

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



2020

Vol.41 No.3
第41卷 第3期

目次

长江经济带 PM _{2.5} 分布格局演变及其影响因素	黄小刚, 赵景波, 曹军骥, 辛未冬 (1013)
中国东海近海岛屿冬季与夏季气溶胶中水溶性离子化学组分特征及来源解析	方言, 曹芳, 范美益, 章炎麟 (1025)
阳泉市秋冬季 PM _{2.5} 化学组分及来源分析	王成, 闫雨龙, 谢凯, 李如梅, 徐扬, 彭林 (1036)
泰安市夏季 PM _{2.5} 中正构烷烃和糖类化合物的化学组成及其来源	衣雅男, 侯战方, 杨千才, 刘晓迪, 李政, 孟静静, 燕丽, 魏本杰, 伏梦璇 (1045)
黄山秋季大气颗粒物理化特性	卞逸舒, 银燕, 王红磊, 陈魁 (1056)
北碚区气溶胶光学厚度特征及其与颗粒物浓度的相关性	曾唯, 郝庆菊, 赵仲婧, 熊维霞, 陈俊江, 辛金元, 江长胜 (1067)
淄博市重点工业行业 VOCs 排放特征	王雨燕, 王秀艳, 杜森, 白瑾丰, 杨文 (1078)
鄂州市大气 VOCs 污染特征及来源解析	付昱萌, 杨红刚, 卢民瑜, 曾颜, 邹迎新 (1085)
浙江省汽车整车制造业挥发性有机物产排污系数	滕富华, 杨忠平, 董事壁, 付超, 缪孝平, 顾震宇 (1093)
基于工艺过程的金属包装业 VOCs 污染特征	王迪, 聂磊, 赵文娟, 张玮琦, 党鸿雁, 邵霞, 张新民 (1099)
薪柴和经济作物秸秆燃烧 VOCs 排放特征	牛真真, 孔少飞, 严沁, 郑淑睿, 郑煌, 曾昕, 姚立全, 吴剑, 张颖, 吴方琪, 程溢, 覃思, 刘玺, 燕莹莹, 祁士华 (1107)
精细化工园区工艺过程 VOCs 产生量核算方法	叶茵韵, 田金平, 陈吕军 (1116)
2017 年春季常州 HONO 观测及对大气氧化能力影响的评估	施晓雯, 戈逸峰, 张玉婵, 马嫣, 郑军 (1123)
中国工程机械使用特征及其尾气排放趋势	庞凯莉, 张凯山, 马帅, 王帆 (1132)
京津冀机场群飞机 LTO 大气污染物排放清单	韩博, 孔魏凯, 姚婷玮, 王愚 (1143)
在用汽油和柴油车排放颗粒物的粒径分布特征实测	王瑞宁, 胡馨遥, 任洪娟, 马冬, 徐冲, 赵玺乾, 王孟昊, 徐为标, 安静宇, 黄成 (1151)
参数选取对畜禽养殖业大气氨排放的影响: 以长三角地区为例	张琪, 黄凌, 殷司徒, 王倩, 李红丽, 王杨君, 王军, 陈勇航, 李莉 (1158)
乌海市煤矿区及周边春季降尘污染特征及来源分析	吴红璇, 史常青, 张艳, 赵廷宁, 胡平, 刘韵, 陈童 (1167)
长江中下游地区丰水期河、湖水氢氧同位素组成特征	李静, 吴华武, 周永强, 赵中华, 王晓龙, 蔡永久, 贺斌, 陈雯, 孙伟 (1176)
伊洛河流域河水来源及水化学组成控制因素	刘松韬, 张东, 李玉红, 杨锦媚, 邹霜, 王永涛, 黄兴宇, 张忠义, 杨伟, 贾保军 (1184)
城镇化进程中新疆塔城盆地浅层地下水化学演变特征及成因	吕晓立, 刘景涛, 韩占涛, 周冰, 朱亮, 陈坚 (1197)
基于 Sentinel-2 MSI 影像的河湖系统水体悬浮物空间分异遥感监测: 以安徽省升金湖与连接长江段为例	王行行, 王杰, 崔玉环 (1207)
黄土高原高浑浊水体 CDOM 光学特性及影响因素	梁晓文, 郇田田, 王涛 (1217)
人工强制混合充氧及诱导自然混合对水源水库水质改善效果分析	温成成, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 林子深, 李衍庆, 杨尚业, 董亚军 (1227)
滤速与水质对低温含铁锰氨地下水中氨去除的影响	张杰, 梅宁, 刘孟浩, 叶雪松, 李冬 (1236)
太湖梅梁湾浮游动物群落结构长期变化特征 (1997~2017 年)	杨佳, 周健, 秦伯强, 权秋梅, 黎云祥 (1246)
汤旺河水生硅藻群落及其与环境因子的关系	薛浩, 王业耀, 孟凡生, 郑丙辉, 张铃松, 程佩璋 (1256)
盐龙湖水源生态净化系统 FG 和 MBFG 演替特征及水质响应性评价	王莲, 李璇, 马卫星, 邹立航, 赵强强, 丁成, 刘向阳 (1265)
三峡库区石盘丘小流域氮磷输出形态及流失通量	陈仕奇, 龙翼, 严冬春, 高明, 黎嘉成, 徐国鑫, 黄容 (1276)
化肥减量配施生物炭对紫色土坡耕地磷流失的影响	罗东海, 王子芳, 龙翼, 严冬春, 徐国鑫, 李娇, 高明 (1286)
利用铁改性方解石作为活性覆盖材料控制水体内源磷的释放	柏晓云, 林建伟, 詹艳慧, 常明玥, 辛慧敏, 吴俊麟 (1296)
茶渣生物炭制备及其对溶液中四环素的去除特性	范世锁, 刘文浦, 王锦涛, 胡红梅, 杨伊宁, 周娜 (1308)
3 种典型多孔高温改性固废材料对磺胺二甲嘧啶的吸附特性	王静, 朱晓丽, 韩自玉, 胡健, 秦之瑞, 焦文涛 (1319)
新制和老化微塑料对多溴联苯醚的吸附	徐鹏程, 郭健, 马东, 葛蔚, 周震峰, 柴超 (1329)
三峡库区支流汝溪河沉积物重金属空间分布及生态风险	方志青, 王永敏, 王训, 谢德体, 王定勇 (1338)
固城湖及出入湖河道表层水体、沉积物和鱼体中有机氯农药分布及风险评估	阚可聪, 谷孝鸿, 李红敏, 陈辉辉, 毛志刚, 曾庆飞 (1346)
衡水湖沉积物中典型持久性有机污染物污染特征与风险评估	张嘉雯, 魏健, 吕一凡, 段亮, 刘利, 王俭, 孟淑锦 (1357)
北京某污水处理厂及接纳水体中典型有机磷酸酯的污染特征和风险评估	张振飞, 吕佳佩, 裴莹莹, 王春英, 郭昌胜, 徐建 (1368)
基于短程反硝化厌氧氨氧化的低碳源城市污水深度脱氮特性	马斌, 许鑫鑫, 高茂鸿, 委燕, 彭永臻 (1377)
PD-DPR 系统处理城市污水与高硝酸盐废水实现稳定亚硝酸盐积累和磷去除的特性	王秋颖, 于德爽, 赵骥, 王晓霞, 袁梦飞, 巩秀珍, 楚光玉, 何彤晖 (1384)
中试 MBBR 反应器启动 CANON 工艺及其短程硝化	付昆明, 杨宗珏, 廖敏辉, 靳怡然, 张晓航 (1393)
抗生素对耐药型反硝化菌反硝化过程及微生物群落结构的影响	代莎, 李彭, 彭五庆, 刘玉学, 王拯, 何义亮, 亮根祥, 胡双庆 (1401)
多次进水-曝气的好氧颗粒污泥系统实验	张杰, 王玉颖, 李冬, 刘志成, 曹思雨 (1409)
剩余污泥碱性发酵产物对硝化过程及性能的影响	邱圣杰, 刘瑾瑾, 李夕耀, 彭永臻 (1418)
硫酸盐对污泥高级厌氧消化过程中甲基汞迁移转化的影响	何湘琳, 刘吉宝, 阴永光, 谭颖锋, 朱爱玲, 左壮, 高山, 解立平, 魏源送 (1425)
工业城市农田土壤重金属时空变异及来源解析	李艳玲, 卢一富, 陈卫平, 杨阳, 蔡斌 (1432)
耕地土壤重金属健康风险空间分布特征	姬超, 侯大伟, 李发志, 包广静, 邓爱萍, 沈红军, 孙华 (1440)
黄河三角洲盐碱土根际微环境的微生物多样性及理化性质分析	赵娇, 谢慧君, 张建 (1449)
不同土地利用方式对土壤细菌分子生态网络的影响	李冰, 李玉双, 魏建兵, 宋雪英, 史荣久, 侯永侠, 刘△瑶 (1456)
红壤丘陵区土壤有机碳组分对土地利用方式的响应特征	章晓芳, 郑生猛, 夏银行, 胡亚军, 苏以荣, 陈香碧 (1466)
有机肥与无机肥配施对潮土 N ₂ O 排放的影响	孙赫阳, 万忠梅, 刘德燕, 廖霞, 丁维新 (1474)
冬小麦吸收重金属特征及与影响因素的定量关系	王怡雯, 芮玉奎, 李中阳, 苏德纯 (1482)
钙镁磷肥对石灰、海泡石组配修复镉污染稻田土壤的影响	鄢德梅, 郭朝晖, 黄凤莲, 冉洪珍, 张鹏 (1491)
桉树遗态磷灰石材料对铅污染土壤的钝化修复效应	方雅莉, 朱宗强, 赵宁宁, 朱义年, 李超, 张立浩 (1498)
外源亚精胺对 As ⁵⁺ 胁迫下水稻种子萌发和 As 吸收积累的影响	刘书锦, 黄益宗, 保琼莉, 黄永春, 张盛楠, 韩廿, 刘玉荣, 胡红青 (1505)
《环境科学》征订启事 (1024) 《环境科学》征稿简则 (1092) 信息 (1226, 1264, 1417)	

