

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.2
第41卷 第2期

目次

基于GAM模型分析中国典型区域网格化PM _{2.5} 长期变化影响因素	南洋, 张倩倩, 张碧辉 (499)
我国PCDD/Fs网格化大气排放清单	陈露露, 黄韬, 陈凯杰, 宋世杰, 高宏, 马建民 (510)
成都平原PM _{2.5} 中碳质组分时空分布特征与来源	史芳天, 罗彬, 张巍, 刘培川, 郝宇放, 杨文文, 谢绍东 (520)
南京江北新区冬季PM _{2.5} 中化学组分的昼夜变化特征及其来源解析	邱晨晨, 于兴娜, 丁铨, 时政, 张瑞芳, 侯思宇, 侯新红 (529)
南京北郊四季PM _{2.5} 中有机物的污染特征及来源解析	李栩婕, 施晓雯, 马嫣, 郑军 (537)
长三角背景点夏季大气PM _{2.5} 中正构烷烃和多环芳烃的污染特征和来源解析	薛国艳, 王格慧, 吴灿, 谢郁宁, 陈玉宝, 李杏茹, 王心培, 李大鹏, 张思, 葛双双, 丁志健 (554)
2017年秋季长春市PM _{2.5} 中多环芳烃的污染来源及健康风险评价	张艺璇, 曹芳, 郑涵, 张东东, 翟晓瑶, 范美益, 章炎麟 (564)
京津冀及周边区域PM _{2.5} 叠加沙尘重污染过程特征及预报效果分析	朱媛媛, 高愈霄, 柴文轩, 王帅, 李亮, 王威, 王光, 刘冰, 王晓彦, 李健军 (574)
河南省臭氧污染特征与气象因子影响分析	齐艳杰, 于世杰, 杨健, 尹沙沙, 程家合, 张瑞芹 (587)
河南省气溶胶光学特性的时空变化特征	张瑞芳, 于兴娜 (600)
黑炭气溶胶质谱仪(SP-AMS)分析春季PM _{2.5} 中水溶性有机气溶胶	黄雯倩, 陈彦彤, 李旭东, 赵竹子, 马帅帅, 叶招莲, 盖鑫磊 (609)
南京市黑碳气溶胶时间演变特征及其主要影响因素	杨晓旻, 施双双, 张晨, 王红磊, 王振彬, 朱彬 (620)
连云港不同功能区挥发性有机物污染特征及臭氧生成潜势	乔月珍, 陈凤, 李慧鹏, 赵秋月 (630)
挥发性有机物污染控制方案的运行费用效能比较	羌宁, 史天哲, 缪海超 (638)
西安市大气降水污染和沉降特征及其来源解析	丁铨, 于兴娜, 侯思宇 (647)
4种动物养殖场空气中抗生素耐药菌的生物多样性及群落结构	沙云菲, 孙兴滨, 辛文鹏, 高浩泽, 程首涛, 高敏, 王旭明 (656)
辽宁省2000~2030年机动车排放清单及情景分析	金嘉欣, 孙世达, 王芃, 林应超, 王婷, 吴琳, 魏宁, 常俊雨, 毛洪钧 (665)
国六柴油机DPF再生时VOCs排放特性	钱枫, 薛常鑫, 许小伟, 马东, 李朋, 祝能 (674)
南小河流域地表水和地下水的稳定同位素和水化学特征及其指示意义	郭亚文, 田富强, 胡宏昌, 刘亚平, 赵思晗 (682)
乐安河中下游重金属时空分布特征及风险评价	余杨, 吕雅宁, 王伟杰, 渠晓东, 刘聚涛, 温春云 (691)
温榆河水环境质量与浮游植物群落结构的时空变化及其相互关系	朱利英, 陈媛媛, 刘静, 王亚炜, 王春荣, 魏源送, 张育新 (702)
新安江水库河口区水质及藻类群落结构高频变化	宣文怡, 朱广伟, 黎云祥, 吴志旭, 郑文婷, 兰佳, 王裕成, 许海, 朱梦圆 (713)
环渤海芦苇湿地磷的吸附容量及释放风险评估	宋佳伟, 徐刚, 张扬, 吕迎春 (728)
洱海藻类水华高风险期沉积物氮磷释放通量时空变化	刘思儒, 赵继东, 肖尚斌, 倪兆奎, 王圣瑞 (734)
西安市降雪中DOM荧光特性和来源分析	杨毅, 韩丽媛, 刘焕武, 雷颖, 李兢, 徐会宁 (743)
透水砖铺装的设施构造对运行效果的影响	张佳炜, 刘勇, 金建荣, 李田 (750)
微米SiC/石墨烯复合物光催化降解罗丹明B	朱红庆, 杨兵, 魏世强, 杨静静, 张进忠 (756)
