs 效果明显,但由于园区污水中 ARGs 的本底值高,废水处理厂最终出水中的 ARGs 的绝对丰度远远高于纳污环境中 ARGs 的本底丰度,出水直接排入纳污水体中,可能引起 ARGs 的传播,影响纳污水体中的生态环境.

相关性分析结果显示,废水处理厂水样中 16S rDNA 绝对丰度与四环素类抗性基因的绝对丰度显著正相关 [*tetA* ($P < 0.05, r = 0.967$)、*tetC* ($P < 0.05, r = 0.967$)、*tetO* ($P < 0.05, r = 0.967$) 和 *tetW* ($P < 0.05, r = 0.967$)].说明废水中四环素类抗性基因丰度变化受微生物浓度变化的影响^[36].而甲氧苄啶类抗性基因绝对丰度沿废水处理厂的工艺流程不断降低,与 16S rDNA 绝对丰度无显著相关 ($P = 0.52$),说明微生物对甲氧苄啶类抗性基因的影响不明显.甲氧苄啶类抗性基因存在于印染废水中,园区中有多家印染和染料企业.印染废水很大

程度上影响甲氧苄啶类抗性基因的分布和转移^[37].

有研究表明,一个细菌平均约有 4 个 16S rDNA 基因拷贝^[38].从单位细菌角度分析 ARGs 在废水处理厂沿程分布,结果如图 4 所示.相对丰度最高的 ARGs 为 *sulI*、*intI1*、*sulII*、*tetC* 和 *ermB* 依次递降,*intI1* 相对丰度与 *sulI* ($P < 0.05, r = 0.965$)、*sulII* ($P < 0.05, r = 0.988$) 存在显著正相关, I 类整合子可能参与磺胺类抗性基因的传播,整合子基因序列能够通过横向转移促进磺胺类抗性基因的传播^[39].废水处理厂进水中 ARGs 的相对丰度为 $1.30 \times 10^{-4} \sim 9.06 \times 10^{-2}$,进水中的微生物与曝气池中大量微生物结合,最终在二沉池沉降,出水中 ARGs 的相对丰度下降至 $1.10 \times 10^{-5} \sim 5.89 \times 10^{-4}$,而曝气池污泥中 ARGs 的绝对丰度为 $1.70 \times 10^4 \sim 4.38 \times 10^6$ copies·g⁻¹,远低于剩余污泥中 ARGs 的绝对丰度 ($1.59 \times 10^5 \sim 9.96 \times 10^7$ copies·g⁻¹),说明大量 ARGs 由剩余污泥的形式排入环境.

2.3 与其他污水处理系统的比较

表 4 所示, W1 废水处理厂的工艺为厌氧-缺氧-好氧 MBR,进水为生活污水; W2 废水处理厂的工艺为 A²/O,进水为生活污水; W3 废水处理厂的工艺为 CASS,进水为生活污水; W4 废水处理厂的工艺为缺氧-好氧-好氧-混凝砂滤,处理的是焦化废水.

以生产抗生素为主导行业的某化工园区废水处理厂(W5)在进水中检出 16 种 ARGs,甲氧苄啶类、氯霉素类和氨基糖苷类 ARGs 均在 W5 废水处理厂中被检出. W1 废水处理厂 [*tetC* (3.7×10^4 copies·mL⁻¹)、*sulII* (5.4×10^7 copies·mL⁻¹)], W2 废水处理厂 [*tetA* (2.82×10^4 copies·mL⁻¹)、*tetW*