抗生素对耐药型反硝化菌反硝化过程及微生物群落结构的影响

代莎^{1,2}, 李彭^{2*}, 彭五庆^{2,3}, 刘玉学^{1,2}, 王拯¹, 何义亮², 沈根祥⁴, 胡双庆⁴

(1. 兰州交通大学环境与市政工程学院, 兰州 730070; 2. 上海交通大学环境科学与工程学院, 上海 200240; 3. 安徽师范大学环境科学与工程学院, 芜湖 241000; 4. 上海市环境科学研究院, 上海 200233)

摘要: 城市污水中部分抗生素通过常规工艺处理的去除率较低, 导致自然水环境中微生物耐药性增强. 为降低抗生素对城镇受纳水体的生态危害, 提出了利用耐药型反硝化菌的共代谢作用降解微量抗生素的风险控制技术. 采用乙酸钠为电子供体, 并保持氧氟沙星 (OFLX) 浓度为 $1 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 逐步提高抗生素降解菌的优势生长, 分别培养获得仅有乙酸钠和氮元素存在条件下的反硝化菌群 (DnB_1)、微量抗生素与乙酸钠、氮元素同时存在条件的反硝化菌群 (DnB_2). 考察了抗生素通过反硝化共代谢的降解效果, 抗生素对耐药型反硝化菌脱氮过程的影响, 以及微生物群落结构的变化情况. 结果表明 DnB_2 相比于 DnB_1 , 对 OFLX 具有明显降解作用, DnB_1 和 DnB_2 对 OFLX 的降解量分别为 $0.31 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $16.14 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$. OFLX 浓度的提高, 会在短期内抑制 DnB_1 反硝化活性. DnB_2 反硝化过程受 OFLX 影响较小. 同时, 使用 Illumina MiSeq 平台进行高通量测序, 基于测序结果聚类形成的 OTUs 信息, 对比分析各样品的多样性, 结果表明, DnB_1 的微生物群落相对丰度和微生物群落多样性均要高于 DnB_2 .

关键词: 反硝化; 氧氟沙星; 降解; 吸附; 群落多样性

中图分类号: X172; X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)03-1401-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201909175

Influence of Antibiotics on the Denitrification Process of Antibiotic Resistant Denitrifying Bacteria and the Analysis of Microbial Community Structure

DAI Sha^{1,2}, LI Peng^{2*}, PENG Wu-qing^{2,3}, LIU Yu-xue^{1,2}, WANG Zheng¹, HE Yi-liang², SHEN Gen-xiang⁴, HU Shuang-qing⁴

(1. School of Environmental and Municipal Engineering, Lanzhou Jiaotong University, Lanzhou 730070, China; 2. School of Environmental Science and Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China; 3. School of Environmental Science and Engineering, Anhui Normal University, Wuhu 241000, China; 4. Shanghai Academy of Environmental Sciences, Shanghai 200233, China)

Abstract: The removal rate of some antibiotics in urban sewage by conventional treatment is low, which leads to an increase in antibiotic resistant bacteria in natural water environments. To reduce the ecological harm of antibiotics to the water in towns, a risk control technique for degradation of microantibiotics by the co-metabolism of antibiotic resistant denitrifying bacteria was proposed. Using sodium acetate as an electron donor and maintaining the concentration of ofloxacin (OFLX) at $1 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$, gradually increasing the dominant growth of antibiotic degradation bacteria, denitrifying bacteria (DnB_1), trace antibiotics and sodium acetate, and denitrifying bacteria (DnB_2) with the presence of sodium acetate and nitrogen elements were cultured. The degradation effect of antibiotics through denitrification and the effects of antibiotics on denitrification of resistant denitrifying bacteria and the changes to the microbial community were investigated. The results showed that DnB_2 had a significant degradation effect on OFLX compared to DnB_1 . The degradation to OFLX by DnB_1 and DnB_2 was $0.31 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ and $16.14 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$, respectively. Increased OFLX concentration inhibited DnB_1 denitrification activity in the short term. The denitrification process of DnB_2 was less affected by OFLX. At the same time, high-throughput sequencing using the Illumina MiSeq platform was used. Based on the operational taxonomic unit information formed by the clustering of sequencing results, the diversity of each sample was compared and analyzed. The research results show that the relative abundance and diversity of the microbial community of DnB_1 are higher than those of DnB_2 .

Key words: denitrification; ofloxacin; degradation; adsorption; microbial community diversity

抗生素作为一种药物活性物质 (PhACs) 被广泛、大量地应用于人类医疗、畜牧和水产养殖行业中^[1]. 有研究发现抗生素药物仅有一部分被吸收代谢, 约 40%~90% 以原始药物或初级代谢产物的形式排出^[2]. 虽然抗生素的半衰期不长, 但由于不断地进入环境, 导致抗生素在自然环境中呈现伪持久性的特征^[3]. 自然环境中持续存在的抗生素具有通

过饮用水或食物链进入人体的潜在风险^[4]. 一些常用的抗生素如氟喹诺酮类、磺胺类和大环内酯类在

收稿日期: 2019-09-18; 修订日期: 2019-10-29

基金项目: 国家自然科学基金项目 (5170080163); 国家水体污染控制与治理科技重大专项 (2017ZX07207002)

作者简介: 代莎 (1994~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为污水生物脱氮相关技术, E-mail: 1057677981@qq.com

* 通信作者, E-mail: lipeng2016@sjtu.edu.cn

城市污水常规处理工艺中的去除效果较差,去除率普遍低于 40%. 同时有研究表明,以抗生素为唯一的碳源进行生物降解测试,抗生素表现出难降解的特性,但外加其它碳源作为共代谢基质时,可以显著提高抗生素的降解特性^[5]. 大部分关于抗生素降解的研究主要集中于好氧条件,也有许多研究关于抗生素在厌氧条件下的降解规律^[5,6]. 相比于好氧降解和厌氧降解的研究,对抗生素在缺氧反硝化条件下的研究更少. Liu 等^[7]研究环丙沙星(氟喹诺酮类)在厌氧和缺氧条件下的降解和生物抑制特征,结果发现,在环丙沙星浓度为 $80 \sim 100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时,厌氧和硫酸盐还原过程均受到抑制,但反硝化过程表现出较好的降解效果. 有研究表明,不同电子供体培养的反硝化菌群中优势群落物种的组成表现出显著的差异^[8~11]. Kümmerer^[12]的研究发现,尽管微生物降解抗生素较难,但是从微生物中分离出来的酶能够降解抗生素,而且部分抗生素在与乙酸钠共基质的条件下才可以被生物部分降解. 城市污水中抗生素浓度低,难以发挥对抗生素降解菌的选择性作用. 因此,需要研究利用非抗生素的物质作为反硝化电子供体,调控抗生素降解菌的优势生长.

本研究基于上述分析,拟选取在城市污水处理厂常规工艺下去除率较低的氧氟沙星(ofloxacin, OFLX)代表氟喹诺酮类抗生素作为研究对象,利用特定的电子供体(乙酸钠)定向调控反硝化菌群的演化,重点分析 OFLX 通过反硝化共代谢的降解效果, OFLX 对耐药型反硝化菌脱氮过程的影响,以及微生物群落结构的变化情况,以期对抗生素去除研究提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 主要试剂

氧氟沙星(CAS #82419-36-1, ofloxacin, OFLX, $\text{C}_{18}\text{H}_{20}\text{FN}_3\text{O}_4$); 诺氟沙星(CAS # 70458-96-7, norfloxacin, NFX, $\text{C}_{16}\text{H}_{18}\text{FN}_3\text{O}_3$)标准品均购买自德国 Dr. Ehrenstorfer 公司. 甲醇、乙腈和甲酸均为高效液相色谱级,其他普通化学试剂等均为分析纯.