锰铁改性针簇莫来石对水中BPA和EE2的去除	周秋红, 龙天渝, 何靖, 郭劲松, 高俊敏 (763)
载钼磁性水热生物炭的制备及其除磷性能	宋小宝, 何世颖, 冯彦房, 花昀, 唐婉莹, 朱秋蓉, 薛利红, 杨林章 (773)
复合金属改性生物炭对水体中低浓度磷的吸附性能	孙婷婷, 高菲, 小莉, 黎睿, 董磊 (784)
磁性硅藻土负载纳米过氧化钙对水中磷酸盐吸附	徐楚天, 李大鹏, 张帅, 耿雪, 陈丽媛, 宋小君, 郭超然, 黄勇 (792)
污水厂尾水受纳河段沉积物磷形态及释放风险效应	汤宁, 李如忠, 王丰庆, 何瑞亮, 刘超 (801)
生物膜生态浮床对城市尾水净化特征分析	赵志瑞, 张佳瑶, 李铎, 李方红 (809)
磁凝凝对市政污水中抗生素抗性基因和重金属抗性基因的削减效能	于雯超, 郑利兵, 魏源送, 王哲晓, 张鹤清, 黄光华, 焦赞仪, 吴振军 (815)
四环素抗生素对污泥中四环素抗性基因丰度和表达水平的作用影响	阮晓慧, 钱雅洁, 薛罡, 高品 (823)
异养硝化细菌Pseudomonas aeruginosa YL的脱氮过程及N ₂ O产生特性	杨垒, 崔坤, 任勇翔, 郭淋凯, 张志昊, 肖倩, 陈宁, 汪旭晖 (831)
包埋厌氧氨氧化菌的环境因子影响特性及群落结构分析	王晓瞳, 杨宏, 苏杨, 刘旭妍 (839)
包埋反硝化填料强化二级出水深度脱氮性能研究及中试应用	周亚坤, 杨宏, 王少伦, 何海超, 刘宗跃, 苏扬, 张辉 (849)
厌氧时间对间歇进水-间歇曝气的好氧颗粒污泥系统影响	张杰, 王玉颖, 李冬, 曹思雨, 李帅 (856)
除磷颗粒诱导的同步短程硝化反硝化除磷颗粒污泥工艺	李冬, 刘博, 王文琪, 张杰 (867)
桂西南地区地球化学异常区农田重金属空间分布特征及污染评价	王佛鹏, 肖乃川, 周浪, 虎瑞, 宋波 (876)
青藏高原表土重金属污染评价与来源解析	杨安, 王艺涵, 胡健, 刘小龙, 李军 (886)
黄河三角洲不同植物群落土壤酶活性特征及影响因子分析	莫雪, 陈斐杰, 游冲, 刘福德 (895)
管理措施对黄土高原油松人工林土壤水溶性碳氮及其三维荧光特征的影响	宋亚辉, 张娇阳, 刘鸿飞, 薛蕊, 李秧秧 (905)
生物炭输入对不同滨岸带土壤营养元素有效态变化的影响	周慧华, 袁旭音, 熊钰婷, 韩年, 叶宏萌, 陈耀祖 (914)
水热炭减少稻田氨挥发损失的效果与机制	余姗, 薛利红, 花昀, 李德天, 谢斐, 冯彦房, 孙庆业, 杨林章 (922)
接种菌根真菌对湿生植物根际土壤硝化反硝化活性的影响及其微生物机制	刘猷, 王磊, 曹湛波, 段灏 (932)
基于漂浮箱法和扩散模型测定淡水养殖鱼塘甲烷排放通量的比较	胡涛, 黄健, 丁颖, 孙志荣, 徐梦凡, 刘树伟, 邹建文, 吴双 (941)
超高效液相色谱串联质谱法同时测定叶菜中13种抗生素	陈乾, 刘洋, 肖丽君, 邹德玉, 刘海学, 吴惠惠 (952)
青菜中镉的吸收和累积对硒的响应规律	余焱, 罗丽韵, 刘哲, 付平南, 李花粉 (962)
两种不同镉富集能力油菜品种耐性机制	卞建林, 郭俊梅, 王学东, 杨俊兴, 杨军, 陈同斌, 曹柳, 成永霞, 任战红, 王杰, 周小勇 (970)
可生物降解螯合剂GLDA强化三叶草修复镉污染土壤	贺玉龙, 余江, 谢世前, 李佩柔, 周宽, 何欢 (979)
我国畜禽粪便重金属含量特征及土壤累积风险分析	穆虹宇, 庄重, 李彦明, 乔玉辉, 陈清, 熊静, 郭丽莉, 江荣凤, 李花粉 (986)
畜禽粪便和桃树枝工业化堆肥过程中微生物群落演替及其与环境因子的关系	蔡涵冰, 冯雯雯, 董永华, 马中良, 曹慧锦, 孙俊松, 张保国 (997)
4种粪便堆肥过程中抗生素的降解特性	朱为静, 朱凤香, 王卫平, 洪春来, 姚燕来 (1005)
《环境科学》征订启事	(553)
《环境科学》征稿简则	(655)
信息	(664, 755, 885)

