

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

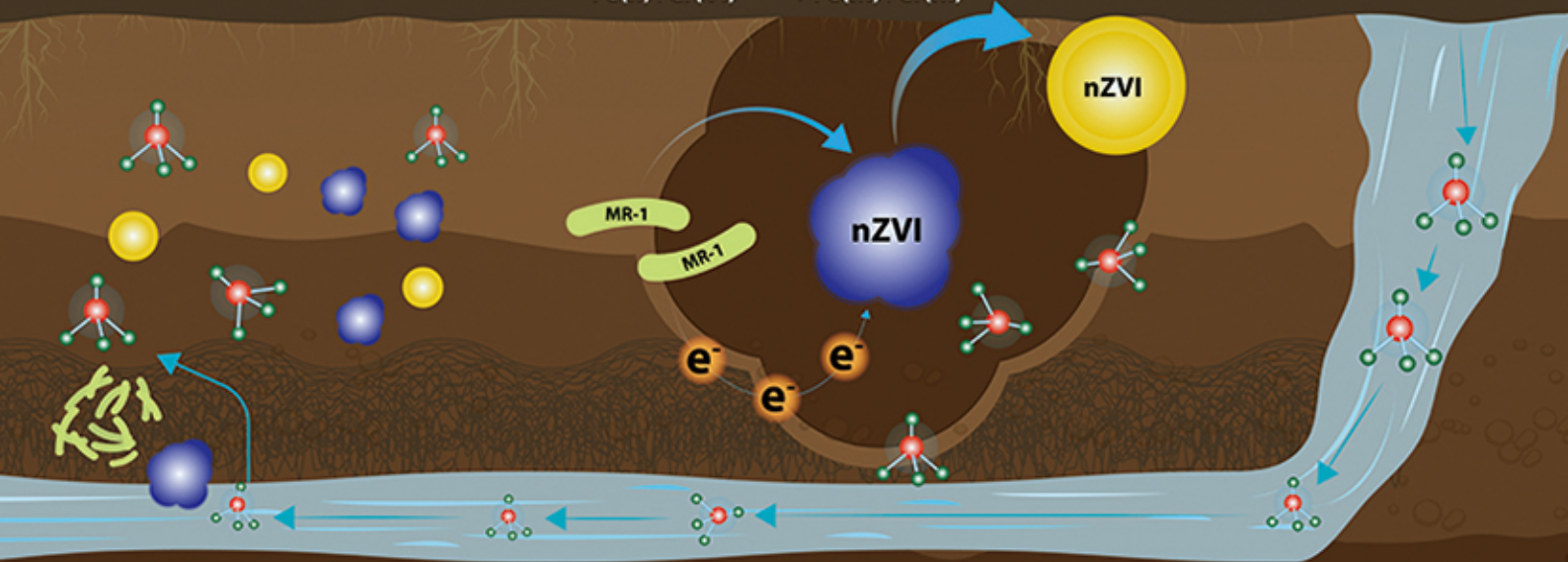
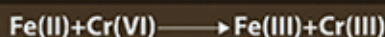
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

电活性微生物激活生物质炭/零价铁协同钝化Cr(VI)及机制

廖聪坚, 赵晓蕾, 刘凯, 钟松雄, 李芳柏, 方利平, 叶挺进, 石虎砚



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年9月

第42卷 第9期
Vol.42 No.9

目次

北京市2014~2020年PM _{2.5} 和O ₃ 时空分布与健康效应评估	陈菁, 彭金龙, 徐彦森 (4071)
京津冀地区高分辨率PM _{2.5} 浓度时空变化模拟与分析	杨晓辉, 宋春杰, 范丽行, 张凌云, 魏强, 李夫星, 王丽艳, 王卫 (4083)
京津冀典型城市冬季人为源减排与气象条件对PM _{2.5} 污染影响	邵玄逸, 王晓琦, 钟巍盛, 王瑞鹏 (4095)
太行山两侧污染物传输对横谷城市气溶胶的影响分析	王雁, 郭伟, 闫世明, 裴坤宁, 李明明, 陈二萍 (4104)
嘉善冬季碳质气溶胶变化特征及其来源解析	张颖龙, 李莉, 吴伟超, 吕升, 秦阳, 祝新明, 高晋徽, 唐倩, 夏峰 (4116)
基于机器学习算法的新冠疫情管控对河南省空气质量影响的模拟分析	魏煜, 徐起翔, 赵金帅, 张瑞芹 (4126)
新乡市大气PM _{2.5} 载带金属元素季节分布、来源特征与健康风险	刘恒嘉, 贾梦珂, 刘永丽, 赵艺洁, 郑爱华, 刘恒志, 徐肃阳, 肖晴晴, 苏晓燕, 任言 (4140)
黄渤海气溶胶中砷的分布特征和季节变化	袁帅, 王艳, 刘汝海, 种习习, 刘晓雨, 邵龙 (4151)
天津市2020年冬季重污染过程气溶胶消光特性及其来源	李立伟, 肖致美, 杨宁, 蔡子颖, 闫斌峰, 元洁, 白宇, 郑乃源, 唐邈 (4158)
中国暖季近地面臭氧浓度空间格局演变及主要气象驱动因素	何超, 慕航, 杨璐, 王丹璐, 邱彦峰, 叶志祥, 易嘉慧, 柯碧钦, 田雅, 洪松 (4168)
乌海市夏季臭氧污染特征及基于过程分析的成因探究	张瑞欣, 陈强, 夏佳琦, 刘晓, 郭文凯, 李光耀, 陈梅 (4180)
珠江三角洲海岸背景区大气VOCs污染特征与来源	云龙, 李成柳, 张明棣, 何龙, 郭键锋 (4191)
永定河上游地表水-地下水水化学特征及其成因分析	孔晓乐, 杨永辉, 曹博, 王艺璇, 裴宏伟, 沈彦军 (4202)
汉江中下游水质时空变异与驱动因素识别	程兵芬, 张远, 夏瑞, 张楠, 张新飞 (4211)
环境持久性药物在江苏省地表水中的污染水平、分布特征及生态风险评估	赵美美, 范德玲, 古文, 汪贞, 梁梦园, 刘济宁, 张志 (4222)
柳江流域河流溶解态重金属时空分布及污染评价	张婉军, 辛存林, 于爽, 刘齐, 曾鹏 (4234)
雷州半岛地下水重金属来源解析及健康风险评价	师环环, 潘羽杰, 曾敏, 黄长生, 侯清芹, 皮鹏程, 彭红霞 (4246)
龙子祠泉域地下水金属元素分布特征及健康风险评价	谢浩, 梁永平, 李军, 邹胜章, 申豪勇, 赵春红, 王志恒 (4257)
硫氧同位素解析典型岩溶地下河流域硫酸盐季节变化特征和来源	任坤, 潘晓东, 兰干江, 彭聪, 梁嘉鹏, 曾洁 (4267)
包头南海湿地磷形态及污染源定量识别	拜亚红, 钱晨歌, 袁思静, 谢子嫣, 来凌子, 张敏, 刘颖, 苗春林 (4275)
城市新城区公园沟塘沉积物磷释放风险及影响因素分析	李如忠, 宋敏, 杨继伟 (4287)
水力停留时间对潜流湿地净化效果影响及脱氮途径解析	齐冉, 张灵, 杨帆, 颜昌宙 (4296)
锰砂人工湿地对污染物的强化去除	马权, 王东麟, 林慧, 柏耀辉 (4304)
4种典型沉水植物对去除磷污染底泥的应用效果	陶理, 王沛芳, 袁秋生, 王洵, 胡斌 (4311)
输水情景下白洋淀好氧反硝化菌群落对溶解性有机物的响应	周石磊, 张甜娜, 陈召莹, 张紫薇, 于明会, 姚波, 崔建升, 罗晓 (4319)
木屑生物炭在雨水径流中的氮磷淋出和吸附特性	孟依柯, 王媛, 汪传跃 (4332)
海州湾潮间带沙蚕对沉积物微塑料的指示作用	王嘉旋, 宋可心, 孙一鑫, 方涛, 李瑾祯, 张涛, 冯志华 (4341)
纳米二氧化钛与镉对斜生栅藻(<i>Scenedesmus obliquus</i>)生长的拮抗效应及其作用机制	王璞, 赵丽红, 朱小山 (4350)
螺旋霉素废水处理过程中菌群结构、水质特征及抗性基因之间关系分析	武彩云, 李慧莉, 覃彩霞, 佟娟, 魏源送 (4358)
整合铁对厌氧铁氨氧化脱氮效能及微生物群落的影响	廖宏燕, 宋诚, 万柳杨, 时绍鹏, 王兴祖 (4366)
溶解氧对低碳源城市污水处理系统脱氮性能与微生物群落的影响	池玉蕾, 石炬, 任童, 王晓昌, 金鹏康 (4374)
间歇梯度曝气下缩短SRT强化短程SNEDPR系统脱氮除磷	张玉君, 李冬, 王歆鑫, 张杰 (4383)
生物膜系统中部分反硝化实现特性	于莉芳, 张兴秀, 张琼, 王晓玉, 彭党聪, 张日霞 (4390)
厌氧推流进水对反硝化除磷好氧颗粒污泥系统的影响	李冬, 曹思雨, 王琪, 张杰 (4399)
不同好氧/缺氧时长联合分区排泥优化生活污水短程硝化反硝化除磷颗粒系统运行	王文琪, 李冬, 高鑫, 张杰 (4406)
中国西南地区金属矿开采对矿区土壤重金属影响的Meta分析	张健琳, 瞿明凯, 陈剑, 杨兰芳, 赵永存, 黄标 (4414)
青藏高原典型流域土壤重金属分布特征及其生态风险评价	杜昊霖, 王莺, 王劲松, 姚玉璧, 周悦, 刘晓云, 芦亚玲 (4422)
电子垃圾拆解区土壤-农作物系统中镉元素的空间分布特征及其风险评价	张璐瑶, 赵科理, 傅伟军 (4432)
改性生物炭特性表征及对冶炼厂周边农田土壤铜镉形态的影响	王鑫宇, 孟海波, 沈玉君, 王佳锐, 张曦, 丁京涛, 周海宾, 李春燕, 程琼仪 (4441)
组配改良剂联合锌肥对土壤-水稻系统镉迁移转运的影响	周坤华, 周航, 王子钰, 刘雅, 刘佳伟, 辜娇峰, 曾鹏, 廖柏寒 (4452)
不同结构改良剂对铜镉污染土壤水稻生长和重金属吸收的影响	魏玮, 李平, 郎漫 (4462)
1株草螺属植物内生菌R-13的分离鉴定及对龙葵吸收土壤镉的影响	鹿杰, 刘月敏, 黄永春, 王常荣, 刘斌, 刘仲齐, 黄益宗, 黄雁飞, 张长波 (4471)
不同地区土壤古菌群落对重金属污染的响应	李雨桐, 杨杉, 张艺, 范例, 刘坤, 张晟 (4481)
高通量测序分析黄土高原退耕还林区土壤细菌群落特征	刘晓华, 魏天兴 (4489)
餐厨垃圾生物发酵液对黄土丘陵区土壤质量的影响试验	邵立明, 任俊达, 吕凡, 章骅, 何晶晶 (4500)
秦岭不同海拔土壤团聚体稳定性及其与土壤酶活性的耦合关系	马震菲, 胡汗, 李益, 郭鑫鑫, 任成杰, 赵发珠 (4510)
电活性微生物激活生物炭/零价铁协同钝化Cr(VI)及机制	廖聪坚, 赵晓蕾, 刘凯, 钟松雄, 李芳柏, 方利平, 叶挺进, 石虎砚 (4520)
降水变化对荒漠草原土壤呼吸的影响	蒿康伊, 张丽华, 谢忠奎, 赵锐锋, 王军锋, 郭亚飞, 高江平 (4527)
氮肥分施次数及硝化抑制剂对盆栽玉米N ₂ O排放的影响	符佩娇, 吉恒宽, 何秋香, 汤水荣, 王鸿浩, 伍延正, 孟磊 (4538)
负载NH ₄ ⁺ -N生物炭对土壤N ₂ O-N排放和NH ₃ -N挥发的影响	马晓刚, 何建桥, 陈玉蓝, 李德天, 刘川, 董建新, 郑学博 (4548)
微塑料添加对橘园土壤有机碳矿化的影响	张秀玲, 鄢紫薇, 王峰, 王玺, 徐晗, 胡荣桂, 严昶, 林杉 (4558)
1985~2019年中国全氟辛酸酯基化合物的动态物质流分析	王佳钰, 陈景文, 唐伟豪, 崔蕴晗, 王中钰, 宋国宝, 陈伟强 (4566)
《环境科学》征订启事(4201)	
《环境科学》征稿简则(4340)	
信息(4382, 4537, 4565)	