1.2 污泥来源及驯化

以城市污水处理厂活性污泥为接种泥(AS_0), 乙酸钠为电子供体,采用如图 1 所示的培养装置驯化反硝化污泥. 装置由玻璃制成,直径 150 mm,高 250 mm,总有效体积为 4L,内设搅拌装置. 采用液位开关控制运行液位. 培养装置进、出水由蠕动泵控制. 装置采用序批式运行,包括进水(8 min)→反应(113 min)→沉淀(50 min)→排水(8 min)→闲置(1 min)阶段至下一轮进水阶段. 分别培养仅有乙酸钠

(无抗生素)存在条件下的反硝化菌群(DnB_1)和微量抗生素与乙酸钠同时存在条件的反硝化菌群(DnB_2).

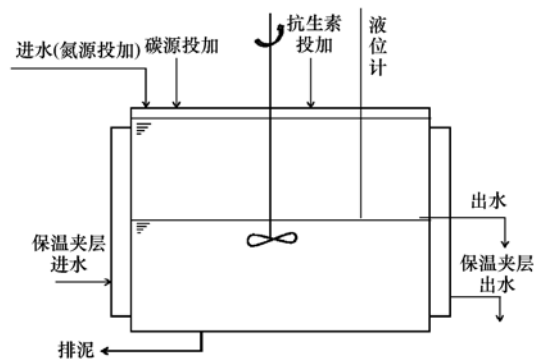


图 1 污泥驯化装置示意

Fig. 1 Schematic diagram of sludge acclimation unit

培养装置中 pH 保持在 7.5~8.0 之间,温度为 27℃. 以乙酸钠作为电子供体和碳源,以硝酸钾作为电子受体和氮源,进水 COD 浓度为 $480 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,硝态氮浓度为 $80 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,每批次进水量为 2 L. DnB_2 进水中添加 OFLX 的浓度为 $1 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,每天测定进水以及出水的硝态氮浓度、亚硝态氮浓度、COD 浓度. 当起始浓度为 $40 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 的硝态氮在 3 h 内可以稳定完全地去除,并且没有亚硝态氮的累积,则表示反硝化污泥驯化完成. 本研究采用的反硝化污泥取自超过 1 a 稳定运行的培养装置.

1.3 试验方法

所有试验均在 500 mL 的锥形瓶中进行,且每次试验均需确定试验污泥浓度. 污泥从培养装置中取出后于 $1000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 离心 5 min; 去离子水重新悬浮至原来刻度,重复操作 2 次. 试验过程中控制温度为 27℃,转速为 $160 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$,pH 为 7.5~8.0. 检测时取试验的泥水混合物 10 mL 于离心管中,在 $2000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 的转速下离心 5 min,用注射器取其上清液. 需分析抗生素、亚硝态氮和硝态氮的样品经 $0.45 \mu\text{m}$ 的水相过滤膜过滤,并置于 4℃ 的条件下保存.

1.3.1 抗生素对反硝化反应的影响

反应起始的硝态氮 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 浓度为 $45 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,亚硝态氮 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 浓度为 0. 按照反硝化污泥来源进行分组:①以来自某污水处理厂的活性污泥为对照组,标记为 AS_0 ;②仅包含乙酸钠为碳源而未添加 OFLX 培养的反硝化污泥组,标记为 DnB_1 ;③以乙酸钠为碳源同时添加 $1 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ OFLX 培养的耐药型污泥组,标记为 DnB_2 . 本试验用水中添加抗生素浓度分别为 $0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $1 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 一定时间间隔取样检测 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 和 OFLX 浓度.

1.3.2 污泥对抗生素的吸附

首先采用高压灭菌 (121°C , 灭菌 30 min) 的方式对污泥进行灭活, 灭菌前后通过体积控制来调整水的蒸发量. OFLX 的初始浓度为 $0.1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 加入药品后放入摇床中设定转速为 $160\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$, 接触 72 h, 取样检测 OFLX 浓度.

1.4 分析方法

本研究中的硝态氮和亚硝态氮分别采用国标法中的紫外分光光度法和分光光度法进行测定. 试验过程中, 抗生素样品处理方法基于课题组之前的优化方法^[13, 14], 浓度 $<1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 采用固相萃取和超高效液相色谱串联质谱法进行分析, 浓度 $>1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 直接采用超高效液相色谱串联质谱法进行分析, 其中抗生素浓度使用 UPLC-MS/MS 仪器进行测定 (SCIEX, Triple Quad TM 5500 System, USA).

2 结果与讨论

2.1 OFLX 对不同反硝化菌群反硝化速率的影响

不同初始 OFLX 浓度条件下, AS_0 、 DnB_1 和 DnB_2 这 3 种污泥的硝酸盐还原过程如图 2 所示. OFLX 对 AS_0 污泥的硝酸盐还原速率有明显的抑制作用[图 2(a)], 当 OFLX 浓度为 $1\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, AS_0 污泥的硝酸盐还原速率受到显著抑制, 与对照组相比下降了 54.80% 和 65.80%. 当 OFLX 浓度超过 $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, AS_0 中的硝酸盐还原过程被完全抑制. 如图 2(b), OFLX 浓度依次为 $1\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $10\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的条件下, 经 5 h 的反应, 以 DnB_1 污泥试验的反应瓶内, NO_3^- -N 去除率分别为 97.60%、85.94%、45.84%、36.68% 和 17.47%, 尽管 OFLX 对 DnB_1 污泥的硝酸盐还原过程表现出一定程度的抑制作用, 但与 AS_0 污泥相比, 硝酸盐还原过程受抑制的程度较小. 杨腾飞等^[15]的研究发现甲氧苄啶对反硝化过程有明显的抑制作用, 但加入磺胺甲恶唑调控以后抑制作用有所降低, 这说明特定电子供体的调控可有效减小污泥受抗生素的抑制影响. Ahmad 等^[16]关于磺胺二甲嘧啶和金霉素对反硝化的影响研究, 反硝化同样没有被这两种抗生素明显地抑制. 如图 2(c), 当 OFLX 浓度为 $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 反应 5 h 后, DnB_2 组剩余 NO_3^- -N 浓度为 $23.12\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 去除率为 46.30%, 相较于 AS_0 和 DnB_1 受 OFLX 影响的程度都小, 这说明 DnB_2 污泥的硝酸盐还原速率对于更高浓度水平抗生素有良好的耐受性. 这与 An 等^[17]在研究磺胺嘧啶对反硝化过程影响的研究中得到的结论相似. 但 OFLX 会影响反硝化速度, 需要较长的反硝化时间.

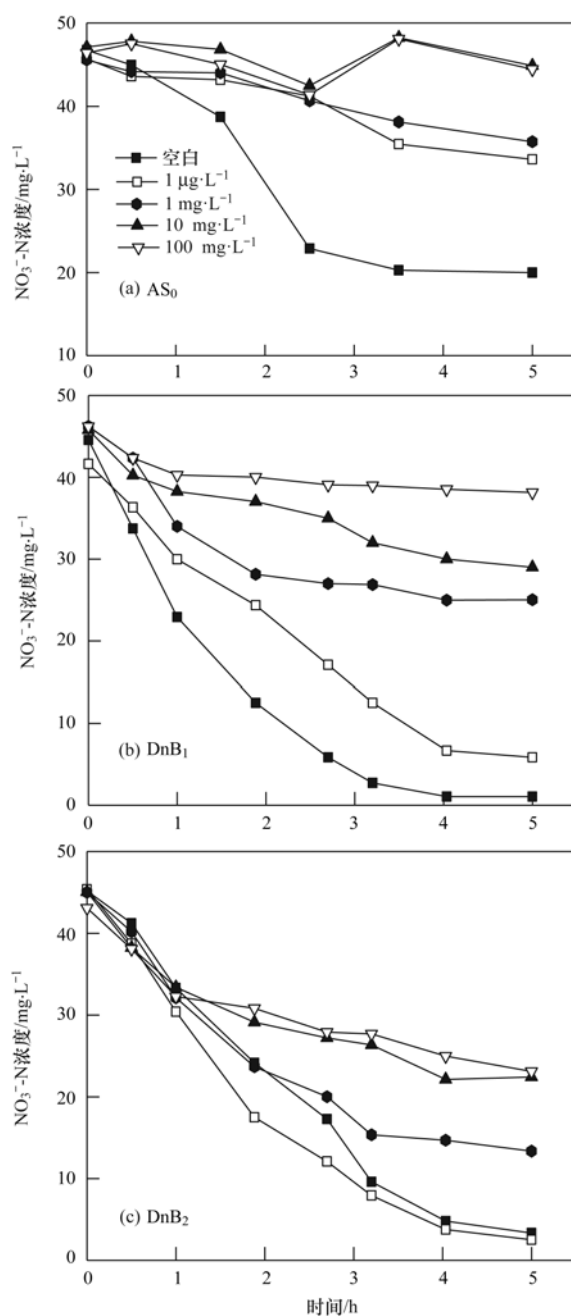


图2 不同 OFLX 浓度下 AS_0 、 DnB_1 和 DnB_2 对 NO_3^- -N 的去除

Fig. 2 Removal of NO_3^- -N from AS_0 , DnB_1 , and DnB_2 at different OFLX concentrations