4 种粪便堆肥过程中抗生素的降解特性

朱为静, 朱凤香, 王卫平, 洪春来, 姚燕来*

(浙江省农业科学院环境资源与土壤肥料研究所, 杭州 310021)

摘要: 饲料中抗生素的广泛使用导致了粪便中抗生素的大量残留, 堆肥工艺可以降解残留的抗生素. 本研究以蛆粪、鸡粪、猪粪和牛粪为对象, 利用中试好氧堆肥装置, 研究不同类型粪便的抗生素残留情况及其堆肥降解特性. 结果表明, 磺胺类、氟喹诺酮类、四环素类和大环内酯类是主要存在的抗生素类型, 不同类型粪便其优势抗生素均不同. 对各粪便堆肥中抗生素降解规律研究发现: 氟喹诺酮类抗生素和土霉素在堆肥第7 d 检出水平为0, 降解速度最快; 强力霉素在4种粪便堆肥中的降解幅度在85%以上; 磺胺类抗生素在鸡粪、猪粪和牛粪堆肥中的降解幅度在80%以上, 但是在蛆粪堆肥中的降解效果较差; 大环内酯类抗生素仅存在于蛆粪中, 经堆肥其降解幅度为70.79%. 相关性结果显示, 含水率和容重是影响4种粪便堆肥抗生素降解率最主要的环境因子.

关键词: 粪便; 抗生素; 堆肥; 降解; 环境因子

中图分类号: X713 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)02-1005-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201907032

Degradation Characteristics of Antibiotics During Composting of Four Types of Feces

ZHU Wei-jing, ZHU Feng-xiang, WANG Wei-ping, HONG Chun-lai, YAO Yan-lai*

(Institute of Environmental, Resources and Soil fertilizer, Zhejiang Academy of Agricultural Sciences, Hangzhou 310021, China)

Abstract: The widespread use of antibiotics in feed results in a large number of antibiotic residues in feces. Composting technology can degrade these residual antibiotics. A pilot-scale aerobic composting device was used to analyze the antibiotic residues and composting degradation characteristics of four types of feces (maggot manure, chicken manure, pig manure, and cow manure). Results showed that sulfonamides (SAs), fluoroquinolones (FQs), tetracycline (TCs), and macrolides (MAs) were the main antibiotics, and different type of feces had different dominant antibiotics. The contents of FQs and oxytetracycline (OTC) were none on the seventh day of the compost, and their degradation rates were the fastest. After composting, the degradation rate of doxycycline (DOX) in the four types of fecal composts was more than 85%. Meanwhile, the degradation rates of SAs in chicken, pig, and cow manure composts were also more than 80%, which was much lower in the one in maggot manure compost. MAs were only found in maggot manure, and the degradation rate was 70.79% after composting. Correlation analysis indicated that the water content and bulk density were the most important environmental factors affecting the degradation rates of antibiotics in the four types of fecal composts.