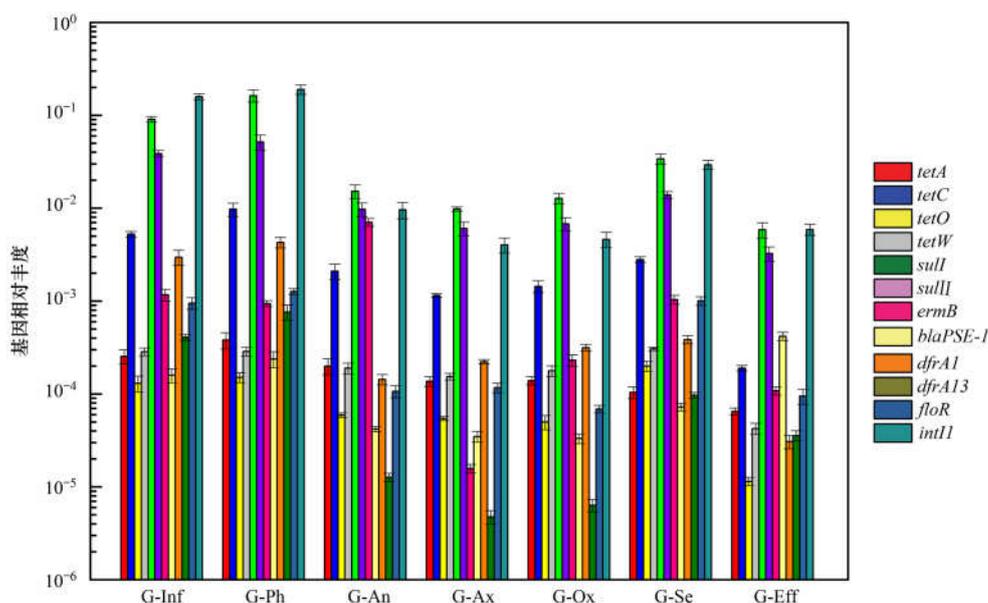


图4 废水处理厂中 ARGs 的相对丰度

Fig. 4 Relative abundance of ARGs in the WWTs

表4 各废水处理厂工艺及 ARGs 检出情况

Table 4 Processing of WWTs and detection of ARGs

废水处理厂	进水类型	处理规模/万m ³ ·d ⁻¹	工艺	检出 ARGs	文献
W1	生活污水	20	A ² /O-MBR	<i>tetC</i> , <i>sulII</i> , <i>ermB</i> , <i>blaPSE-1</i>	[14]
W2	生活污水	10	A ² /O	<i>tetA</i> , <i>tetO</i> , <i>tetW</i> , <i>sulI</i> , <i>sulII</i> , <i>bla_{CTX-M}</i>	[40]
W3	生活污水	7.5	CASS	<i>tetA</i> , <i>tetO</i> , <i>tetW</i> , <i>sulI</i> , <i>sulII</i> , <i>bla_{CTX-M}</i>	[23]
W4	工业废水	4	MBR	<i>tetO</i> , <i>tetW</i> , <i>sulI</i> , <i>sulII</i> , <i>ermB</i>	[31]
W5	园区废水	11.5	厌氧-氧化沟	<i>tetA</i> , <i>tetO</i> , <i>tetC</i> , <i>tetW</i> , <i>sulI</i> , <i>sulII</i> , <i>dfrA1</i> , <i>dfrA13</i> , <i>ermB</i> , <i>floR</i> , <i>blaPSE-1</i>	本研究

(2.63×10^6 copies·mL⁻¹), *sulI* (9.33×10^5 copies·mL⁻¹) 和 *sulII* (4.68×10^6 copies·mL⁻¹); W3 废水处理厂 [*tetA* (3.31×10^4 copies·mL⁻¹), *tetO* (4.57×10^4 copies·mL⁻¹), *sulI* (4.47×10^5 copies·mL⁻¹) 和 *sulII* (5.62×10^6 copies·mL⁻¹)] 和 W5 废水处理厂 [*tetA* (6.78×10^4 copies·mL⁻¹), *tetO* (3.47×10^4 copies·mL⁻¹), *sulI* (2.51×10^5 copies·mL⁻¹) 和 *sulII* (1.03×10^6 copies·mL⁻¹)] 进水中四环素类、磺胺类 ARGs 相似, 四环素类 ARGs 均在 10^4 copies·mL⁻¹ 丰度水平, 磺胺类 ARGs 在 10^6 copies·mL⁻¹ 丰度水平. 城镇污水处理系统汇集了居民生活、工业生产、农业生产、医疗卫生等各方面的废水, 有研究表明, 居民生活、农业生产、医疗卫生废水以及畜禽类动物粪便中四环素类、磺胺类 ARGs 检出丰度高^[41]. 本研究中, 园区的医药企业以生产大环内酯类抗生素为主, 四环素类和磺胺类抗生素为辅, 有研究表明, 含有高浓度四环素类、磺胺类抗生素的医疗废水与 *tet* 和 *sul* 类 ARGs 呈不相关甚至反相关关系^[42]. 因此 W1、W2 和 W3 废水中四环素类、磺胺类 ARGs 丰度与 W5 废水中四环素类、磺胺类 ARGs 相似.