AS_0 、 DnB_1 和 DnB_2 在不同 OFLX 浓度下, NO_2^- -N 的浓度变化如图 3 所示, AS_0 、 DnB_1 和 DnB_2 在 OFLX 浓度为 $0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $1\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时都没有明显地积累. OFLX 浓度为 $10\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 反应 4 h 后, DnB_1 组和 DnB_2 组, NO_2^- -N 的浓度范围为 $0\sim0.02\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 与未经碳源乙酸钠驯化的 AS_0 污泥相比, 仅接触碳源乙酸钠即使未接触 OFLX 驯化得到的 DnB_1 污泥, 其亚硝酸盐还原过程能够耐受较高浓度的 OFLX. 以上试验结果表明, 经过长期低浓度 OFLX 接触驯化得到的 DnB_2 污泥能够耐受较高浓度的 OFLX, 硝酸盐和亚硝酸盐还

原速率在各浓度试验条件下几乎不受抑制. 说明长期低浓度抗生素的接触可以导致对高浓度抗生素的耐受性.

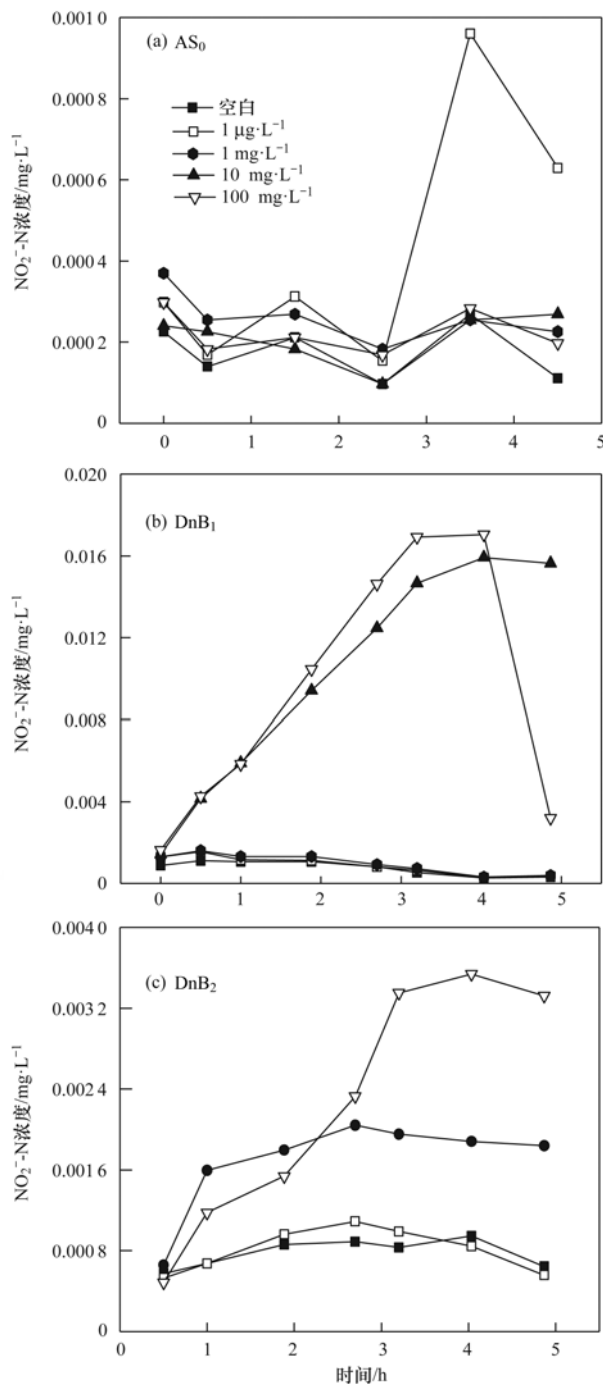


图3 不同 OFLX 浓度下 AS_0 、 DnB_1 和 DnB_2 对 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 的去除

Fig. 3 Removal of $\text{NO}_2^- \text{-N}$ from AS_0 , DnB_1 , and DnB_2 at different OFLX concentrations

2.2 OFLX 在反硝化过程中的去除

有研究发现, 氟喹诺酮类抗生素的固液分配系数 K_d 值较高, 易于从水相转移到泥相中, 而且许多研究认为污泥吸附是污水中氟喹诺酮类抗生素的主要去除途径^[18~23]. 为了探究 OFLX 在对反硝化过程产生影响的过程中药物自身的吸附情况, 本研究先

考察了在硝态氮浓度为 $45 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, OFLX 为 $0.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, DnB_1 组和 DnB_2 组中 OFLX 的吸附情况. OFLX 去除试验分别采用灭活的 DnB_1 与 DnB_2 以及具有活性的 DnB_1 和 DnB_2 进行, 前者用于考察污泥对 OFLX 的吸附量, 后者用于考察 OFLX 的总去除量, OFLX 的降解部分通过 OFLX 的总去除量减去吸附去除的部分得到^[24]. 如图 4 所示, DnB_1 组和 DnB_2 组对 OFLX 的总去除量分别为 $35.48 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $82.95 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 吸附量分别为 $35.17 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $66.81 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$, 市政污泥中微生物活动形成的絮体通过静电作用和疏水作用与氟喹诺酮类抗生素药物的分子结构相结合来实现生物吸附^[25]. DnB_2 组吸附量相较于 DnB_1 提高, 这可能是因为 OFLX 的驯化改变了 DnB_2 组微生物的结构, 而使得 DnB_2 更容易和抗生素结合. 可以看出 DnB_2 组对 OFLX 的总体去除量高于 DnB_1 组, 且降解比例从 0.87% 提高至 19.46%. Kümmerer^[12] 的研究发现尽管微生物降解抗生素较难, 但是从微生物中分离出来的酶能够降解抗生素, 而且部分抗生素在与乙酸钠共基质的条件下才可以被生物部分降解.

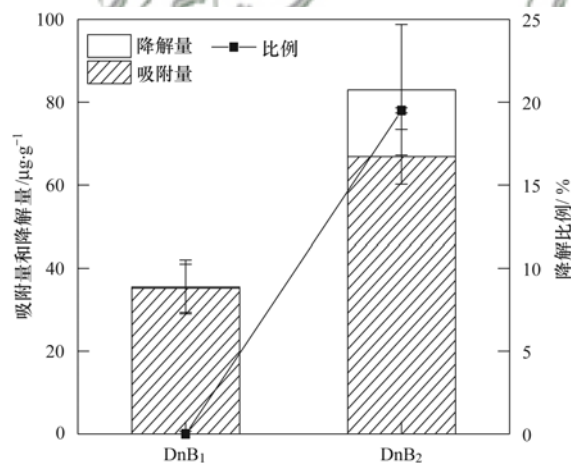


图4 DnB_1 和 DnB_2 对 OFLX 的吸附与降解

Fig. 4 Adsorption and degradation of OFLX by DnB_1 and DnB_2

通过批次试验对 AS_0 、 DnB_1 和 DnB_2 在不同 OFLX 浓度下反硝化速率的观察, 本研究还同时检测了当反应瓶内硝态氮降解完时 OFLX 的浓度. 不同初始浓度条件下, OFLX 的去除率如图 5 所示, 当 OFLX 浓度为 $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, DnB_2 组 OFLX 去除量均高于 AS_0 组和 DnB_1 组. 当 OFLX 浓度浓度为 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 接种泥组和 DnB_1 组去除率 $< 1\%$, 而 DnB_2 组去除率为 22.70%. 当 OFLX 浓度为 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, 接种泥组和 DnB_1 组抗生素仅有微量去除 (去除率 $< 1\%$), 而 DnB_2 组去除率为 43.65%. 这说明 DnB_2 污泥能够耐受较高浓度的 OFLX, 反硝化过程受 OFLX 影响较小, 且可以较好地降解 OFLX,