Key words: feces; antibiotics; composting; degradation; environmental factors

近年来,随着我国畜禽养殖业的迅速发展,畜禽粪便产生量激增,给环境带来了巨大的潜在风险. 据估测全国每年产生的以猪粪、鸡粪和牛粪为主的畜禽粪便达38亿t^[1]. 由于具有促进动物生长和治疗控制疾病等优点,兽用抗生素在集约化畜禽养殖业中得到了广泛地应用. 中国科学院广州地球化学研究所发布的一项研究结果显示,2013年中国抗生素总使用量约为16.2万t,其中8.4万t用于畜禽养殖业^[2]. 目前,在畜禽养殖过程中广泛使用的抗生素包括磺胺类、四环素类、氟喹诺酮类、大环内酯类、多肽类和氨基糖苷类六大类^[3]. 但我国畜禽饲料中存在超量添加抗生素的现象,且抗生素在动物体内不能被完全吸收代谢,大部分(约30%~90%)以原药或代谢产物的形式随粪便排泄出来,将会通过多种途径对环境和人体健康产生巨大的潜在危害,如影响微生物生长代谢、危及生态系统平衡、增强人体耐药性和干扰人类内分泌系统等^[4~6]. 截至目前,畜禽养殖业中由

于抗生素滥用导致的环境污染问题尤为突出,已成为当前国际上的研究热点之一^[7].

畜禽粪好氧堆肥,即在好氧条件下,好氧微生物对畜禽粪便进行吸收、氧化和分解的过程. 最终将有机污染物分解为CO₂和H₂O等简单的无机物,使堆体中有害物质降低,达到无害化标准^[8,9]. 目前的研究表明,好氧堆肥能够有效去除畜禽粪便中残留的抗生素,是畜禽粪便无害化和资源化利用的主要手段^[10]. 堆体类型、含水率、pH值和C/N等因素是决定堆体中抗生素等有机污染物能否被快速有效分解的关键影响因子^[11]. 本研究拟利用中试好氧堆肥装置,分析不同类型粪便中抗生素种类和含量以

收稿日期: 2019-07-03; 修订日期: 2019-09-12

基金项目: 浙江省重大科技专项重点社会发展项目(2015C03006); 国家重点研发计划项目(2018YFD0500203); 浙江省重大科技专项重点农业项目(2015C02028); 浙江省重点研发计划项目(2019C02051)

作者简介: 朱为静(1989~),女,博士,助理研究员,主要研究方向为废弃物资源化利用, E-mail: zhuweijing@zaas.ac.cn

* 通信作者, E-mail: yaoyl0679@hotmail.com

及在堆肥过程中各抗生素的降解规律,并明确堆肥过程中抗生素降解与堆体环境因子变化之间的关系,以期为进一步解析堆肥过程中各抗生素降解机制提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 堆肥材料

堆肥原料采用新鲜的蛆粪、鸡粪、猪粪及牛粪,其中,鸡粪、猪粪和牛粪委托浙江省杭州市萧山汇仁复合有机肥料有限公司收集于不同养殖企业。蛆粪由湖州市千金镇宏泉生物科技有限公司经蝇蛆养殖获得:将猪粪接种蝇蛆幼虫,按照一定的养殖工艺养殖 7 d 后,剩下的粪渣即为蛆粪^[12]。堆肥原料基本理化性质及抗生素含量见表 1 和表 2。

1.2 试验设置

堆肥试验在浙江省杭州市萧山汇仁复合有机肥

料有限公司进行,堆肥共设 4 个处理,分别为蛆粪堆肥、鸡粪堆肥、猪粪堆肥和牛粪堆肥。经 7 d 蝇蛆养殖后产生的蛆粪渣即蛆粪,其含水率在 50% 左右,呈颗粒状,通气性较好,不需要添加辅料即可满足快速发酵升温的要求。另外,尽管牛粪含水率为 73.06%,但由于其本身含有一些垫料,透气性较好,也不需要额外添加辅料。而鸡粪和猪粪的含水率接近 80%,为了满足堆肥的要求,将鸡粪和猪粪按 20% (质量分数) 的比例加入木屑。混合均匀后,将 4 种粪便堆制成本条垛状(长 2 m,宽 1.5 m,高 0.8 m),堆置 63 d,每 3 d 进行一次人工翻堆。在堆肥第 0、7、14、21、28、35、42、49、56 和 63 d 进行取样,每次按四分法从堆体上部、中部、下部各取约 500 g 样品,制成混合样约 1.5 kg;然后将样品一分为二,一份保存在 4℃ 冰箱用于抗生素含量指标的测定,一份风干磨细用于理化性质的测定。