W1 废水处理厂 [*blaPSE-1* (3.40×10^5 copies·mL⁻¹)]、W2 废水处理厂 [*bla_{CTX-M}* (9.77×10^3 copies·mL⁻¹)] 和 W3 废水处理厂 [*bla_{CTX-M}* (6.31×10^5 copies·mL⁻¹)] 进水中 β -内酰胺类抗性基因绝对丰度均高于 W5 废水处理厂 [*blaPSE-1* (4.24×10^3 copies·mL⁻¹)] 进水中 β -内酰胺类抗性基因, W5 废水处理厂进水中 β -内酰胺类抗性基因绝对丰度仅达到 W1 和 W3 废水处理厂的 1%. 由于青霉素、头孢菌素类抗生素均属于 β -内酰胺类抗生素^[43], 三代头孢、青霉素类和二代头孢分别位列抗菌药物使用强度 (AUD) 排名的前 3 位^[44], β -内酰胺类抗生素在居民生活以及医疗卫生废水中浓度较高^[45], 由于选择性压力, 进水为生活污水的 W1、W2 和 W3 废水处理厂中 β -内酰胺类 ARGs 绝对丰度高于 W5 废水处理厂和 W4 废水处理厂进水中 β -内酰胺类 ARGs 绝对丰度.

W5 废水处理厂进水中 *ermB* (3.12×10^4 copies·mL⁻¹) 的绝对丰度远远高于 W1 (2.14×10^2 copies·mL⁻¹) 和 W4 (4.14×10^3 copies·mL⁻¹) 废水处理厂中 *ermB* 的绝对丰度. 园区共有 20 家医药企业, W5 废水处理厂进水中包含园区制药废水中大

量大环内酯类抗生素, *ermB* 的绝对丰度较高可能受进水中占 16% 的医药废水影响, 长期在高浓度大环内酯类抗生素环境中, 废水中 ARGs 显著高于其他废水处理厂。

5 座废水处理厂进水中的 ARGs 经过生物处理后, 总 ARGs 丰度明显下降, 在出水中磺胺类 ARGs 的绝对丰度显著高于其他 ARGs 的绝对丰度。W1、W2 和 W3 废水处理厂进水经过生物处理, 四环素类 ARGs 丰度下降了 1.50 ~ 3.10 log, 由于进水中四环素类 ARGs 绝对丰度大, 最终 W1 废水处理厂 [*tetC* (1.58×10^3 copies·mL⁻¹)]、W2 废水处理厂 [*tetA* (2.80×10^2 copies·mL⁻¹)]、W3 废水处理厂 [*tetA* (2.18×10^2 copies·mL⁻¹)] 出水中四环素类 ARGs 绝对丰度高于 W4 废水处理厂以及 W5 废水处理厂 [*tetA* (8.2×10^1 copies·mL⁻¹)] 出水中四环素类 ARGs。经过生物处理后, 5 座污水处理厂出水中 β -内酰胺类 ARGs 绝对丰度 ($1.01 \times 10^2 \sim 6.16 \times 10^2$ copies·mL⁻¹) 基本一致。

3 结论

(1) 在以生产抗生素为主导行业的某化工园区废水处理厂进水中检出 7 大类 16 种 ARGs, 其中磺胺类抗性基因绝对丰度最高, 绝对丰度分别为 *suII* (2.41×10^6 copies·mL⁻¹), *suIII* (1.03×10^6 copies·mL⁻¹)。

(2) 芬顿氧化工艺对 ARGs 的去除效果明显优于絮凝沉淀和生物处理工艺对 ARGs 的去除效果, 含有高丰度 ARGs 的水体有必要增加芬顿工艺。

(3) 以生产大环内酯类抗生素为主导行业的某化工园区废水处理厂进水中四环素类、磺胺类、 β -内酰胺类 ARGs 绝对丰度明显低于 W1、W2 和 W3 废水处理厂, 大环内酯类 ARGs 绝对丰度明显高于其他废水处理厂。

致谢: 苏志国、李菲菲、颀亚玮、赵雅楠、郑宇涵等在采样方面提供帮助, 在此一并致谢。

参考文献:

- [1] 窦春玲, 郭雪萍, 尹大强. 污水处理厂抗生素抗性基因分布和去除研究进展[J]. 环境化学, 2013, 32(10): 1885-1893. Dou C L, Guo X P, Yin D Q. Review on distribution and removal of antibiotic resistance genes (ARGs) in wastewater treatment plants (WWTPs) [J]. Environmental Chemistry, 2013, 32(10): 1885-1893.
- [2] 张治国, 李斌绪, 李娜, 等. 污水深度处理工艺对抗生素抗性菌和抗性基因去除研究进展[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(10): 2091-2100. Zhang Z G, Li B X, Li N, et al. Removal of antibiotic-resistant bacteria (ARB) and antibiotic-resistance genes (ARGs) in the effluent of wastewater treatment plants (WWTPs) via advanced treatment processes [J]. Journal of Agro-Environment Science, 2018, 37(10): 2091-2100.
- [3] Chen H, Zhang M M. Effects of advanced treatment systems on the removal of antibiotic resistance genes in wastewater treatment plants from Hangzhou, China [J]. Environmental Science & Technology, 2013, 47(15): 8157-8163.
- [4] Ling Z H, Yang Y, Huang Y L, et al. A preliminary investigation on the occurrence and distribution of antibiotic resistance genes in the Beijiing river, South China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2013, 25(8): 1656-1661.
- [5] Brown P C, Borowska E, Schwartz T, et al. Impact of the particulate matter from wastewater discharge on the abundance of antibiotic resistance genes and facultative pathogenic bacteria in downstream river sediments [J]. Science of the Total Environment, 2019, 649: 1171-1178.
- [6] Luo Y, Mao D Q, Rysz M, et al. Trends in antibiotic resistance genes occurrence in the Haihe river, China [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(19): 7220-7225.
- [7] Di Cesare A, Eckert E M, Teruggi A, et al. Constitutive presence of antibiotic resistance genes within the bacterial community of a large subalpine lake [J]. Molecular Ecology, 2015, 24(15): 3888-3900.
- [8] Thevenon F, Adatte T, Wildi W, et al. Antibiotic resistant bacteria/genes dissemination in lacustrine sediments highly increased following cultural eutrophication of Lake Geneva (Switzerland) [J]. Chemosphere, 2012, 86(5): 468-476.
- [9] Czekalski N, Díez E G, Bürgmann H. Wastewater as a point source of antibiotic-resistance genes in the sediment of a freshwater lake [J]. The ISME Journal, 2014, 8(7): 1381-1390.
- [10] Le T H, Ng C, Tran N H, et al. Removal of antibiotic residues, antibiotic resistant bacteria and antibiotic resistance genes in municipal wastewater by membrane bioreactor systems [J]. Water Research, 2018, 145: 498-508.
- [11] Yang Y, Zhou R J, Chen B W, et al. Characterization of airborne antibiotic resistance genes from typical bioaerosol emission sources in the urban environment using metagenomic approach [J]. Chemosphere, 2018, 213: 463-471.
- [12] 苏志国, 张衍, 代天娇, 等. 环境中抗生素抗性基因与 I 型整合子的研究进展 [J]. 微生物学通报, 2018, 45(10): 2217-2233. Su Z G, Zhang Y, Dai T J, et al. Antibiotic resistance genes and class 1 integron in the environment: research progress [J]. Microbiology China, 2018, 45(10): 2217-2233.
- [13] Tran N H, Reinhard M, Gin K Y H. Occurrence and fate of emerging contaminants in municipal wastewater treatment plants from different geographical regions—a review [J]. Water Research, 2018, 133: 182-207.
- [14] Zhang Y, Li A L, Dai T J, et al. Cell-free DNA: a neglected source for antibiotic resistance genes spreading from WWTPs [J]. Environmental Science & Technology, 2018, 52(1): 248-257.
- [15] Czekalski N, Berthold T, Caucci S, et al. Increased levels of multiresistant bacteria and resistance genes after wastewater treatment and their dissemination into Lake Geneva, Switzerland [J]. Frontiers in Microbiology, 2012, 3: 106.
- [16] McConnell M M, Hansen L T, Jamieson R C, et al. Removal of antibiotic resistance genes in two tertiary level municipal wastewater treatment plants [J]. Science of the Total Environment, 2018, 643: 292-300.
- [17] Mao D Q, Yu S, Rysz M, et al. Prevalence and proliferation of antibiotic resistance genes in two municipal wastewater treatment plants [J]. Water Research, 2015, 85: 458-466.
- [18] Guo M T, Yuan Q B, Yang J. Distinguishing effects of ultraviolet