因此推测经过长期低浓度 OFLX 接触驯化得到的 DnB₂ 污泥能够耐受较高浓度的 OFLX, 污泥微生物菌群具有抗生素抗性, 称其为耐药型反硝化污泥。

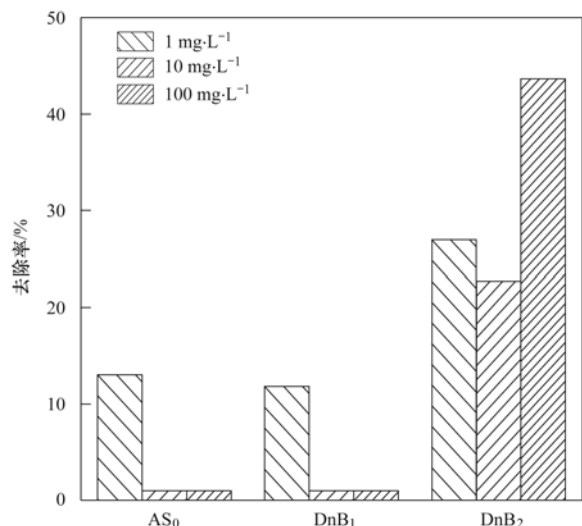


图5 不同初始浓度 OFLX 条件下 AS₀、DnB₁ 和 DnB₂ 对 OFLX 的去除率

Fig. 5 Removal rates of AS₀, DnB₁, and DnB₂ to OFLX at different initial concentrations

2.3 其它氟喹诺酮类抗生素对耐药型反硝化污泥的影响

城市污水和水环境中通常同时存在多种氟喹诺酮类抗生素, 本研究以同为氟喹诺酮类抗生素的诺氟沙星 (norfloxacin, NFX) 为代表物质, 考察其对 OFLX 耐药型反硝化污泥的影响。反应条件同 2.1 节, 硝酸盐还原过程如图 6 所示, NFX 浓度为 1 mg·L⁻¹ 和 10 mg·L⁻¹ 时, 与 OFLX 浓度为 1 mg·L⁻¹ 和 10 mg·L⁻¹ 时相比较, DnB₁ 和 DnB₂ 硝酸盐还原过程没有受到明显的抑制现象, 加入 NFX 反应 5 h

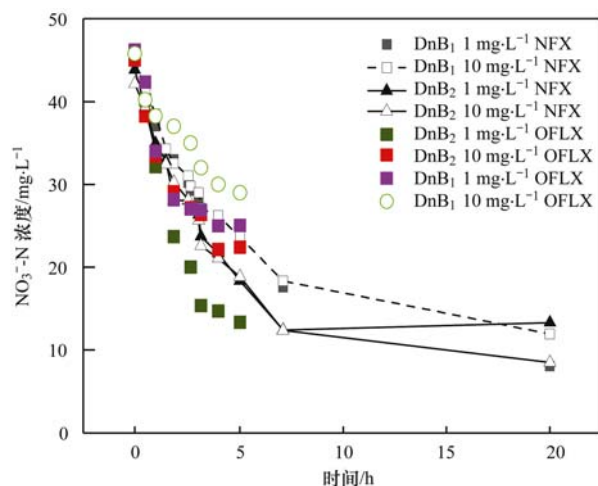


图6 不同 NFX 和 OFLX 浓度下 DnB₁ 和 DnB₂ 对 NO₃⁻-N 的去除

Fig. 6 Removal of NO₃⁻-N from DnB₁ and DnB₂ at different NFX and OFLX concentrations

后, DnB₂ 反应瓶内, NO₃⁻-N 剩余浓度分别为 28.02 mg·L⁻¹ 和 28.13 mg·L⁻¹, DnB₁ 反应瓶内, NO₃⁻-N 剩余浓度分别为 30.21 mg·L⁻¹ 和 31.05 mg·L⁻¹。加入 OFLX 反应 5 h, DnB₂ 反应瓶内, NO₃⁻-N 剩余浓度分别为 28.02 mg·L⁻¹ 和 28.13 mg·L⁻¹, DnB₁ 反应瓶内, NO₃⁻-N 剩余浓度分别为 30.21 mg·L⁻¹ 和 31.05 mg·L⁻¹。但 DnB₂ 的硝酸盐还原速率大于 DnB₁, 这说明低浓度 OFLX 驯化的 DnB₂ 相较于 DnB₁, 对同类抗生素 NFX 也有较好的耐受能力。

亚硝酸盐还原过程如图 7 所示, 加入 NFX, 当反应 5 h 后, NFX 浓度为 1 mg·L⁻¹ 和 10 mg·L⁻¹ 时, DnB₂ 组和 DnB₁ 组内, NO₂⁻-N 浓度范围为 0 ~ 0.02 mg·L⁻¹, DnB₂ 和 DnB₁ 亚硝酸盐都无明显的积累。

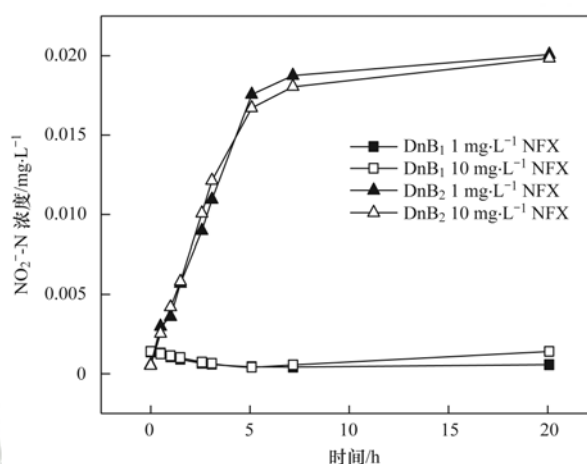


图7 不同 NFX 浓度下 DnB₁ 和 DnB₂ 对 NO₂⁻-N 的去除

Fig. 7 Removal of NO₂⁻-N from DnB₁ and DnB₂ at different NFX concentrations

DnB₁ 和 DnB₂ 对 NFX 的去除率如图 8 所示, 当 NFX 的投加浓度为 10 mg·L⁻¹ 时, DnB₁ 和 DnB₂ 对 NFX 的去除率较高, 反应 7 h 后, DnB₁ 和 DnB₂ 对

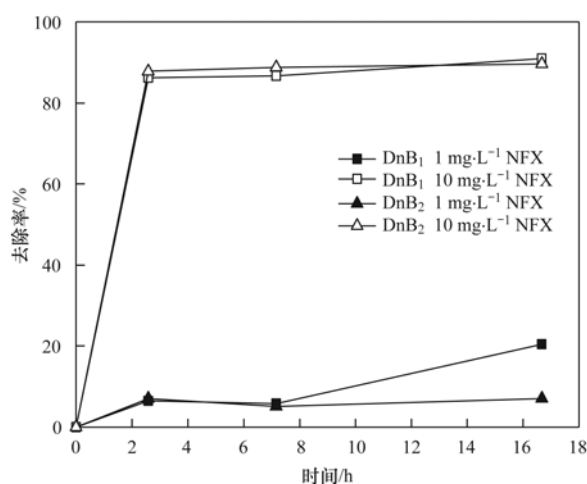


图8 不同初始 NFX 浓度条件下 DnB₁ 和 DnB₂ 对 NFX 的去除率

Fig. 8 Removal rates of DnB₁ and DnB₂ to NFX at different initial concentrations

NFX 的去除率分别为 88.69% 和 88.80%。而当 NFX 的投加浓度为 $1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 时, DnB_1 和 DnB_2 对 NFX 的去除率较低, 反应 7 h 后, DnB_1 和 DnB_2 对 NFX 的去除率分别为 6.50% 和 7.10%。但当反应 16.5 h 后, DnB_1 和 DnB_2 对 NFX 的去除率分别为 7.10% 和 20.50%。说明接触过抗生素的 DnB_2 相较于未接触过抗生素的 DnB_1 对同类抗生素 (NFX) 有更好的适应能力。这与 Ingerslev 等^[26] 对活性污泥中 12 种磺胺类药物的生物可降解性进行研究, 发现降解一种磺胺的细菌同样可以降解其他磺胺类抗生素的规律相似。

2.4 OFL 对反应器中微生物群落结构的影响

2.4.1 Alpha 多样性指数分析

由 ACE 指数和 Chao 指数可知 (见表 1), DnB_1 的微生物群落相对丰度要高于 DnB_2 , 说明 OFLX 的加入使得 DnB_2 中的微生物经过一段时间的驯化后, 部分微生物无法耐受 OFLX 而逐渐死亡, 造成微生物的丰富度降低。由 Shannon 和 Simpson 指数可知 (见表 1), DnB_1 的微生物群落多样性要高于 DnB_2 , 说明反应器内能耐受 OFLX 的菌经过一段时间的驯化后形成了优势种群, 导致微生物群落多样性的减少。