表 1 堆肥原料理化性质
Table 1 Physical and chemical properties of compost raw materials

堆肥原料	温度/℃	含水率/%	pH	电导率/ $\text{mS}\cdot\text{cm}^{-1}$	容重/ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	C/N
蛆粪	20	53.29	9.31	4.07	0.49	14.92
鸡粪	22	79.54	8.65	4.36	0.95	19.78
猪粪	20	79.14	8.10	2.26	1.07	14.23
牛粪	20	73.06	9.70	1.64	0.86	28.30

表 2 堆肥原料中抗生素含量(干基)¹⁾/ $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$
Table 2 Antibiotic content in raw compost materials (dry base)/ $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$

项目	抗生素种类	蛆粪		鸡粪	猪粪(b)	牛粪
		猪粪(a)	蛆粪渣			
磺胺类(SAs)	磺胺二甲嘧啶(SM2)	69.34	92.51	—	9.54	—
	磺胺-6-甲氧嘧啶(SMM)	9.31	21.33	88.83	24.36	16.80
	磺胺氯哒嗪(SCP)	340.74	481.45	—	—	—
氟喹诺酮类(FQs)	氟罗沙星(FLE)	—	—	9.52	—	—
	环丙沙星(CIP)	—	—	—	697.06	—
	恩诺沙星(ENR)	67.83	—	—	840.39	80.35
	诺氟沙星(NOR)	—	—	—	—	1 904.59
四环素类(TCs)	土霉素(OTC)	779.56	—	—	3 727.13	—
	强力霉素(DOX)	820.22	317.34	39.78	1 560.27	33.16
大环内酯类(MAs)	泰乐菌素(TYL)	83.53	—	—	—	—
	替米考星(TMS)	2 843.08	2 109.45	—	—	—

1) 猪粪(a)和(b)为来源不同的猪粪

1.3 测定方法

每日测定堆体温度,利用电子温度计分别测定堆体上部(表面下 10 cm)、中部和底部(底部以上 10 cm)的温度,取平均值作为整个堆体的温度值。pH 值和电导率按堆肥样品与去离子水 1:10 的比例进行稀释,之后利用电极法进行测定。堆肥样品含水率采用质量法(105℃ 烘干)进行测定;总碳和总氮分别采用重铬酸钾氧化-外加加热法和凯氏定氮法进

行检测^[13]。抗生素的测定:通过固相小柱进行萃取,称取 0.50 g 样品(精确至 0.01 g),利用 McIlvaine- Na_2EDTA 缓冲液浸提,然后用草酸甲醇溶液洗脱净化,经氮气吹干后定容,最后利用高效液相色谱仪(Thermo Scientific,美国)进行测定^[14]。

1.4 数据处理与分析

不同类型粪便堆肥进程中,抗生素含量随时间的变化趋势,用一级动力学方程进行拟合:

$$c = c_0 e^{-kt}$$

式中, c 指 t (d) 时测得的抗生素含量 ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$), c_0 指堆肥开始时的抗生素含量 ($\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$), k 为抗生素降解速率常数 (d^{-1}). 对所有的曲线回归关系进行 F 检验, $P < 0.05$ 时, 表明拟合度较好. 根据公式 $t_{1/2} = \ln 2/k$ 计算抗生素半衰期, $t_{1/2}$ 为半衰期 (d).

利用 IBM SPSS Statistics 20.0 对各抗生素含量随时间的变化趋势进行一级动力学方程拟合, 同时利用 SPSS 软件对抗生素的降解率与堆体理化性质之间的相关性进行统计分析, 采用 Origin 8.0 软件作图.