螺旋霉素废水处理过程中菌群结构、水质特征及抗性基因之间关系分析

武彩云^{1,2}, 李慧莉², 覃彩霞^{1,3}, 佟娟^{1,3,4*}, 魏源送^{1,3,4}

(1. 中国科学院生态环境研究中心环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100085; 2. 兰州理工大学土木工程学院, 兰州 730050; 3. 中国科学院生态环境研究中心水污染控制实验室, 北京 100085; 4. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 抗生素制药废水常含有大量抗生素抗性基因 (antibiotic resistance genes, ARG), 传播抗性污染的风险高于城市污水, 但目前人们对抗生素制药废水处理过程中 ARG 转归影响机制研究尚有不足. 本研究采用高通量测序考察某螺旋霉素制药废水厂 A²O 工艺过程中菌群结构变化, 并通过多种统计学分析方法考察菌群结构、水质特征及 ARG 之间的相互关系. 结果表明, 生物处理单元中污泥的菌群结构受进水水质影响较小, 其中厌氧和缺氧池中均以产甲烷菌与硫酸盐还原菌为优势菌, 好氧池和二沉池中优势菌群的功能较为复杂; A²O 系统对常规污染物去除效果较好, 但不能稳定削减潜在致病菌丰度. 水质特征、菌群结构和 ARG 之间存在显著相互影响关系, 其中废水处理过程中生物量、NH₄⁺-N 和化学需氧量 (chemical oxygen demand, COD) 与 ARG 和可移动遗传元件 (mobile genetic elements, MGE) 的分布密切相关. 在水相和泥相中对 ARG 和 MGE 产生显著影响的菌属不同, 而且泥相中有更多的潜在致病菌与 ARG 显著相关性, 即污泥中微生物同时获得耐药性和致病性的可能性比水相中高. 本研究可为今后抗生素制药废水处理过程的抗性污染控制提供科学参考.

关键词: 螺旋霉素制药废水; 菌群结构; 抗生素抗性基因 (ARG); 致病菌; 水质特征

中图分类号: X172; X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)09-4358-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202101086

Mutual Influence Between Microbial Community, Wastewater Characteristics, and Antibiotic Resistance Genes During Spiramycin Production Wastewater Treatment

WU Cai-yun^{1,2}, LI Hui-li², QIN Cai-xia^{1,3}, TONG Juan^{1,3,4*}, WEI Yuan-song^{1,3,4}

(1. State Key Joint Laboratory of Environment Simulation and Pollution Control, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 2. School of Civil Engineering, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China; 3. Department of Water Pollution Control, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 4. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Wastewater from antibiotic production usually contains a huge amount of antibiotic resistance genes (ARG). Therefore, it is essential to study the dissemination and control of antibiotic resistance during the treatment of antibiotic production wastewater. The mutual influence between microbial community evolution, wastewater characteristics, and ARG was investigated using high-throughput sequencing and a variety of statistical analysis methods. Results showed that the influent characteristics had only a marginal influence on the microbial community of each treatment section. Methanogenic bacteria and sulfate-reducing bacteria were the dominant microbes in the anaerobic and anoxic tank. Chemical oxygen demand (COD), NO₂⁻-N, and PO₄³⁻-P exhibited an intimate relationship with the microbial community, whereas biomass, NH₄⁺-N, and COD showed a strong correlation with ARG and mobile genetic elements (MGE). In the sludge, more genera (including pathogenic bacteria) were significantly correlated with ARG and MGE than that in the wastewater, indicating that bacteria in the sludge had a greater chance of acquiring pathogenicity and resistance. Therefore, more attention should be given to waste sludge from the treatment plants of antibiotic production wastewater. This research could provide further understanding of antibiotic resistance dissemination and control during wastewater treatment, especially for antibiotic production wastewater.

Key words: spiramycin production wastewater; microbial community structure; antibiotic resistance genes (ARG); pathogenic bacteria; wastewater characteristics

污水处理厂是抗生素抗性基因 (antibiotic resistance genes, ARG) 的重要储存库, 也是控制抗性污染传播的研究重点^[1-3]. 然而抗生素抗性基因在污水处理过程中变化的影响机制非常复杂, 目前仍处于黑箱状态^[4]. 已有研究表明, 污水处理过程中水质特征对菌群结构有重要影响^[5], 并且菌群结构^[6,7] 和水质特征^[3,8] 对 ARG 的丰度变化均有重要

影响, 因此有必要对污水处理过程中三者之间的关系进行深入分析. 抗生素制药废水是处理难度较大

收稿日期: 2021-01-11; 修订日期: 2021-03-08

基金项目: 国家自然科学基金项目 (51578535); 国家水体污染控制与治理科技重大专项 (2015ZX07203-005)

作者简介: 武彩云 (1995~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为抗生素抗性污染控制, E-mail: 2655630977@qq.com

* 通信作者, E-mail: huij@163.com

的工业废水之一,具有污染物浓度高、成分复杂、生物毒性大和难降解等特点^[9],常含有高浓度 COD、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ -N、残余抗生素以及高丰度的 ARG 和耐药菌^[6,10],也是向下游受纳水体传播 ARG 的重要源头. 抗生素制药废水中的 ARG 丰度往往高于城市污水中的 ARG 丰度,引起抗性污染传播的潜在风险更高^[11~13],更应引起人们的重视. 螺旋霉素是一种广泛使用的大环内酯类抗生素,具有 16 元环结构,常用于耳、鼻、喉和呼吸道感染、尿路感染以及脑膜炎等病症的治疗. 目前人们对螺旋霉素制药废水处理过程中的菌群结构变化及 ARG 分布特征研究较少,尚有待于进一步地考察与研究.