表 1 生物多样性分析
Table 1 Biodiversity analysis

样品	ACE 指数	Chao 指数	Shannon 指数	Simpson 指数
AS_0	637.020 9	638.6125	5.018	0.016 007
DnB_1	381.577 4	393.7143	3.432	0.067 494
DnB_2	355.884 1	374.1121	3.331	0.066 250

2.4.2 门水平上的菌群变化

经过长时间的培养驯化, DnB_1 和 DnB_2 这 2 个培养装置内微生物的种群结构在门分类水平上具有较高的多样性和相似性。在 DnB_1 中检测到的微生物类群在 DnB_2 中大部分也可以检测到。而乙酸钠驯化的 DnB_1 与 AS_0 相比 [图 9(a) 和 9(b)], DnB_1 中新增了螺旋体门 (Spirochaetae)、Ignavitacteria 和 Tenericutes 菌门。由图 9(b) 和 (c) 可知, DnB_2 和 DnB_1 中含量占比较多的门类有: 变形菌门 (Proteobacteria)、拟杆菌门 (Bacteroidetes)、绿弯菌门 (Chloroflexi)、酸杆菌门 (Acidobacteria)、Spirochaetae、Ignavitacteria、Tenericutes 和 Firmicutes 共 8 个菌门, 这 8 个门的细菌总数和占微生物总数的 95% 以上。除此之外, 装甲菌门

(Armatimonadetes)、衣原体门 (Chlamydiae)、厚壁菌门 (Firmicutes)、放线菌门 (Actinobacteria)、螺旋体门 (Spirochaetae) 等含量不超过 1%。 DnB_1 相比于 DnB_2 , Spirochaetae 和 Chloroflexi 分别从 0.86%、0.9% 增加至 8.3% 和 4.2%。

2.4.3 属水平上的菌群变化

微生物菌群在属水平上的分布见图 10 (其中仅列出比例大于 1% 的微生物), 与 DnB_1 相比, DnB_2 中微生物比例减小的有 *NS9-marine-group*、*Thauera*、*Lentimicrobium*、*Erysipelothrix* 和 *Desulfomicrobium*, 可能是因为这些微生物对 OFLX 更敏感。 DnB_2 中微生物比例增加的有 *Rhodobacteraceae*、*Mollicutes*、*Sparospiraceae*、*Anaerolineaceae*、*Methylophilus* 和 *Flavobacterium*。

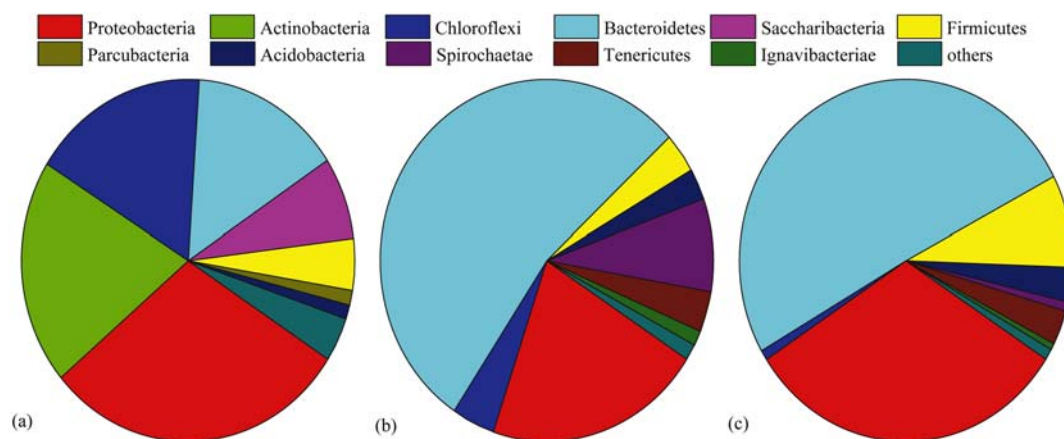


图 9 门水平上菌群分布

Fig. 9 Distribution of microorganisms at phylum level

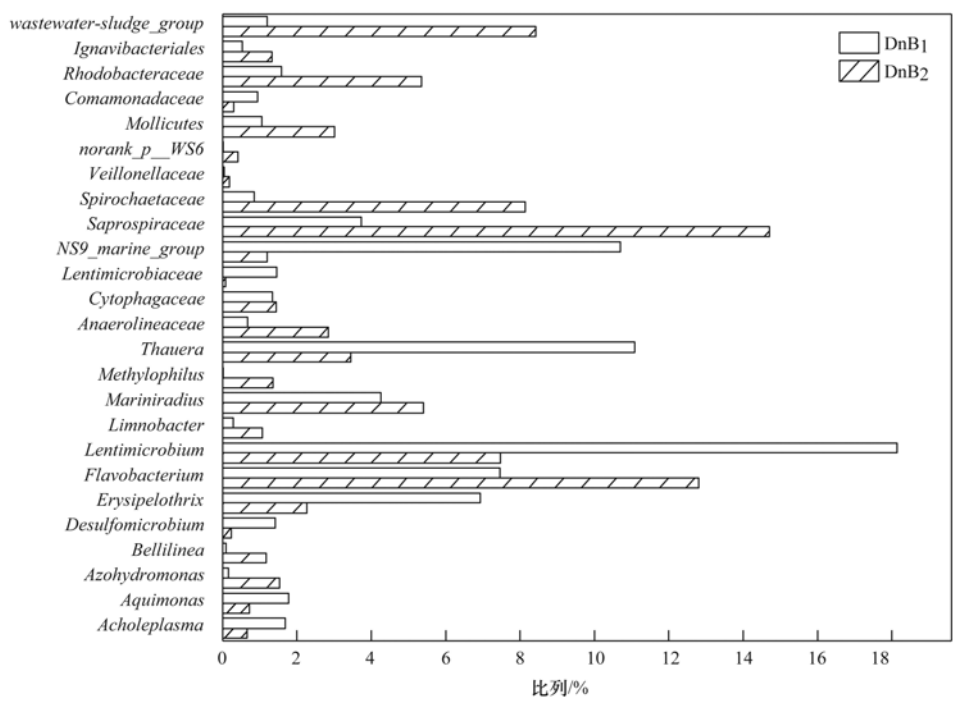


图 10 属水平上菌群分布 (比例大于 1%)

Fig. 10 Distribution of microorganisms at phylum genus

3 结论

(1) OFLX 对 AS_0 反硝化过程有明显的抑制作用,加入乙酸钠培养的反硝化菌,反硝化速率提高.当 OFLX 浓度为 $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, DnB₁ 组和 DnB₂ 组亚硝酸盐还原速率 (以 $\text{NO}_3^- \text{-N}/\text{MLSS}$ 计) 为 $1.17\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $3.81\text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$. 经过长期低浓度 OFLX 接触驯化得到的 DnB₂ 污泥能够耐受较高浓度的 OFLX,硝酸盐和亚硝酸盐还原速率在各浓度试验条件下几乎不受抑制.说明长期低浓度抗生素的接触可以导致对高浓度抗生素的耐受性.

(2) DnB₁ 组和 DnB₂ 组对 OFLX 的吸附量分别为 $35.17\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $66.81\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, DnB₂ 对 OFLX 吸附效果优于 DnB₁. DnB₁ 和 DnB₂ 对 OFLX 的降解量分别为 $0.31\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $16.14\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. DnB₂ 组对 OFLX 的总体去除率高于 DnB₁ 组,接种泥组和 DnB₁ 组基本没有去除,长期以 $1\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 级别驯化的污泥相较于未驯化的污泥,能够耐受较高浓度的 OFLX,可以较好地降解 OFLX.

(3) 用 OFLX 驯化的耐药型反硝化污泥,对 NFX 同样有一定的耐受能力,反硝化过程受 NFX 抑制程度小,对 NFX 有较高的去除率.

(4) DnB₁ 的微生物群落相对丰度和微生物群落多样性均高于 DnB₂,由门水平物种相对丰度分析可知, DnB₂ 和 DnB₁ 中含量占比较多的门类有:变形菌门 Proteobacteria、拟杆菌门 Bacteroidetes、绿弯菌

门 Chloroflexi、酸杆菌门 Acidobacteria.

参考文献:

[1] 王冰,孙成,胡冠九. 环境中抗生素残留潜在风险及其研究进展[J]. 环境科学与技术, 2007, **30**(3): 108-111.
Wang B, Sun C, Hu G J. Residue antibiotics in environment: potential risks and relevant studies[J]. Environmental Science & Technology, 2007, **30**(3): 108-111.