- exposure and chlorination on the horizontal transfer of antibiotic resistance genes in municipal wastewater [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(9): 5771-5778.
- [19] Chen H, Zhang M M. Occurrence and removal of antibiotic resistance genes in municipal wastewater and rural domestic sewage treatment systems in eastern China [J]. *Environment International*, 2013, **55**: 9-14.
- [20] Zhang Y Y, Zhuang Y, Geng J J, *et al.* Reduction of antibiotic resistance genes in municipal wastewater effluent by advanced oxidation processes [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **550**: 184-191.
- [21] Maynard C, Fairbrother J M, Bekal S, *et al.* Antimicrobial resistance genes in enterotoxigenic *Escherichia coli* O149:K91 isolates obtained over a 23-year period from pigs [J]. *Antimicrobial Agents and Chemotherapy*, 2003, **47**(10): 3214-3221.
- [22] Ji X L, Shen Q H, Liu F, *et al.* Antibiotic resistance gene abundances associated with antibiotics and heavy metals in animal manures and agricultural soils adjacent to feedlots in Shanghai, China [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2012, **235-236**: 178-185.
- [23] Chen S, Zhao S H, White D G, *et al.* Characterization of multiple-antimicrobial-resistant salmonella serovars isolated from retail meats [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2004, **70**(1): 1-7.
- [24] Schwartz T, Kohnen W, Jansen B, *et al.* Detection of antibiotic-resistant bacteria and their resistance genes in wastewater, surface water, and drinking water biofilms [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2003, **43**(3): 325-335.
- [25] Stoll C, Sidhu J P S, Tiehm A, *et al.* Prevalence of clinically relevant antibiotic resistance genes in surface water samples collected from Germany and Australia [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(17): 9716-9726.
- [26] Zhang Y, Chen L J, Sun R H, *et al.* Effect of wastewater disposal on the bacterial and archaeal community of sea sediment in an industrial area in China [J]. *FEMS Microbiology Ecology*, 2014, **88**(2): 320-332.
- [27] 李奥林, 陈吕军, 张衍, 等. 抗生素抗性基因在两级废水处理系统中的分布和去除 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(10): 4593-4600.
- Li A L, Chen L J, Zhang Y, *et al.* Distribution and removal of antibiotic resistance genes in two sequential wastewater treatment plants [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(10): 4593-4600.
- [28] 张衍, 陈吕军, 谢辉, 等. 两座污水处理系统中细胞态和游离态抗生素抗性基因的丰度特征 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(9): 3823-3830.
- Zhang Y, Chen L J, Xie H, *et al.* Abundance of cell-associated and cell-free antibiotic resistance genes in two wastewater treatment systems [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(9): 3823-3830.
- [29] Chen J Y, Su Z G, Dai T J, *et al.* Occurrence and distribution of antibiotic resistance genes in the sediments of the East China Sea bays [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2019, **81**(7): 156-167.
- [30] Zhang X M, Yue X P, Liu Z Q, *et al.* Impacts of sludge retention time on sludge characteristics and membrane fouling in a submerged anaerobic-oxic membrane bioreactor [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2015, **99**(11): 4893-4903.
- [31] Li B, Qiu Y, Li J, *et al.* Removal of antibiotic resistance genes in four full-scale membrane bioreactors [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **653**: 112-119.