本课题组前期考察了某实际螺旋霉素制药废水处理厂 A²O 处理工艺全流程中,大环内酯类抗性基因 *ereA*、*ermB*、*ermF*、*mefA*、*mphB* 和 *ermX*,以及可移动遗传元件 (mobile genetic elements, MGE) *Tn916/1545*、*intI1* 和 *ISCR1* 的分布特征^[14]. 在此基础上,本研究重点考察螺旋霉素制药废水各处理单元的菌群结构的演替、水质特征及其对 ARG 转归的影响,探讨三者之间的影响关系,以期对抗生素废水处理过程中抗性污染控制提供科学参考.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究的样品同文献^[14],简述如下:样品取自于江苏省某螺旋霉素生产废水处理站的 A²O 工艺,于 2014 年 4 月 (春季) 和 2014 年 9 月 (秋季) 在调节池、厌氧池、缺氧池、好氧池和二沉池取样,分别标记为 S1~S5 (春季) 和 A1~A5 (秋季). 前期研究已对废水处理过程的水质和 ARG 分布变化进行了分析与讨论^[14],本研究重点考察菌群结构在废水处理过程中的演替,探讨其对水质特征和 ARG 的影响.

1.2 菌群结构分析

DNA 样品与文献^[14]一致,本研究选择引物 515F/806R,使用巢式 PCR 对 DNA 样品 16S 的 V4 区进行扩增,通过 Illumina MiSeq 进行高通量测序,将所得序列通过 OTUs (operational taxonomic units) 以 97% 的相似度进行聚类,并使用 RDP (ribosomal database project) 分类器对样品中的序列进行分类,从而分析各样品中菌群结构的演变情况.

1.3 数据分析

取每个样品丰度排前 10 的优势菌属,通过 Heml 1.0 软件制作菌群结构的热图,并对其基于欧氏距离的相似度进行聚类分析;采用 Gephi 0.9.1 软件,基于 Spearman 相关性分析,对水/泥相中 ARG

和菌群结构进行网络分析,考察螺旋霉素制药废水处理过程中二者的相关性;采用 Canoco 5.0 (Microcomputer Power, US) 软件,通过主成分分析 (principal component analysis, PCA) 对各样品微生物群落、ARG 和 MGE 的分布进行聚类,并通过普鲁克分析 (procrustes analysis, PA) 考察 ARG 和菌群结构的关系,通过冗余分析 (redundancy analysis, RDA) 考察废水特性对 ARG、MGE 和菌群结构的影响.

2 结果与讨论

2.1 污水处理过程中水质特征变化

前期的研究仅描述了螺旋霉素制药废水在 A²O 工艺过程中常规理化指标的去除效果^[14],但未对处理过程中理化指标变化规律进行详细探讨. 本研究为了考察菌群结构演替与各污水处理单元水质特征的关系,对理化指标在废水处理过程中的变化进行了进一步分析 (图 1). 由图 1 可知,螺旋霉素制药废水具有高 COD、 NH_4^+ -N、 NO_3^- -N 以及低 PO_4^{3-} -P 的水质特征,春季进水 COD 比秋季进水高 $800 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,分别为 $2280 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $1480 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,但春、秋季进水的 NH_4^+ -N 浓度相似,分别为 $223.52 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $218.61 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 秋季进水中 NO_3^- -N 浓度为 $49.42 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,比春季进水高 $6.59 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 春、秋季污水处理过程中,由于反硝化作用, NO_3^- -N 在厌氧后显著下降,并在好氧段由于硝化作用显著增加,导致二沉池内 NO_3^- -N 甚至高于进水的 NO_3^- -N. 值得注意的是,在缺氧阶段后 NO_3^- -N 均略有升高 (增加了 $1.72 \sim 4.99 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$),这可能与缺氧池内因好氧池混合液的回流而引入大量的硝酸盐但未能及时进行反硝化作用有关. 春、秋两季进水中均未检出 NO_2^- -N,但由于硝化反硝化作用,秋季出水中 NO_2^- -N 增加到 $1.64 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 在春季各处理单元样品中均未检出 PO_4^{3-} -P,在秋季进水中检出浓度为 $1.86 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,出水仅为 $0.05 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 总体而言, A²O 工艺对 COD 和 NH_4^+ -N 的削减效果较好;春、秋季 COD 的削减率分别为 94.08% 和 89.86%, NH_4^+ -N 的削减率分别为 89.55% 和 86.90%;但出水中仍含有高浓度的 NO_3^- -N ($66.07 \sim 68.08 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$).

2.2 菌群结构的变化

通过对春、秋两季螺旋霉素制药废水在生物处理过程中属水平菌群结构进行主成分分析 (PCA, 图 2),发现各处理单元的样品中菌群结构大体可分为 3 大类:春、秋季的调节池、厌氧池和缺氧池为一类;春季好氧池、二沉池和秋季好氧池为一类;秋季二

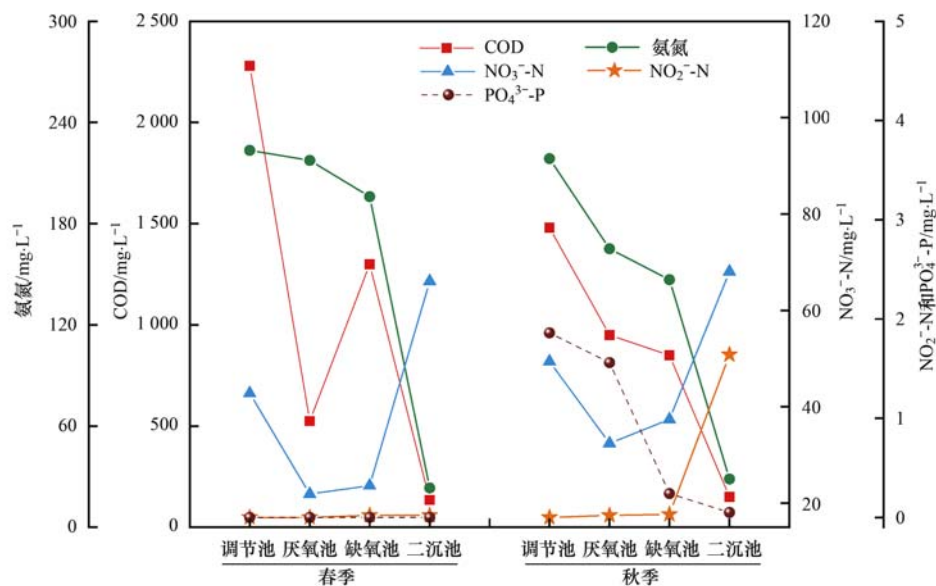
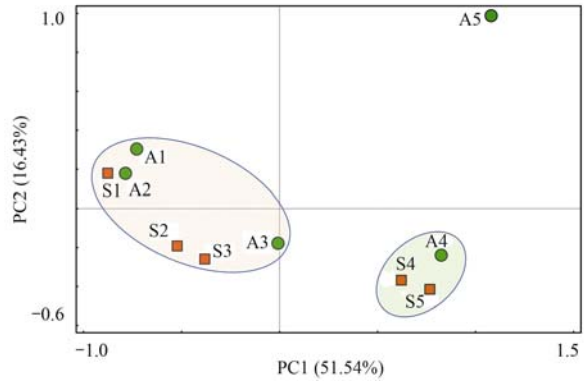


图1 废水处理过程中水质特征的变化

Fig. 1 Variations of wastewater characteristics during wastewater treatment

沉池单独为一类. 这个结果表明:①虽然春季和秋季进水的 COD 相差 $800\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,但并未引起进水(调节池)的微生物菌群结构产生显著差异;②进水中的菌群结构与厌氧和缺氧阶段的菌群结构相似,这可能与进水储存于调节池中,使其处于厌氧或缺氧状态有关;③春、秋季的好氧池内菌群结构相似,也未受到进水水质不同的影响,但均与厌氧、缺氧池的菌群结构有较大差异;④只有秋季二沉池的菌群结构与其他样品差异较大,这可能跟秋季二沉池内的 NO_2^--N ($1.64\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 高于其他工艺单元有关. 但污水处理过程中菌群结构的变化受到的影响因素较多,影响机制也较复杂,目前仍需进一步探讨影响微生物菌群结构的各种驱动因素.