[2] Kumar K, Gupta S C, Chander Y, et al. Antibiotic use in agriculture and its impact on the terrestrial environment[J]. Advances in Agronomy, 2005, **87**: 1-54.

[3] Huang X F, Feng Y, Hu C, et al. Mechanistic model for interpreting the toxic effects of sulfonamides on nitrification[J]. Journal of Hazardous Materials, 2016, **305**: 123-129.

[4] Zhang T, Li B. Occurrence, transformation, and fate of antibiotics in municipal wastewater treatment plants[J]. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 2011, **41**(11): 951-998.

[5] Larcher S, Yargeau V. Biodegradation of sulfamethoxazole: current knowledge and perspectives[J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2012, **96**(2): 309-318.

[6] Spielmeier A, Breier B, Großmeier K, et al. Elimination patterns of worldwide used sulfonamides and tetracyclines during anaerobic fermentation[J]. Bioresource Technology, 2015, **193**: 307-314.

[7] Liu Z G, Sun P Z, Pavlostathis S G, et al. Inhibitory effects and biotransformation potential of ciprofloxacin under anoxic/anaerobic conditions[J]. Bioresource Technology, 2013, **150**: 28-35.

[8] 李彭. 不同电子供体深度脱氮工艺及微生物群落特征研究[D]. 北京: 清华大学, 2014.

[9] Li P, Wang Y J, Zuo J N, et al. Nitrogen removal and N_2O accumulation during hydrogenotrophic denitrification: influence of environmental factors and microbial community characteristics[J]. Environmental Science & Technology, 2017, **51**(2): 870-879.

- [10] Li P, Zuo J E, Wang Y J, *et al.* Tertiary nitrogen removal for municipal wastewater using a solid-phase denitrifying biofilter with polycaprolactone as the carbon source and filtration medium [J]. *Water Research*, 2016, **93**: 74-83.
- [11] Du B B, Wang R F, Yang Q X, *et al.* Impact of tetracycline on the performance and abundance of functional bacteria of a lab-scale anaerobic-aerobic wastewater treatment system [J]. *Biochemical Engineering Journal*, 2018, **138**: 98-105.
- [12] Kümmerer K. Drugs in the environment; emission of drugs, diagnostic aids and disinfectants into wastewater by hospitals in relation to other sources-a review [J]. *Chemosphere*, 2001, **45** (6-7): 957-969.
- [13] Chen H Y, Jing L J, Teng Y G, *et al.* Characterization of antibiotics in a large-scale river system of China: occurrence pattern, spatiotemporal distribution and environmental risks [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **618**: 409-418.
- [14] Tran N H, Chen H J, Van Do T, *et al.* Simultaneous analysis of multiple classes of antimicrobials in environmental water samples using SPE coupled with UHPLC-ESI-MS/MS and isotope dilution [J]. *Talanta*, 2016, **159**: 163-173.
- [15] 杨腾飞, 张小寒, 黄铄淇, 等. 磺胺甲恶唑和甲氧苄啶对生物脱氮过程的影响规律 [J]. *环境化学*, 2018, **37**(3): 471-479.
Yang T F, Zhang X H, Huang S Q, *et al.* Effect of sulfamethoxazole and trimethoprim on biological nitrogen removal [J]. *Environmental Chemistry*, 2018, **37**(3): 471-479.
- [16] Ahmad M, Vithanage M, Kim K, *et al.* Inhibitory effect of veterinary antibiotics on denitrification in groundwater: a microcosm approach [J]. *The Scientific World Journal*, 2014, (3): 879831.
- [17] An Y L, Qin X M. Effects of sulfamethoxazole on the denitrifying process in anoxic activated sludge and the responses of denitrifying microorganisms [J]. *Water Science and Technology*, 2018, **78**(5): 1228-1236.
- [18] Li B, Zhang T. Biodegradation and adsorption of antibiotics in the activated sludge process [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(9): 3468-3473.
- [19] Wang L F, Li Y, Zhu M J, *et al.* Responses of biofilm microorganisms from moving bed biofilm reactor to antibiotics exposure: Protective role of extracellular polymeric substances [J]. *Bioresource Technology*, 2018, **254**(4): 268-277.
- [20] Wu C X, Spongberg A L, Witter J D. Sorption and biodegradation of selected antibiotics in biosolids [J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 2009, **44**(5): 454-461.
- [21] Stuer-Lauridsen F, Birkved M, Hansen L P, *et al.* Environmental risk assessment of human pharmaceuticals in Denmark after normal therapeutic use [J]. *Chemosphere*, 2000, **40**(7): 783-793.
- [22] Carballa M, Fink G, Omil F, *et al.* Determination of the solid-water distribution coefficient (K_d) for pharmaceuticals, estrogens and musk fragrances in digested sludge [J]. *Water Research*, 2008, **42**(1-2): 287-295.
- [23] 周佳虹, 张翔宇, 李茹莹. 抗生素在污水处理系统中的迁移分布研究进展 [J]. *环境科学与技术*, 2017, **40**(8): 77-86.
Zhou J H, Zhang X Y, Li R Y. Research progress of distribution and migration of antibiotics in wastewater treatment system [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, **40**(8): 77-86.
- [24] 谢攀科. A/O-MBR 去除氧氟沙星的特性研究 [D]. 上海: 东华大学, 2015.
- [25] Golet E M, Xifra I, Siegrist H, *et al.* Environmental exposure assessment of fluoroquinolone antibacterial agents from sewage to soil [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, **37**(15): 3243-3249.
- [26] Ingerslev F, Halling-Sørensen B. Biodegradability properties of sulfonamides in activated sludge [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2000, **19**(10): 2467-2473.