- [32] Giannakis S, Le M T T, Manuel Entenza J, *et al.* Solar photo-Fenton disinfection of 11 antibiotic-resistant bacteria (ARB) and elimination of representative AR genes. Evidence that antibiotic resistance does not imply resistance to oxidative treatment [J]. *Water Research*, 2018, **143**: 334-345.
- [33] Lambert P A. Bacterial resistance to antibiotics; modified target sites [J]. *Advanced Drug Delivery Reviews*, 2005, **57**(10): 1471-1485.
- [34] Huovinen P, Sundström L, Swedberg G, *et al.* Trimethoprim and sulfonamide resistance [J]. *Antimicrobial Agents and Chemotherapy*, 1995, **39**(2): 279.
- [35] Kumar A, Schweizer H P. Bacterial resistance to antibiotics; active efflux and reduced uptake [J]. *Advanced Drug Delivery Reviews*, 2005, **57**(10): 1486-1513.
- [36] Guo X Y, Yan Z, Zhang Y, *et al.* Behavior of antibiotic resistance genes under extremely high-level antibiotic selection pressures in pharmaceutical wastewater treatment plants [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **612**: 119-128.
- [37] 焦雅楠. 印染废水与生活污水中抗生素抗性基因分布差异及机理研究 [D]. 杭州: 浙江大学, 2017. 10-15.
- Jiao Y N. The distribution characteristic and mechanism of antibiotic resistome between dyeing and domestic wastewater [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2017. 10-15.
- [38] 吴韵斐, 何义亮, 袁其懿, 等. 水源型水库抗生素抗性基因赋存特征研究 [J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(6): 1834-1841.
- Wu Y F, He Y L, Yuan Q Y, *et al.* Study on antibiotic resistance genes characteristics in a drinking water reservoir [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(6): 1834-1841.
- [39] Luo Y, Xu L, Rysz M, *et al.* Occurrence and transport of tetracycline, sulfonamide, quinolone, and macrolide antibiotics in the Haihe river basin, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(5): 1827-1833.
- [40] Wen Q X, Yang L, Duan R, *et al.* Monitoring and evaluation of antibiotic resistance genes in four municipal wastewater treatment plants in Harbin, Northeast China [J]. *Environmental Pollution*, 2016, **212**: 34-40.
- [41] 张宁, 李森, 刘翔. 土壤中抗生素抗性基因的分布及迁移转化 [J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(7): 2609-2617.
- Zhang N, Li M, Liu X. Distribution and transformation of antibiotic resistance genes in Soil [J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(7): 2609-2617.
- [42] Wang Q, Wang P L, Yang Q X. Occurrence and diversity of antibiotic resistance in untreated hospital wastewater [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **621**: 990-999.
- [43] 狄彩霞, 杨永青, 莎娜, 等. 历年生鲜乳中舒巴坦敏感 β -内酰胺酶类药物检验考核及注意事项分析 [J]. *畜牧与兽医*, 2019, **51**(1): 131-135.
- Di C X, Yang Y Q, Sha N, *et al.* Inspection and key points for testing of sulbactam sensitive β -lactamases in raw milk over the years [J]. *Animal Husbandry & Veterinary Medicine*, 2019, **51**(1): 131-135.
- [44] 杜德才, 周书明, 沈爱宗, 等. 医院抗菌药物使用强度分析 [J]. *中华医院感染学杂志*, 2010, **20**(6): 848-851.
- Du D C, Zhou S M, Shen A Z, *et al.* Antibacterial use density in a hospital [J]. *Chinese Journal of Nosocomiology*, 2010, **20**(6): 848-851.
- [45] 张佳奇. 湘江流域 β 内酰胺抗性基因污染特征与影响因素研究 [D]. 天津: 天津大学, 2015.
- Zhang J Q. Research on pollution characteristics and impact factors on β -lactam ARGs in Xiangjiang river basin [D]. Tianjin: Tianjin University, 2015.