S1 ~ S5 表示春季节节池、厌氧池、缺氧池、好氧池和二沉池样品; A1 ~ A5 表示秋季节节池、厌氧池、缺氧池、好氧池和二沉池样品,下同

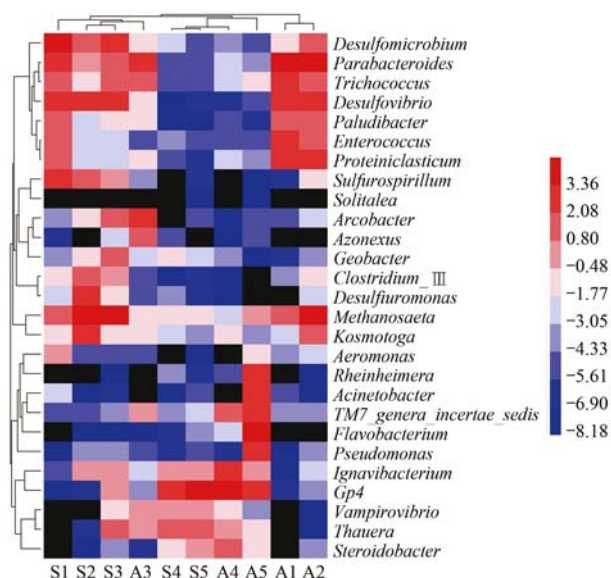
图2 基于属水平菌群结构的PCA分析

Fig. 2 PCA analysis of microbial community at the genus level

通过热图进一步分析发现(图3),春季节节池中的优势菌属为 *Desulfomicrobium* (14.93%)、

Parabacteroides (10.18%)、*Sulfurospirillum* (7.37%) 和 *Desulfovibrio* (5.93%) 等,秋季节节池的优势菌属为 *Parabacteroides* (14.75%)、*Proteiniclasticum* (9.97%)、*Trichococcus* (8.22%) 和 *Desulfovibrio* (7.57%) 等. *Desulfomicrobium* 是一种在 SO_4^{2-} 废水厌氧处理单元中经常检出的硫酸盐还原菌(sulfate reducing bacteria, SRB),可以以乳酸、丙酮酸、甘油、乙酸盐和乙醇为电子供体还原硫酸盐^[15]; *Desulfovibrio* 也是一种专性厌氧的SRB,并可代谢多种碳水化合物,少数菌株还有生物固氮能力^[16]; *Parabacteroides* 是有糖酵解作用的专性厌氧菌^[17]; *Sulfurospirillum* 菌属中的大多细菌可在有毒底物条件下生存,可吸收有机卤代物,也可以以硝酸盐和硫化化合物为电子受体削减污染物,还可通过降解高氯酸盐促进自身生长^[18,19]; *Proteiniclasticum* 是严格厌氧的蛋白水解细菌,也常在反硝化系统出现^[20]; *Trichococcus* 厌氧时可氧化糖类产酸,也可利用不同碳源在低温和高盐度条件下生存^[21,22].

春季厌氧池的优势菌属为 *Methanosaeta* (25.06%)、*Kosmotoga* (6.24%)、*Desulfovibrio* (5.15%) 和 *Desulfuromonas* (4.81%) 等;秋季厌氧池的优势菌属与春季相似,为 *Parabacteroides* (15.36%)、*Methanosaeta* (12.43%)、*Desulfovibrio* (6.48%) 和 *Proteiniclasticum* (4.42%) 等,说明厌氧池内由产甲烷菌 *Methanosaeta*, 水解菌如 *Proteiniclasticum* 和产酸菌如 *Parabacteroides* 主导. *Desulfuromonas* 可通过氧化乙酸盐实现自身生长,也可降解有机酸^[23]; 而 *Ignavibacterium* 可利用多种糖和胺产生有机酸,提高有机污染物的降解效率,



Desulfomicrobium 为脱硫微生物属, *Parabacteroides* 为副杆状菌属, *Trichococcus* 为毛球菌属, *Desulfovibrio* 为脱硫弧菌属, *Paludibacter* 为沼杆菌属, *Enterococcus* 为肠球菌, *Sulfurospirillum* 为硫磺单胞菌属, *Arcobacter* 为弓形杆菌属, *Azonexus* 为固氮卷菌属, *Geobacter* 为地杆菌属, *Clostridium_III* 为梭菌属 III, *Desulfuromonas* 为脱硫单胞菌属, *Methanosaeta* 为甲烷八叠球菌, *Aeromonas* 为气单胞菌属, *Acinetobacter* 为不动杆菌属, *Flavobacterium* 为黄杆菌属, *Pseudomonas* 为假单胞菌属, *Ignavibacterium* 为懒小杆菌属, *Vampirovibrio* 为吸血弧菌属, *Thauera* 为陶厄氏菌属, *Steroidobacter* 为甾类杆菌属; 每个样品取前 10 个菌属, 微生物丰度以 2 为底的对数处理

图 3 属水平菌群结构热图

Fig. 3 Heatmap of the microbial community at the genus level

Ignavibacterium 也是阿莫西林废水、林可霉素废水厌氧处理单元的优势菌^[24,25]。虽然厌氧池中 *Thauera* (0%~0.01%) 和 *Arcobacter* (0.22%~0.47%) 丰度不高, 但这些菌属在厌氧条件下会以 NO_3^- 为电子受体进行呼吸作用而生长^[26], 属于反硝化功能菌, 对厌氧过程 NO_3^- -N 的去除起到促进作用。此外, 适量的硝酸盐可使产甲烷和反硝化耦合, 且当 COD/NO_3^- -N 为 121.43~15.18 时耦合效果最佳^[27], 本研究中厌氧池内 COD/NO_3^- -N 比值为 23.95~29.29, 厌氧阶段 NO_3^- -N 降低了 16.99~20.91 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 由此推断, 本研究厌氧过程中硝氮的削减除了反硝化作用外, 可能还与产甲烷和反硝化耦合作用有关。

春季缺氧池的菌群结构与厌氧池相似, 优势菌仍以产甲烷功能菌和脱硫功能菌为主, 如 *Methanosaeta* (11.38%)、*Desulfomicrobium* (6.69%) 和 *Desulfovibrio* (4.44%) 等, 并且缺氧池内兼具降解有机物和反硝化的功能菌 *Arcobacter*、*Geobacter* 和 *Thauera* 等菌属丰度升高; 秋季缺氧池优势菌属为反硝化功能菌 *Arcobacter* (5.60%) 和 *Azonexus* (2.86%) 以及发酵功能菌 *Parabacteroides* (4.64%)

和 *Trichococcus* (1.82%) 等。此外, 秋季缺氧池中反硝化菌的丰度高于春季缺氧池, 这与秋季缺氧池中 NO_3^- -N 浓度较春季更高有关。此外, 厌氧池中反硝化菌主要为 *Thauera* 和 *Arcobacter*, 缺氧池为 *Thauera*、*Arcobacter* 和 *Azonexus*, 可见 *Thauera* 对氮的去除发挥了重要作用。已有研究也发现抗生素废水处理过程中 *Thauera* 是重要的反硝化功能菌^[28,29]。

春季好氧池和二沉池的优势菌属均为 *Gp4* 和 *Thauera*。秋季好氧池中的优势菌属和春季好氧池相似, 但二沉池的优势菌群变为 *Flavobacterium* (23.60%)、*Pseudomonas* (9.18%)、*Gp4* (9.02%) 和 *Acinetobacter* (7.72%) 等。春、秋季二沉池中 *Flavobacterium* 丰度均升高 (增幅为 0.08% 和 23.60%), 好氧池中氨氧化菌 (ammonia oxidizing bacteria, AOB) *Nitrosomonas* 和亚硝酸盐氧化菌 (nitrite oxidizing bacteria, NOB) *Nitrospira* 的丰度分别为 0.02%~0.10% 和 0.09%~0.48%, 对好氧阶段氨氮去除起到重要贡献。有研究通过功能基因定量分析认为, 螺旋霉素废水处理过程中氨氧化古菌 (ammonia-oxidizing archaea, AOA) 在脱氮过程中可能比 AOB 起到更重要的作用^[30], 但在本研究中未检测到 AOA 的丰度。*Nitrospira* 在春季二沉池中的丰度高于秋季二沉池 (分别为 0.43% 和 0.17%), 说明春季二沉池中亚硝酸盐 NO_2^- -N 被 NOB 氧化成 NO_3^- -N 的几率更高, 不易产生 NO_2^- -N 累积现象。此外, *Flavobacterium* 在秋季二沉池的丰度高达 23.60%, 该菌属可还原 NO_3^- -N 为 NO_2^- -N, 说明二沉池内可能继续发生反硝化作用, 并可能导致 NO_2^- -N 累积。因此, 秋季二沉池内相对低丰度的 *Nitrospira* 和高丰度的 *Flavobacterium* 的存在, 是该池内 NO_2^- -N 高于其他处理单元的主要原因。

2.3 潜在致病菌的变化

由于潜在致病菌在抗生素的选择压力下可能产生耐药性, 从而兼具致病性和耐药性, 因此, 本研究根据 VFDB (<http://www.mgc.ac.cn/VFs/>) 数据库中确定的致病菌菌属类别, 考察了螺旋霉素制药废水处理过程中潜在致病菌的丰度变化情况。这些致病菌菌属中包含了致病菌株, 可以作为污水处理过程中细菌潜在致病性变化的参考。

如图 4 所示, 进水中存在丰度较高的潜在致病菌 (总丰度为 11.73%~13.78%), 包括 *Desulfovibrio*、*Enterococcus*、*Aeromonas*、*Clostridium*、*Acinetobacter* 和 *Pseudomonas*, 厌氧过程对部分潜在致病菌的削减较为明显, 例如 *Enterococcus* 削减了 3.18%~4.04%, 但也会使部分潜在致病菌如 *Clostridium* 的丰度升高; 秋季缺氧过程对

Desulfovibrio 和 *Enterococcus* 的削减显著优于春季。此外,几乎所有潜在致病菌的丰度在好氧池均显著下降,说明好氧处理工艺是削减潜在致病菌的主要贡献单元。而二沉池中潜在致病菌丰度增加(春季和秋季分别升高了 0.04% 和 17.38%),尤其是秋季二沉池中 *Acinetobacter* 和 *Pseudomonas* 的丰度大幅增加,这可能是由于秋季二沉池 NO_2^- -N 的积累,促进了这两种具有反硝化功能的潜在致病菌的增殖。总体来说,春季二沉池出水中潜在致病菌的总丰度低于进水中总丰度,而秋季二沉池出水中潜在致病菌的总丰度则高于进水,可见螺旋霉素废水处理过程对潜在致病菌总量的削减效果并不稳定。