CONTENTS

Evolution of the Distribution of PM _{2.5} Concentration in the Yangtze River Economic Belt and Its Influencing Factors	HUANG Xiao-gang, ZHAO Jing-bo, CAO Jun-ji, <i>et al.</i>	(1013)
Chemical Characteristics and Source Apportionment of Water-Soluble Ions in Atmosphere Aerosols over the East China Sea Island During Winter and Summer	FANG Yan, CAO Fang, FAN Mei-yi, <i>et al.</i>	(1025)
Analysis of Chemical Components and Sources of PM _{2.5} During Autumn and Winter in Yangquan City	WANG Cheng, YAN Yu-long, XIE Kai, <i>et al.</i>	(1036)
Chemical Compositions and Sources of <i>n</i> -Alkanes and Saccharides in PM _{2.5} from Taian City During the Summer	YI Ya-nan, HOU Zhan-fang, YANG Qian-cai, <i>et al.</i>	(1045)
Physical and Chemical Characteristics of Atmospheric Particles in Autumn in Mt. Huangshan	BIAN Yi-shu, YIN Yan, WANG Hong-lei, <i>et al.</i>	(1056)
Characteristics of Aerosol Optical Depth in the Urban Area of Beibei and Its Correlation with Particle Concentration	ZENG Wei, HAO Qing-ju, ZHAO Zhong-jing, <i>et al.</i>	(1067)
Emission Characteristics of Volatile Organic Compounds from Typical Industries in Zibo	WANG Yu-yan, WANG Xiu-yan, DU Miao, <i>et al.</i>	(1078)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of Atmospheric VOCs in Ezhou City	FU Yu-meng, YANG Hong-gang, LU Min-yu, <i>et al.</i>	(1085)
Producing Coefficients and Emission Coefficients of Volatile Organic Compounds from the Automobile Manufacturing Industry in Zhejiang Province	TENG Fu-hua, YANG Zhong-ping, DONG Shi-bi, <i>et al.</i>	(1093)
Pollution Characteristics of Volatile Organic Compounds Emission from the Metal Packaging Industry Based on Analysis of Process	WANG Di, NIE Lei, ZHAO Wen-juan, <i>et al.</i>	(1099)
Profile Characteristics of VOCs from Wood and Economic Crop Burning	NIU Zhen-zhen, KONG Shao-fei, YAN Qin, <i>et al.</i>	(1107)
Accounting Methods of VOCs Emission Associated with Production Processes in a Fine Chemical Industrial Park	YE Han-yun, TIAN Jin-ping, CHEN Lü-jun	(1116)
HONO Observation and Assessment of the Effects of Atmospheric Oxidation Capacity in Changzhou During the Springtime of 2017	SHI Xiao-wen, GE Yi-feng, ZHANG Yu-chan, <i>et al.</i>	(1123)
Analysis of Activity and Its Emissions Trend for Construction Equipment in China	PANG Kai-li, ZHANG Kai-shan, MA Shuai, <i>et al.</i>	(1132)
Air Pollutant Emission Inventory from LTO Cycles of Aircraft in the Beijing-Tianjin-Hebei Airport Group, China	HAN Bo, KONG Wei-kai, YAO Ting-wei, <i>et al.</i>	(1143)
Particle Size Distribution of PM Emission from In-use Gasoline and Diesel Vehicles	WANG Rui-ning, HU Qing-yao, REN Hong-juan, <i>et al.</i>	(1151)
Impact of Parameterization on the Estimation of Ammonia Emissions: A Case Study over the Yangtze River Delta	ZHANG Qi, HUANG Ling, YIN Si-jia, <i>et al.</i>	(1158)
Characteristics and Source Apportionment of Dustfall Pollution in the Coal Mine Area and Surrounding Areas of Wuhai City in Spring	WU Hong-xuan, SHI Chang-qing, ZHANG Yan, <i>et al.</i>	(1167)
Variations of Stable Oxygen and Deuterium Isotopes in River and Lake Waters During Flooding Season Along the Middle and Lower Reaches of the Yangtze River Regions	LI Jing, WU Hua-wu, ZHOU Yong-qiang, <i>et al.</i>	(1176)
Water Sources and Factors Controlling Hydro-chemical Compositions in the Yiluo River Basin	LIU Song-tao, ZHANG Dong, LI Yu-hong, <i>et al.</i>	(1184)
Chemical Evolution of Groundwater in the Tacheng Basin of Xinjiang in the Process of Urbanization	LÜ Xiao-li, LIU Jing-tao, HAN Zhan-tao, <i>et al.</i>	(1197)
Remote Sensing Monitoring on Spatial Differentiation of Suspended Sediment Concentration in a River-Lake System Based on Sentinel-2 MSI Imaging: A Case for Shengjin Lake and Connected Yangtze River Section in Anhui Province	WANG Hang-hang, WANG Jie, CUI Yu-huan	(1207)
CDOM Optical Characteristics and Related Environmental Factors of High-turbidity Waters on the Loess Plateau	LIANG Xiao-wen, SHAO Tian-tian, WANG Tao	(1217)
Effects of Artificial Destratification and Induced-natural Mixing on Water Quality Improvement in a Drinking Water Reservoir	WEN Cheng-cheng, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i>	(1227)
Effect of Filter Speed and Water Quality on Ammonia Removal in Groundwater Containing Iron, Manganese, and Ammonia at Low Temperature	ZHANG Jie, MEI Ning, LIU Meng-hao, <i>et al.</i>	(1236)
Long-term Variation Characteristics of Zooplankton Community Structure in Meiliang Bay, Lake Taihu	YANG Jia, ZHOU Jian, QIN Bo-qiang, <i>et al.</i>	(1246)
Community of Benthic Diatoms and Their Relationship with Aquatic Environmental Factors in the Tangwang River, China	XUE Hao, WANG Ye-yao, MENG Fan-sheng, <i>et al.</i>	(1256)
Succession Characteristics and Water Quality Responsiveness Evaluation of FG and MBFG in Yanlong Lake Water Source Ecological Purification System	WANG Lian, LI Xuan, MA Wei-xing, <i>et al.</i>	(1265)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Output and Loss Flux in the Shipanqiu Watershed, Three Gorges Reservoir Area	CHEN Shi-qi, LONG Yi, YAN Dong-chun, <i>et al.</i>	(1276)
Effect of Optimized Fertilization and Biochar Application on Phosphorus Loss in Purple Soil Sloping Farmland	LUO Dong-hai, WANG Zi-fang, LONG Yi, <i>et al.</i>	(1286)
Use of Iron-modified Calcite as an Active Capping Material to Control Phosphorus Release from Sediments in Surface Water Bodies	BAI Xiao-yun, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i>	(1296)
Preparation of Tea Waste Biochar and Its Application in Tetracycline Removal from Aqueous Solution	FAN Shi-suo, LIU Wen-pu, WANG Jing-tao, <i>et al.</i>	(1308)
Adsorption Characteristics of Sulfamethazine on Three Typical Porous High-temperature Modified Solid Waste Materials	WANG Jing, ZHU Xiao-li, HAN Zi-yu, <i>et al.</i>	(1319)
Sorption of Polybrominated Diphenyl Ethers by Virgin and Aged Microplastics	XU Peng-cheng, GUO Jian, MA Dong, <i>et al.</i>	(1329)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of the Ruxi Tributary of the Three Gorges Reservoir	FANG Zhi-qing, WANG Yong-min, WANG Xun, <i>et al.</i>	(1338)
Distribution and Risk Assessment of OCPs in Surface Water, Sediments, and Fish from Lake Gucheng and Inflow and Outflow Rivers	KAN Ke-cong, GU Xiao-hong, LI Hong-min, <i>et al.</i>	(1346)
Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Hengshui Lake	ZHANG Jia-wen, WEI Jian, LÜ Yi-fan, <i>et al.</i>	(1357)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Typical Organophosphate Esters in Beijing Municipal Wastewater Treatment Plant and the Receiving Water	ZHANG Zhen-fei, LÜ Jia-pei, PEI Ying-ying, <i>et al.</i>	(1368)
Advanced Nitrogen Removal Characteristics of Low Carbon Source Municipal Wastewater Treatment via Partial-denitrification Coupled with ANAMMOX	MA Bin, XU Xin-xin, GAO Mao-hong, <i>et al.</i>	(1377)
Stable Nitrite Accumulation and Phosphorus Removal from High-nitrate and Municipal Wastewaters in a Combined Process of Partial Denitrification and Denitrifying Phosphorus Removal (PD-DPR)	WANG Qiu-ying, YU De-shuang, ZHAO Ji, <i>et al.</i>	(1384)
Start-up of CANON Process and Short-cut Nitrification in a Pilot-scale MBBR Reactor	FU Kun-ming, YANG Zong-yue, LIAO Min-hui, <i>et al.</i>	(1393)
Influence of Antibiotics on the Denitrification Process of Antibiotic Resistant Denitrifying Bacteria and the Analysis of Microbial Community Structure	DAI Sha, LI Peng, PENG Wu-qing, <i>et al.</i>	(1401)
Aerobic Granular Sludge System with Multiple Influent-Aeration Operation Strategy	ZHANG Jie, WANG Yu-ying, LI Dong, <i>et al.</i>	(1409)
Effect of Alkaline Sludge Fermentation Products on the Nitrification Process and Performance	QIU Sheng-jie, LIU Jin-jin, LI Xi-yao, <i>et al.</i>	(1418)
Effect of Sulfate on the Migration and Transformation of Methylmercury in Advanced Anaerobic Digestion of Sludge	HE Xiang-lin, LIU Ji-bao, YIN Yong-guang, <i>et al.</i>	(1425)
Spatial-temporal Variation and Source Change of Heavy Metals in the Cropland Soil in the Industrial City	LI Yan-ling, LU Yi-fu, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i>	(1432)
Assessment and Spatial Characteristics Analysis of Human Health Risk of Heavy Metals in Cultivated Soil	JI Chao, HOU Da-wei, LI Fa-zhi, <i>et al.</i>	(1440)
Microbial Diversity and Physicochemical Properties of Rhizosphere Microenvironment in Saline-alkali Soils of the Yellow River Delta	ZHAO Jiao, XIE Hui-jun, ZHANG Jian	(1449)
Effects of Different Land Use Types on the Molecular Ecological Network of Soil Bacteria	LI Bing, LI Yu-shuang, WEI Jian-bing, <i>et al.</i>	(1456)
Responses of Soil Organic Carbon Fractions to Land Use Types in Hilly Red Soil Regions, China	ZHANG Xiao-fang, ZHENG Sheng-meng, XIA Yin-hang, <i>et al.</i>	(1466)
Effect of Organic Fertilizer and Inorganic Fertilizer Application on N ₂ O Emissions from Fluvio-aquic Soil in the North China Plain	SUN He-yang, WAN Zhong-mei, LIU De-yan, <i>et al.</i>	(1474)
Characteristics of Heavy Metal Absorption by Winter Wheat and Its Quantitative Relationship with Influencing Factors	WANG Yi-wen, RUI Yu-kui, LI Zhong-yang, <i>et al.</i>	(1482)
Effect of Calcium Magnesium Phosphate on Remediation Paddy Soil Contaminated with Cadmium Using Lime and Sepiolite	YAN De-mei, GUO Zhao-hui, HUANG Feng-lian, <i>et al.</i>	(1491)
Passivation and Remediation Effects and Mechanisms of Plant Residual Modified Materials on Lead-Contaminated Soils	FANG Ya-li, ZHU Zong-qiang, ZHAO Ning-ning, <i>et al.</i>	(1498)
Effects of Exogenous Spermidine on Seed Germination and As Uptake and Accumulation of Rice Under As ⁵⁺ Stress	LIU Shu-jin, HUANG Yi-zong, BAO Qiong-li, <i>et al.</i>	(1505)