CONTENTS

Characteristics of Aerosol Vertical Distribution over the Yangtze River Delta Region of China in 2018	SHEN Ji, CAO Nian-wen (4743)
Characteristics of Haze Pollution Episodes During Autumn and Winter in 2018 in Shijiazhuang	SU Wen-kang, BAO Xiao-lei, NI Shuang-ying, <i>et al.</i> (4755)
Spatial Temporal Characteristics and Cluster Analysis of Chemical Components for Ambient PM _{2.5} in Wuhan	ZHANG Hui-tao, TIAN Ying-ze, LIU Bao-shuang, <i>et al.</i> (4764)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Ecological and Health Risk Assessment of Atmospheric PM _{2.5} in a Living Area of Zhengzhou City	HE Rui-dong, ZHANG Yi-shun, CHEN Yong-yang, <i>et al.</i> (4774)
Distribution Characteristics and Sources of Metal Elements in Rainwater in Xiamen	WANG Shan-shan, CHENG Yi-feng, YAN Jin-pei, <i>et al.</i> (4783)
First Long-Term Study of Atmospheric New Particle Formation in the Suburb of Shanghai from 2015 to 2017	HUO Jun-tao, WANG Xin-ning, DUAN Yu-sen, <i>et al.</i> (4791)
Characteristics, Transportation, Pathways, and Potential Sources of Air Pollution During Autumn and Winter in Taiyuan	YAN Shi-ming, WANG Yan, GUO Wei, <i>et al.</i> (4801)
Spatial and Temporal Characteristics of Air Quality and Cause Analysis of Heavy Pollution in Northeast China	CHEN Wei-wei, LIU Yang, WU Xue-wei, <i>et al.</i> (4810)
Spatiotemporal Evolution and Driving Mechanism of Aerosol Optical Depth in the Ebinur Lake Basin	CHEN Xiang-yue, DING Jian-li, WANG Jing-zhe, <i>et al.</i> (4824)
Concentration Levels and Impact Factors of Benzene Series in Chinese Residential Building	HOU Bei-bei, YIN Yi-hui, PEI Jing-jing, <i>et al.</i> (4833)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Aromatic Compounds in Shijiazhuang	YANG Yang, LI Xing-ru, LIU Shui-qiao, <i>et al.</i> (4841)
Emission Characteristics Analysis and Health Risk Assessment of Unorganized VOCs in the Carbon Industry, Zhengzhou	ZHANG Yi-shun, WANG Jia, HAN Shi-jie, <i>et al.</i> (4847)
Hazardous Volatile Organic Compound Emission Inventory Study and Its Application in a Typical Chemical Industry in the Yangtze River Delta	LU Jun, HUANG Yi-wei, HUANG Cheng (4856)
Establishment and Characteristics of an Artificial Ammonia Emissions Inventory in Jiangsu Province from 2013 to 2017	HOU Xin-hong, YU Xing-na, SHEN Li, <i>et al.</i> (4862)
Occurrence Characteristics and Health Risks of PAHs on the Surface of Buildings and Devices in the Coking Plant	ZHAO Yi-shu, LIAO Xiao-yong, LI You, <i>et al.</i> (4870)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Androgens, Glucocorticoids, and Progesterone in the Liusha Bay, South China Sea	YANG Lei, ZHANG Jin-na, XU Min, <i>et al.</i> (4879)
Dynamic Changes in Hydrochemical Characteristics and Influencing Factors in the Karst Watershed Flood Process	YUAN Ya-qiong, SUN Ping-an, SU Zhao, <i>et al.</i> (4889)
Sources, Distribution, and Fluxes of Major and Trace Elements in the Yangtze River	WU Wen-tao, RAN Xiang-bin, LI Jing-xi, <i>et al.</i> (4900)
Contaminant Characteristics and Ecological Risk Assessments of Heavy Metals from River Networks in the Western Area of the Wangyu River	XU Chen, WANG Pei-fang, CHEN Juan, <i>et al.</i> (4914)
Influence of Rainfall Intensity on the Nutrient Loading from an Inflowing River in the Plain River Network of the Taihu Catchment	CHEN Jie, ZHU Guang-wei, XU Hai, <i>et al.</i> (4924)
Distribution and Pollution Assessment of Nutrients and Heavy Metals in Surface Sediments from Shibalianwei Wetland in Hefei, Anhui Province, China	CHEN Shan, XU Fan, XIE San-tao, <i>et al.</i> (4932)
Spatial Distribution Characteristics of Chlorophyll-a and Nutrient Salts in Tributaries of Different River Sections in the Three Gorges Reservoir Area During the Flood Season	YANG Fan, YANG Zheng-jian, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (4944)
Endogenous Release of Nitrogen and Phosphorus in the Danjiangkou Reservoir	WANG Zhi-qi, LIU Xin-xing, YAO Zhi-hong, <i>et al.</i> (4953)
Correlation Between Water Purification Capacity and Bacterial Community Composition of Different Submerged Macrophytes	LI Lin, YUE Chun-lei, ZHANG Hua, <i>et al.</i> (4962)