2.4 水质特征对菌群结构和 ARG 的影响

本课题组前期研究结果表明,螺旋霉素制药废水经过 A^2O 工艺处理, *ereA*、*ermB*、*ermF*、*mefA*、*mphB* 和 *Tn916/1545* 的绝对丰度减少,而 *ermX*、*intI1* 和 *ISCR1* 的绝对丰度则有所增加,并且 *ereA*、*mefA* 和 *Tn916/1545* 在春季的削减效果优于秋季^[14]。在此基础上,本研究通过 RDA 分析进一步考察废水处理过程中水质特性对 ARG 和 MGE 的分布以及对菌群结构演变的影响(图 5)。由图 5(a)可知, RDA 分析结果对 ARG 和 MGE 变化的解释度为 92.20%,其中轴 1 的解释度为 70.68%,轴 2 的解释度为 17.76%。16S rRNA、 NH_4^+ -N 和 COD 对 ARG 和 MGE 的分布有重要影响,其中 16S rRNA 代表系统中的生物量^[31],其与 *ereA* 和 *ermB* 的分布密切相

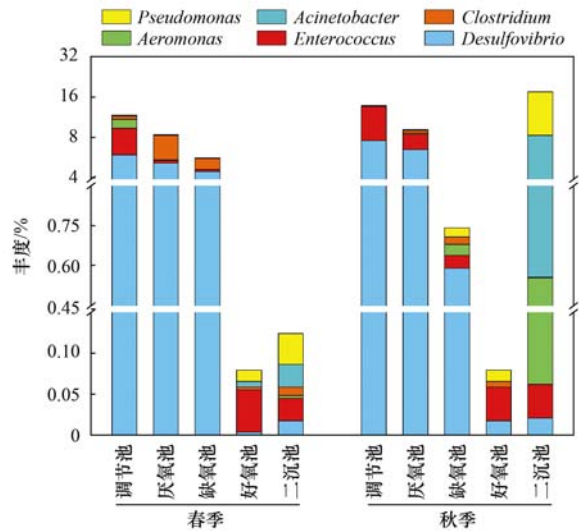
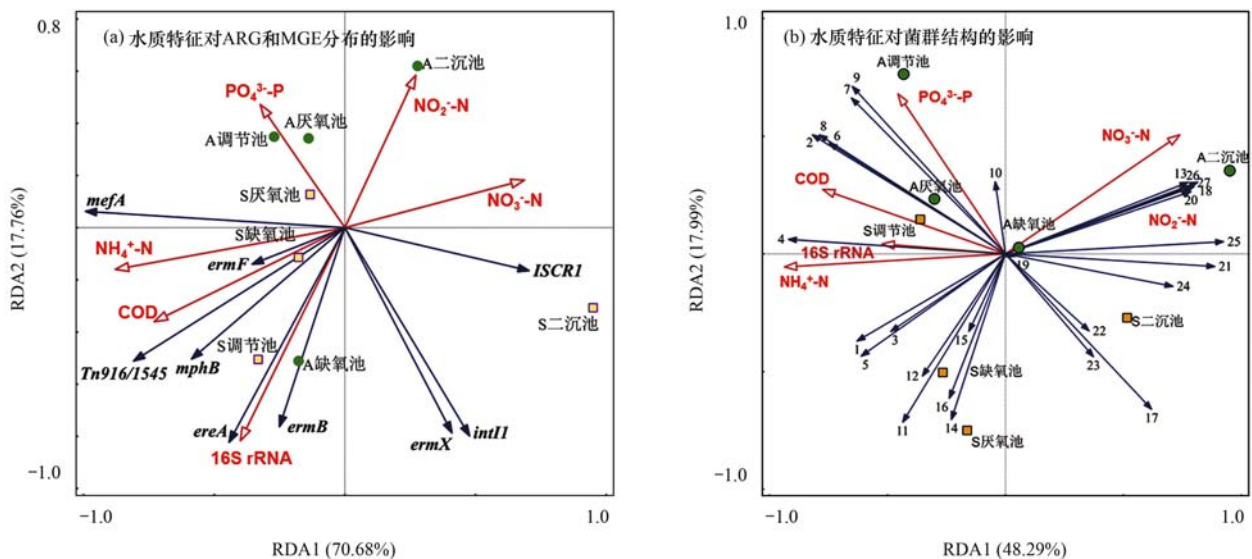


图4 废水处理过程中潜在致病菌的丰度变化

Fig. 4 Variation of potentially pathogenic bacteria during wastewater treatment

关,而 COD 与 *Tn916/1545*、*mphB* 和 *ermF* 的分布密切相关。另外, *intI1* 通常被看作 ARG 水平转移的重要标志物^[32];前期研究结果表明^[14],春季、秋季出水中 *ermX* 绝对和相对丰度均呈增加趋势,本研究 RDA 分析发现 *ermX* 与 *intI1* 显著相关,说明 *ermX* 极有可能发生了水平转移,因而导致出水中 *ermX* 的升高。

如图 5(b)所示,水质特征对螺旋霉素制药废水处理过程中菌群结构变化的解释度为 94.40%,其中轴 1 的解释度为 48.29%,轴 2 的解释度为 17.99%。



S 表示春季样品, A 表示秋季样品; 红色箭头代表环境变量, 蓝色箭头代表 ARG、MGE 和物种变量(属水平): 1. *Desulfomicrobium*; 2. *Parabacteroides*; 3. *Sulfurospirillum*; 4. *Desulfovibrio*; 5. *Methanosaeta*; 6. *Paludibacter*; 7. *Enterococcus*; 8. *Trichococcus*; 9. *Proteiniclasticum*; 10. *Aeromonas*; 11. *Clostridium*_III; 12. *Kosmotoga*; 13. *Acinetobacter*; 14. *Desulfuromonas*; 15. *Arcobacter*; 16. *Geobacter*; 17. *Ignavibacterium*; 18. *TM7_genera_incertae_sedis*; 19. *Azonexus*; 20. *Pseudomonas*; 21. *Gp4*; 22. *Vampirovibrio*; 23. *Thauera*; 24. *Steroidbacter*; 25. *Solitalea*; 26. *Rheinheimera*; 27. *Flavobacterium*

图5 水质特征对 ARG、MGE 分布以及菌群结构的影响

Fig. 5 Influence of wastewater characteristics on the distribution of ARG/MGE and microbial community structure

COD、 NO_2^- -N 和 PO_4^{3-} -P 与部分微生物密切正相关: COD 与 *Parabacteroides*、*Paludibacter* 和 *Trichococcus* 显著正相关,其中 *Parabacteroides* 通过糖酵解作用产生乙酸、琥珀酸和少量其他酸^[17],*Paludibacter* 会发酵各种糖类产生乙酸盐、丙酸盐和琥珀酸盐,并可参与生物缺氧系统高浓度 COD 的生物降解^[33, 34],*Trichococcus* 会发酵糖类,可见这 3 种细菌均对有机物的产酸发酵过程起作用,因此其丰度变化与系统中与 COD 的变化密切相关; NO_2^- -N 与 *Acinetobacter*、*TM7_genera_incertainae_sedis*、*Pseudomonas*、*Rheinheimera* 和 *Flavobacterium* 正相关,其中 *Pseudomonas* 和 *Flavobacterium* 具有反硝化功能,尤其在秋季伴随二沉池中 NO_2^- -N 的升高, *Pseudomonas* 和 *Flavobacterium* 的丰度也大幅升高(增幅为 9.17%~23.37%),从而促进反硝化作用的进行.因此, NO_2^- -N 对秋季二沉池的菌群结构变化有重要影响.此外, PO_4^{3-} -P 对 *Enterococcus* 和 *Proteiniclasticum* 的正向影响较大, 16S rRNA 和 NH_4^+ -N 与 *Desulfovibrio* 密切正相关.

2.5 ARG、MGE 和菌群结构之间的关系

对春、秋季螺旋霉素制药废水在生物处理过程中 ARG 和 MGE 的分布进行 PCA 分析(图 6). 春秋两季各处理单元的 ARG 和 MGE 分布特征可分为 3 类:春、秋季的调节池、厌氧池和缺氧池为一类,春、秋季的好氧池为一类,春、秋季的二沉池为一类.对比菌群结构 PCA 分析结果可知(图 2),除春、秋季的二沉池的菌群结构差异较大,但 ARG 和 MGE 的分布相似之外,其他样品的菌群结构的聚类、ARG 和 MGE 分布的聚类结果一致.进一步通过 Procrustes 分析考察微生物群落与 ARG 和 MGE 之

间的关联度(图 7). 结果表明,轴 1 和轴 2 之间相关系数 R 分别为 0.93 和 0.80, 59.00% 的 ARG 和 MGE 分布变化可以由菌群结构演替来解释,表明菌群结构对 ARG 和 MGE 的分布有重要影响.

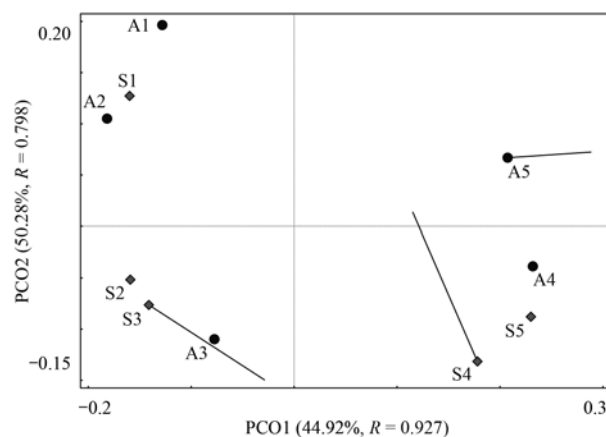


图 7 ARG 和 MGE 与菌群结构的 Procrustes 分析

Fig. 7 Procrustes analysis of the relationship between ARG, MGE, and microbial community structure

基于 Spearman 相关性对水相(调节池、二沉池)及泥相(厌氧池、缺氧池和好氧池)的 ARG、MGE 和菌群结构分别进行网络分析(图 8),结果表明无论在水相或泥相中,与 *mefA* 显著相关的微生物种类最多,并且这些微生物(如 *Desulfovibrio* 和 *Pseudomonas*)是部分处理单元中的优势菌,且大多数菌属的丰度在整个处理过程中呈下降趋势,说明本研究 *mefA* 潜在宿主微生物丰度的削减对 *mefA* 的去除有重要意义.同时, *int11* 在水相和泥相中均与 *ermX* 显著正相关, *ermX* 在水相中与 *Ignavibacterium* 显著正相关,在泥相中与 *TM7_genera_incertainae_sedis* 显著正相关,并且这两种细菌的丰度在整个抗生素废水生物处理过程中呈上升趋势,这也可以解释前期研究所发现的 *ermX* 和 *int11* 的丰度在出水中升高的现象^[14].

此外, ARG 在水相和泥相中分别与不同的菌属显著正相关,如 *ermX* 在水相中与 *Ignavibacterium* 显著相关,而在泥相中与 *TM7_genera_incertainae_sedis* 显著相关; *ermB* 在水相中与 *Geobacter* 显著相关,而在泥相中与 *Acinetobacter* 显著相关; *mphB* 在水相中不与任何微生物显著正相关,而在泥相中与 *Desulfomicrobium*、*Sulfurospirillum*、*Clostridium_III* 和 *Geobacter* 显著相关等.由此可见,泥相中比水相中存在更多与 ARG 显著相关的潜在宿主菌类型.此外,可移动遗传元件 *Tn916/1545* 与微生物的显著相关性在泥相中也比水相中更突出.由于 *Tn916/1545* 可以接合在染色体和质粒上,并且可通过细胞间的接触在微生物之间转移^[35],因此,以上结果说明泥相

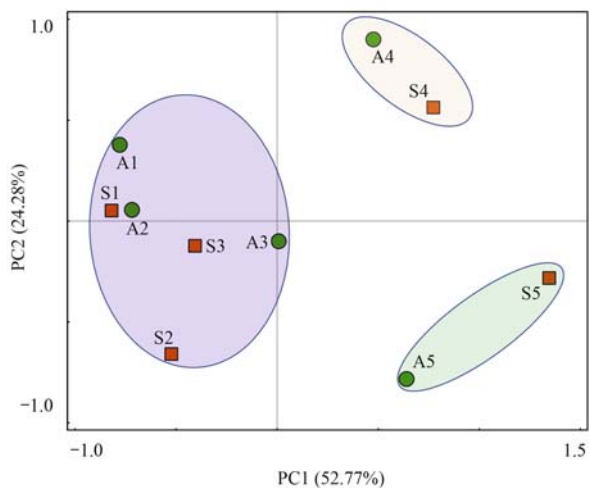


图 6 污水处理过程中 ARG 和 MGE 分布 PCA 分析

Fig. 6 PCA analysis of the distribution of ARG and MGE during wastewater treatment

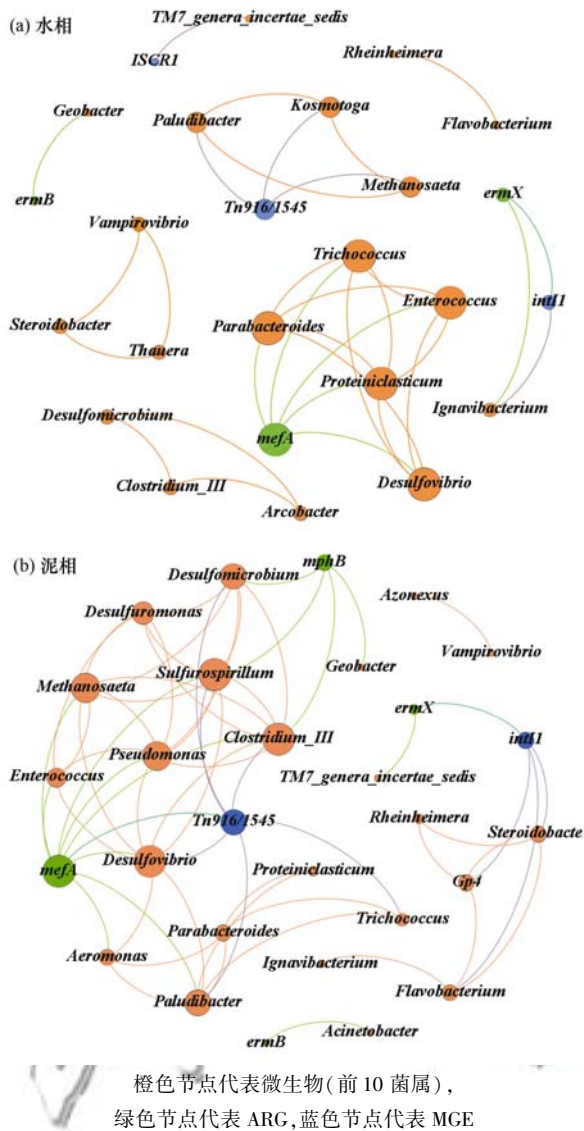


图8 水相和泥相中 ARG、MGE 和菌群结构的关系

Fig. 8 Relationship between ARG, MGE, and microbial community structure in the water phase and sludge phase

中细菌传播抗性污染几率更大。

另外,水相和泥相中 ARG 与潜在致病菌的相关性也明显不同,水相中仅 *mefA* 与 *Enterococcus* 显著正相关,而在泥相中,所有目标 ARG 均至少与一种潜在致病菌显著正相关,并且泥相中潜在致病菌与其他微生物的显著相关性也比水相中更加明显,尤其是 *Pseudomonas* 在泥相中与 *Desulfomicrobium*、*Sulfurospirillum* 和 *Methanosaeta* 等 7 种微生物显著相关,而在水相中不与任何微生物显著相关;*Clostridium* 在泥相中与 *Desulfomicrobium*、*Sulfurospirillum* 和 *Desulfovibrio* 等 6 种微生物显著相关,而在水相中仅与 *Desulfomicrobium* 和 *Arcobacter* 显著正相关。由此可见,泥相中 ARG 与潜在致病菌的显著相关性较水相中更为复杂,表明污泥中微生物同时获得耐药性和致病性的可能性比水相中的微生物更大。

3 结论

(1)螺旋霉素制药废水 A^2O 工艺处理过程中,春季和秋季各单元菌群结构受进水水质影响较小;其中厌氧和缺氧池中以产甲烷菌与硫酸盐还原菌为优势菌,好氧池和二沉池中优势菌功能则相对较为复杂;整个废水处理系统对潜在致病菌的削减效果不稳定。

(2)水质特征和菌群结构对 ARG 和 MGE 分布均有重要影响,且水质特征和菌群结构之间也存在显著的相互影响关系。生物量、 NH_4^+-N 和 COD 对 ARG 和 MGE 的分布密切相关,而在水相和泥相中对 ARG 分布有显著影响的菌属不同。

(3)螺旋霉素制药废水在 A^2O 工艺处理过程中,泥相中 ARG 与潜在致病菌的显著相关性较水相中更为复杂,污泥中微生物同时获得耐药性和致病性的可能性比水相中的可能性高,是今后抗性污染控制的重点关注对象。

参考文献:

- [1] Rizzo L, Manaia C, Merlin C, et al. Urban wastewater treatment plants as hotspots for antibiotic resistant bacteria and genes spread into the environment: a review [J]. Science of the Total Environment, 2013, **447**: 345-360.
- [2] Rodríguez-Molina D, Mang P, Schmitt H, et al. Do wastewater treatment plants increase antibiotic resistant bacteria or genes in the environment? Protocol for a systematic review[J]. Systematic Reviews, 2019, **8**(1), doi: 10.1186/s13643-019-1236-9.
- [3] Guo J H, Li J, Chen H, et al. Metagenomic analysis reveals wastewater treatment plants as hotspots of antibiotic resistance genes and mobile genetic elements[J]. Water Research, 2017, **123**: 468-478.
- [4] Manaia C M, Rocha J, Scaccia N, et al. Antibiotic resistance in wastewater treatment plants: tackling the black box [J]. Environment International, 2018, **115**: 312-324.
- [5] Ouyang E M, Liu Y, Ouyang J T, et al. Effects of different wastewater characteristics and treatment techniques on the bacterial community structure in three pharmaceutical wastewater treatment systems [J]. Environmental Technology, 2019, **40** (3): 329-341.
- [6] Aydin S, Ince B, Ince O. Assessment of anaerobic bacterial diversity and its effects on anaerobic system stability and the occurrence of antibiotic resistance genes [J]. Bioresource Technology, 2016, **207**: 332-338.
- [7] Jia S Y, Bian K Q, Shi P, et al. Metagenomic profiling of antibiotic resistance genes and their associations with bacterial community during multiple disinfection regimes in a full-scale drinking water treatment plant[J]. Water Research, 2020, **176**, doi: 10.1016/j.watres.2020.115721.
- [8] Narciso-da-Rocha C, Rocha J, Vaz-Moreira I, et al. Bacterial lineages putatively associated with the dissemination of antibiotic resistance genes in a full-scale urban wastewater treatment plant [J]. Environment International, 2018, **118**: 179-188.
- [9] 魏健, 何锦焱, 宋永会, 等. 臭氧催化氧化-BAF 深度处理抗生素废水效能及微生物群落结构分析[J]. 环境科学学报, 2020, **40**(6): 2090-2100.