Size-dependent Effects of Zinc Oxide Nanoparticles on Performance and Microbial Community Structure of a Constructed Wetland	WANG Sen, REN Ling, LIU Lin-lin, <i>et al.</i> (4971)
Removal of Nitrogen and Phosphorus from Water by Biomass Carbon of Aquatic Plants	LIU Shu-lei, PENG Hui-jun, YANG Jia-yi, <i>et al.</i> (4980)
Preparation of MgO Modified Lotus Shell Biochar and Its Phosphorus Adsorption Characteristics	WANG Sheng-hua, ZHU Dan-chen, SHAO Jing-ai, <i>et al.</i> (4987)
Effects of Microplastics on Membrane Fouling During a Shortened Ultrafiltration Membrane Process	WANG Bo-dong, XUE Wen-jing, LÜ Yong-tao, <i>et al.</i> (4996)
Preparation and Comparison of Arsenic Removal Granular Adsorbent Based on Iron-Manganese Sludge	ZENG Hui-ping, YU Ya-ping, LÜ Sai-sai, <i>et al.</i> (5002)
Catalytic Degradation of Rhodamine B by FeOCl Activated Hydrogen Peroxide	ZHANG Shao-peng, CHEN Yu, BAI Shu-qin, <i>et al.</i> (5009)
Treatment Effect and Ecological Risk Assessment of Typical Antibiotics in Wastewater from Large-scale Dairy Farms in Tianjin	CHEN Qian, ZHAO Run, MOU Mei-ru, <i>et al.</i> (5015)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Wastewater Treatment Plants	YAO Peng-cheng, CHEN Jia-yu, ZHANG Yong-ming, <i>et al.</i> (5024)
Start-up and Stable Operation of CANON Coupled with Denitrifying Phosphorus Removal	YIN Wen, CHEN Ya, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (5032)
Control of Sludge Bulking Caused by Unknown Reason Through FeCl ₃ Coupled with Biochemical Methods	WEI Dong-yang, XIAO Cai-lin, ZHOU Wen, <i>et al.</i> (5040)
Effects of Solid Retention Time on the Phosphorus Removal and Nitrosation Granules System	LI Dong, LIU Bo, WANG Wen-qi, <i>et al.</i> (5048)
Start-up of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification Process and Changes in Microbial Community Characteristics	SONG Zhuang-zhuang, LÜ Shuang, LIU Zhe, <i>et al.</i> (5057)
Influence of Substrate Exposure Level on ANAMMOX Microbial Activity and Biomass	CHEN Fang-min, GAO Jia-qi, HUANG Yong, <i>et al.</i> (5066)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Heavy Metals in Farmland Soils in the Taige Canal Valley	LI Wei-di, CUI Yun-xia, ZENG Cheng-cheng, <i>et al.</i> (5073)
Method of Dividing the Value of Soil Heavy Metal Pollution Risk Screening: Using Cd as an Example	WANG Rui, ZHANG Feng-lei, XU Shu-shu, <i>et al.</i> (5082)
Mineral Characteristics of Arsenic in the Active Area of the Banbishan Gold Mine and Its Effect on Arsenic Accumulation in Farmland Soil	WEN Qi-qian, YAN Xiu-lan, SHEN Jun-feng, <i>et al.</i> (5090)
Remediation of Cadmium Contaminated Paddy Fields Using Soil Conditioners	ZHOU Li-jun, WU Lin, LIN Xiao-bing, <i>et al.</i> (5098)
Inhibition and Remediation of Methylmercury Contaminated Soil by Use of Modified Montmorillonite	HAN Yi-xin, HE Tian-rong, WANG Zu-bo (5107)
Cerium-manganese Modified Biochar Immobilizes Arsenic in Farmland Soils	LIANG Ting, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (5114)
Improving Bioremediation of Crude Oil-contaminated Soil by Mild Pre-oxidation	XU Jin-lan, WANG Hui-fang, WANG Rong, <i>et al.</i> (5124)
Community Structure of Heavy Metal Immobilized Bacteria in the Lettuce (<i>Lactuca sativa</i> L.) Rhizosphere in Soil Polluted by Heavy Metals and Its Effects on Reducing Heavy Metal Accumulation in Lettuce	WANG Tie-jun, SU Nan-nan, LEI Peng, <i>et al.</i> (5133)
Impact of Dicyandiamide (DCD) and 3,4-Dimethylpyrazole Phosphate (DMPP) on Ammonia-oxidizing Bacteria and Archaea in a Vegetable Planting Soil	GUO Jun-li, LIU Yi, WEI Wen-xue, <i>et al.</i> (5142)
Effect of Different Reclaimed Water Irrigation Methods on Bacterial Community Diversity and Pathogen Abundance in the Soil-Pepper Ecosystem	CUI Bing-jian, GAO Feng, HU Chao, <i>et al.</i> (5151)
Characteristics of CO ₂ and N ₂ O Emissions Under Two Land Use Types in the Loess Plateau of China	HAN Jia-le, HAO Shan, LIU Zhen-jie, <i>et al.</i> (5164)
Effects of Biochar on N ₂ O Emission from Four Typical Soils in the North China Plain	ZHANG Xiu-ling, SUN Yun, ZHANG Shui-qing, <i>et al.</i> (5173)
Effects of Optimizing Fertilization on N ₂ O and CH ₄ Emissions in a Paddy-Cowpea Rotation System in the Tropical Region of China	HU Yu-lin, TANG Shui-rong, TAO Kai, <i>et al.</i> (5182)