- [10] Wang M M, Liu H L, Cheng X M, *et al.* Hydrothermal treatment of lincomycin mycelial residues: antibiotic resistance genes reduction and heavy metals immobilization[J]. *Bioresource Technology*, 2019, **271**: 143-149.
- [11] 刘苗苗, 张昱, 李栋, 等. 制药废水受纳河流中四环素抗药基因及微生物群落结构变化研究[J]. *环境科学学报*, 2010, **30**(8): 1551-1557.
- [12] Guardabassi L, Petersen A, Olsen J E, *et al.* Antibiotic resistance in *Acinetobacter* spp. isolated from sewers receiving waste effluent from a hospital and a pharmaceutical plant[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1998, **64**(9): 3499-3502.
- [13] 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.
- [14] 覃彩霞, 佟娟, 申佩弘, 等. 螺旋霉素制药废水处理过程中耐药菌和抗性基因的转归特征[J]. *环境科学*, 2015, **36**(9): 3311-3318.
- [15] Huang H, Biswal B K, Chen G H, *et al.* Sulfidogenic anaerobic digestion of sulfate-laden waste activated sludge: evaluation on reactor performance and dynamics of microbial community[J]. *Bioresource Technology*, 2020, **297**, doi: 10.1016/j.biortech.2019.122396.
- [16] Wang Y B, Feng M Q, Liu Y H, *et al.* Comparison of three types of anaerobic granular sludge for treating pharmaceutical wastewater[J]. *Journal of Water Reuse and Desalination*, 2018, **8**(4): 532-543.
- [17] Sakamoto M, Benno Y. Reclassification of *Bacteroides distasonis*, *Bacteroides goldsteinii* and *Bacteroides merdae* as *Parabacteroides distasonis* gen. nov., comb. nov., *Parabacteroides goldsteinii* comb. nov. and *Parabacteroides merdae* comb. nov. [J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2006, **56**(7): 1599-1605.
- [18] Hubert C, Voordouw G. Oil field souring control by nitrate-reducing *Sulfurospirillum* spp. that outcompete sulfate-reducing bacteria for organic electron donors [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2007, **73**(8): 2644-2652.
- [19] Yin P N, Guo J B, Xiao S M, *et al.* Rapid of cultivation dissimilatory perchlorate reducing granular sludge and characterization of the granulation process [J]. *Bioresource Technology*, 2019, **276**: 260-268.
- [20] Pan H P, Yang X N, Zhong Y M, *et al.* Response of environmental variables and microbial community to sodium percarbonate addition to contaminated sediment [J]. *Chemosphere*, 2018, **211**: 500-509.
- [21] Liu J R, Tanner R S, Schumann P, *et al.* Emended description of the genus *Trichococcus*, description of *Trichococcus collinsii* sp. nov., and reclassification of *Lactosphaera pasteurii* as *Trichococcus pasteurii* comb. nov. and of *Ruminococcus palustris* as *Trichococcus palustris* comb. nov. in the low-G + C gram-positive bacteria[J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2002, **52**(4): 1113-1126.
- [22] Strepis N, Naranjo H D, Meier-Kolthoff J, *et al.* Genome-guided analysis allows the identification of novel physiological traits in *Trichococcus* species[J]. *BMC Genomics*, 2020, **21**(1), doi: 10.1186/s12864-019-6410-x.
- [23] Xin X D, Chen B Y, Hong J M. Unraveling interactive characteristics of microbial community associated with bioelectric energy production in sludge fermentation fluid-fed microbial fuel cells[J]. *Bioresource Technology*, 2019, **289**, doi: 10.1016/j.biortech.2019.121652.
- [24] Meng L W, Li X K, Wang X R, *et al.* Amoxicillin effects on functional microbial community and spread of antibiotic resistance genes in amoxicillin manufacture wastewater treatment system [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2017, **61**: 110-117.
- [25] Li Y C, Zhou J, Gong B Z, *et al.* Cometabolic degradation of lincomycin in a Sequencing Batch Biofilm Reactor (SBBR) and its microbial community [J]. *Bioresource Technology*, 2016, **214**: 589-595.
- [26] Zheng W S, Liang Q Y, Du Z J. *Thauera lacus* sp. nov., isolated from a saline lake in Inner Mongolia[J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2019, **69**(12): 3786-3791.
- [27] Yi X H, Wu R R, Han D H, *et al.* Adaptation of methane recovery, sludge characteristics and evolution of microbial community response to elevated nitrate under the methanogenic condition[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, **258**, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.120713.
- [28] Zhang M Q, Yuan L, Li Z H, *et al.* Tetracycline exposure shifted microbial communities and enriched antibiotic resistance genes in the aerobic granular sludge [J]. *Environment International*, 2019, **130**, doi: 10.1016/j.envint.2019.06.012.
- [29] Guo N, Ma X F, Ren S J, *et al.* Mechanisms of metabolic performance enhancement during electrically assisted anaerobic treatment of chloramphenicol wastewater[J]. *Water Research*, 2019, **156**: 199-207.
- [30] Zhang Y, Tian Z, Liu M M, *et al.* High concentrations of the antibiotic spiramycin in wastewater lead to high abundance of ammonia-oxidizing archaea in nitrifying populations [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49**(15): 9124-9132.
- [31] Tong J, Lu X T, Zhang J Y, *et al.* Factors influencing the fate of antibiotic resistance genes during thermochemical pretreatment and anaerobic digestion of pharmaceutical waste sludge [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **243**: 1403-1413.
- [32] Gillings M R, Gaze W H, Pruden A, *et al.* Using the class 1 integron-integrase gene as a proxy for anthropogenic pollution [J]. *The ISME Journal*, 2015, **9**(6): 1269-1279.
- [33] Ueki A, Akasaka H, Suzuki D, *et al.* *Paludibacter propionigenes* gen. nov., sp. nov., a novel strictly anaerobic, Gram-negative, propionate-producing bacterium isolated from plant residue in irrigated rice-field soil in Japan [J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2006, **56**(1): 39-44.
- [34] Si Z H, Song X S, Wang Y H, *et al.* Intensified heterotrophic denitrification in constructed wetlands using four solid carbon sources: denitrification efficiency and bacterial community structure[J]. *Bioresource Technology*, 2018, **267**: 416-425.
- [35] Clewell D B, Flannagan S E, Jaworski D D, *et al.* Unconstrained bacterial promiscuity: the Tn916-Tn1545 family of conjugative transposons[J]. *Trends in Microbiology*, 1995, **3**(6): 229-236.

CONTENTS

Spatiotemporal Distribution and Health Impacts of PM _{2.5} and O ₃ in Beijing, from 2014 to 2020	CHEN Jing, PENG Jin-long, XU Yan-sen (4071)
High-resolution Estimation of Spatio-temporal Variation in PM _{2.5} Concentrations in the Beijing-Tianjin-Hebei Region	YANG Xiao-hui, SONG Chun-jie, FAN Li-hang, <i>et al.</i> (4083)
Impacts of Anthropogenic Emission Reduction and Meteorological Conditions on PM _{2.5} Pollution in Typical Cities of Beijing-Tianjin-Hebei in Winter	SHAO Xuan-yi, WANG Xiao-qi, ZHONG Yi-sheng, <i>et al.</i> (4095)
Influence of Pollutant Transport from Both Sides of the Taihang Mountains on Cross-Valley Urban Aerosols	WANG Yan, GUO Wei, YAN Shi-ming, <i>et al.</i> (4104)
Variation Characteristics and Source Analysis of Carbonaceous Aerosols in Winter in Jiashan	ZHANG Ying-long, LI Li, WU Wei-chao, <i>et al.</i> (4116)
Simulation Analysis of the Impact of COVID-19 Pandemic Control on Air Quality in Henan Province based on Machine Learning Algorithm	WEI Yu, XU Qi-xiang, ZHAO Jin-shuai, <i>et al.</i> (4126)
Seasonal Variation, Source Identification, and Health Risk of PM _{2.5} -bound Metals in Xinxiang	LIU Huan-jia, JIA Meng-ke, LIU Yong-li, <i>et al.</i> (4140)
Distribution Characteristics and Seasonal Variations of Arsenic in Atmospheric Aerosols over the Yellow Sea and Bohai Sea	YUAN Shuai, WANG Yan, LIU Ru-hai, <i>et al.</i> (4151)
Extinction Characteristics of Aerosols and the Contribution of Pollution Sources to Light Extinction During Three Heavy Pollution Episodes in the Winter of 2020 in Tianjin	LI Li-wei, XIAO Zhi-mei, YANG Ning, <i>et al.</i> (4158)
Spatial Variation of Surface Ozone Concentration During the Warm Season and Its Meteorological Driving Factors in China	HE Chao, MU Hang, YANG Lu, <i>et al.</i> (4168)
Exploring Characteristics and Causes of Summer Ozone Pollution Based on Process Analysis in Wuhai	ZHANG Rui-xin, CHEN Qiang, XIA Jia-qi, <i>et al.</i> (4180)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric VOCs in the Coastal Background of the Pearl River Delta	YUN Long, LI Cheng-liu, ZHANG Ming-di, <i>et al.</i> (4191)
Hydrochemical Characteristics and Factors of Surface Water and Groundwater in the Upper Yongding River Basin	KONG Xiao-le, YANG Yong-hui, CAO Bo, <i>et al.</i> (4202)
Temporal and Spatial Variations in Water Quality of Hanjiang River and Its Influencing Factors in Recent Years	CHENG Bing-fen, ZHANG Yuan, XIA Rui, <i>et al.</i> (4211)
Pollution Level, Distribution Characteristic, and Ecological Risk Assessment of Environmentally Persistent Pharmaceutical Pollutants in Surface Water of Jiangsu Province	ZHAO Mei-mei, FAN De-ling, GU Wen, <i>et al.</i> (4222)
Spatial and Temporal Distribution and Pollution Evaluation of Soluble Heavy Metals in Liujiang River Basin	ZHANG Wan-jun, XIN Cun-lin, YU Shi, <i>et al.</i> (4234)
Source Analysis and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Groundwater of Leizhou Peninsula	SHI Huan-huan, PAN Yu-jie, ZENG Min, <i>et al.</i> (4246)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Metal Elements in Groundwater of Longzici Spring Area	XIE Hao, LIANG Yong-ping, LI Jun, <i>et al.</i> (4257)
Seasonal Variation and Sources Identification of Dissolved Sulfate in a Typical Karst Subterranean Stream Basin Using Sulfur and Oxygen Isotopes	REN Kun, PAN Xiao-dong, LAN Gan-jiang, <i>et al.</i> (4267)
Phosphorus Fractions and Quantitative Identification of Pollution Sources in Nanhai Wetland, Baotou	BAI Ya-hong, QIAN Chen-ge, YUAN Si-jing, <i>et al.</i> (4275)
Release Risk of Phosphorus by Sediments and Its Influencing Factors in Ponds and Ditches of a New Urban District Park	LI Ru-zhong, SONG Min, YANG Ji-wei (4287)
Effect of Hydraulic Residence Time on Removal Efficiency of Pollutants in Subsurface Flow Constructed Wetlands and Analysis of Denitrification Mechanism	QI Ran, ZHANG Ling, YANG Fan, <i>et al.</i> (4296)
Enhanced Removal of Pollutants in Constructed Wetlands with Manganese Sands	MA Quan, WANG Dong-lin, LIN Hui, <i>et al.</i> (4304)
Application Effect of Four Typical Submerged Macrophytes on Removing Cadmium from Polluted Sediment	TAO Li, WANG Pei-fang, YUAN Qiu-sheng, <i>et al.</i> (4311)
Structure of Aerobic Denitrification Bacterial Community in Response to Dissolved Organic Matter in Baiyangdian Lake During the Water Delivery Period	ZHOU Shi-lei, ZHANG Tian-na, CHEN Zhao-ying, <i>et al.</i> (4319)
Nitrogen and Phosphorus Leaching Characteristics and Adsorption Properties of Hardwood Biochar in Stormwater Runoff	MENG Yi-ke, WANG Yuan, WANG Chuan-yue (4332)
Indicator Function of Ragworm (<i>Nereididae</i>) on Sediment Microplastic in Haizhou Bay Intertidal Zone	WANG Jia-xuan, SONG Ke-xin, SUN Yi-xin, <i>et al.</i> (4341)
Antagonistic Effect and Mechanism of Nano Titanium Dioxide and Cadmium on the Growth of <i>Scenedesmus obliquus</i>	WANG Pu, ZHAO Li-hong, ZHU Xiao-shan (4350)
Mutual Influence Between Microbial Community, Wastewater Characteristics, and Antibiotic Resistance Genes During Spiramycin Production Wastewater Treatment	WU Cai-yun, LI Hui-li, QIN Cai-xia, <i>et al.</i> (4358)
Effect of Chelated Iron on Nitrogen Removal Efficiency and Microbial Community Structure in the Anaerobic Ferric Ammonium Oxidation	LIAO Hong-yan, SONG Cheng, WAN Liu-yang, <i>et al.</i> (4366)
Effects of Dissolved Oxygen on Nutrient Removal Performance and Microbial Community in Low Carbon/Nitrogen Municipal Wastewater Treatment Process	CHI Yu-lei, SHI Xuan, REN Tong, <i>et al.</i> (4374)
Shortening SRT of Intermittent Gradient Aeration to Realize Nitrogen and Phosphorus Removal in Short-range SNEDPR System	ZHANG Yu-jun, LI Dong, WANG Xin-xin, <i>et al.</i> (4383)
Characteristics of Partial Denitrification in Biofilm System	YU Li-fang, ZHANG Xing-xiu, ZHANG Qiong, <i>et al.</i> (4390)
Effect of Anaerobic Plug-flow on Nitrification Denitrifying Phosphorus Removal Aerobic Granular Sludge with Intermittent Aeration	LI Dong, CAO Si-yu, WANG Qi, <i>et al.</i> (4399)
Combining Different Aerobic/Anoxic Durations with Zoned Sludge Discharge to Optimize Short-cut Nitrification Denitrifying Phosphorus Removal Granules in Domestic Sewage	WANG Wen-qi, LI Dong, GAO Xin, <i>et al.</i> (4406)
Meta-analysis of the Effects of Metal Mining on Soil Heavy Metal Concentrations in Southwest China	ZHANG Jian-lin, QU Ming-kai, CHEN Jian, <i>et al.</i> (4414)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals in Typical Watersheds of the Qinghai-Tibet Plateau	DU Hao-lin, WANG Ying, WANG Jin-song, <i>et al.</i> (4422)
Spatial Distribution Characteristics and Risk Assessment of Cadmium Pollution in Soil-crops system of an E-waste Dismantling Area	ZHANG Lu-yao, ZHAO Ke-li, FU Wei-jun (4432)
Characteristics of Modified Biochars and Their Immobilization Effect on Cu and Cd in Polluted Farmland Soil Around Smelter	WANG Xin-yu, MENG Hai-bo, SHEN Yu-jun, <i>et al.</i> (4441)
Combined Effects of Soil Amendment and Zinc Fertilizer on Accumulation and Transportation of Cadmium in Soil-Rice System	ZHOU Kun-hua, ZHOU Hang, WANG Zi-yu, <i>et al.</i> (4452)
Effects of Different Soil Conditioners on Rice Growth and Heavy Metal Uptake in Soil Contaminated with Copper and Cadmium	WEI Wei, LI Ping, LANG Man (4462)
Isolation and Identification of the Plant Endophyte R-13 and Its Effect on Cadmium Accumulation in <i>Solanum nigrum</i> L.	PANG Jie, LIU Yue-min, HUANG Yong-chun, <i>et al.</i> (4471)
Response of Soil Archaeal Community to Heavy Metal Pollution in Different Typical Regions	LI Yu-tong, YANG Shan, ZHANG Yi, <i>et al.</i> (4481)
High-throughput Sequencing Analysis of Soil Bacterial Community in the Grain for Green Project Areas of the Loess Plateau	LIU Xiao-hua, WEI Tian-xing (4489)
Experimental Influence of Food Waste Fermentation Broth on the Soil Quality in a Loess Hilly Area	SHAO Li-ming, REN Jun-da, LÜ Fan, <i>et al.</i> (4500)
Stability of Soil Aggregates at Different Altitudes in Qinling Mountains and Its Coupling Relationship with Soil Enzyme Activities	MA Huan-fei, HU Han, LI Yi, <i>et al.</i> (4510)
Reactivation of Passivated Biochar/Nanoscale Zero-Valent Iron by an Electroactive Microorganism for Cooperative Hexavalent Chromium Removal and Mechanisms	LIAO Cong-jian, ZHAO Xiao-lei, LIU Kai, <i>et al.</i> (4520)
Influence of Precipitation Change on Soil Respiration in Desert Grassland	HAO Lian-yi, ZHANG Li-hua, XIE Zhong-kui, <i>et al.</i> (4527)
Effects of Nitrogen Fertilizer Application Times and Nitrification Inhibitor on N ₂ O Emission from Potted Maize	FU Pei-jiao, JI Heng-kuan, HE Qiu-xiang, <i>et al.</i> (4538)
Gaseous Nitrogen Emission from Soil After Application of NH ₄ ⁺ -N Loaded Biochar	MA Xiao-gang, HE Jian-qiao, CHEN Yu-lan, <i>et al.</i> (4548)
Effects of Microplastics Addition on Soil Organic Carbon Mineralization in Citrus Orchard	ZHANG Xiu-ling, YAN Zi-wei, WANG Feng, <i>et al.</i> (4558)
Dynamic Material Flow Analysis of Perfluorooctane Sulfonate in China; 1985-2019	WANG Jia-yu, CHEN Jing-wen, TANG Wei-hao, <i>et al.</i> (4566)