2 结果与分析

2.1 不同类型粪便堆肥过程中基本理化性质的变化分析

2.1.1 温度和含水率

温度是评价堆肥过程中堆肥腐熟进程的重要指标之一. 在 63 d 的堆置期间, 鸡粪、猪粪和牛粪有明显的中温期、高温期和腐熟期. 其中, 牛粪在堆肥第 21 d 进入高温期, 高温期维持至第 45 d (最高达 74°C); 其次为猪粪, 在堆肥第 28 d 进入高温期, 高温期维持至第 49 d (最高达 64°C); 鸡粪在整个堆肥过程中的温度要低于猪粪和牛粪, 堆肥第 26 d 进入高温期, 高温期维持至第 45 d 且其温度大多低于 50°C [图 1(a)]. 而蛆粪堆肥的温度变化趋势与其他 3 种堆肥表现出了明显的不同, 其中温期较短, 在堆肥第 5 d 就迅速进入高温期 (最高达 72°C), 并维持高温期超过 40 d [图 1(a)]. 含水率也能在很大程度上影响堆肥发酵过程, 水份能调节堆肥温度、溶解有机物, 并参与微生物的新陈代谢. 由图 1(b) 可知, 随着堆肥进程的发展, 4 种堆肥含水率总体上均呈下降趋势, 且蛆粪堆肥的含水率变化趋势与其他 3 种堆肥表现出了明显的差异. 其中, 鸡粪、猪粪和牛粪 3 种堆肥的初始含水率均在 70% 以上, 至堆肥结束时, 这 3 种堆肥的含水率均下降至 60% 左右. 而蛆粪堆肥的初始含水率仅为 53.29%, 至堆肥结束时, 蛆粪堆肥的含水率下降至 25.61% [图 1(b)].

2.1.2 pH 和电导率

pH 是影响微生物有效发挥作用的重要环境因素之一, 堆肥最适 pH 为 6.5 ~ 8.5, 腐熟时 pH 一般在 8 ~ 9 左右呈弱碱性. 堆肥初始, 鸡粪和猪粪的 pH 分别为 7.91 和 8.18, 蛆粪和牛粪的 pH 略高, 分别为 9.31 和 9.70. 随着堆肥进程的发展, 蛆粪堆肥 pH 呈逐渐下降的趋势, 而鸡粪、猪粪和牛粪堆肥 pH 值在高温阶段有明显的上升, 至腐熟阶段 pH 又开始回落. 堆肥结束时, 蛆粪和牛粪 pH 较初始降低, 分

别为 8.54 和 9.44, 鸡粪和猪粪 pH 较初始升高, 分别为 9.34 和 8.28 [图 1(c)]. 就电导率而言, 其变化在一定程度上反映了堆肥过程中有机氮和无机氮的相互转化及可溶性盐的含量. 堆肥初始, 蛆粪和鸡粪堆肥的电导率分别为 $4.07 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$ 和 $4.71 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$, 要明显高于猪粪和牛粪堆肥的电导率 $2.43 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$ 和 $1.64 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$. 随着堆肥进程的发展, 蛆粪和牛粪堆肥的电导率呈现上升趋势, 而鸡粪和猪粪堆肥的电导率呈现先降低后上升的趋势. 堆肥结束时, 蛆粪、猪粪和牛粪堆肥的电导率较初始升高, 分别为 6.13、3.03 和 $4.24 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$, 而鸡粪堆肥较初始下降, 为 $4.38 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$ [图 1(d)].

2.1.3 容重和 C/N

容重间接反映了堆肥的孔隙度及空气穿过堆肥的难易程度, 是影响通气供氧效果的关键因素. 堆肥初始阶段, 蛆粪堆肥的容重最低, 仅为 $0.49 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, 而鸡粪、猪粪和牛粪的容重均在 $0.70 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 以上. 随着堆肥进程的发展, 4 种粪便堆肥的容重均降低, 堆肥结束时在 $0.40 \sim 0.51 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 之间 [图 1(e)]. 此外, 适当的 C/N 也是堆肥顺利进行的必备条件. 堆肥初始, 牛粪的 C/N 最大 (28.30), 其次为鸡粪 (25.61)、猪粪 (18.25) 和蛆粪 (14.92). 随着堆肥进程的发展, 蛆粪、鸡粪和猪粪的 C/N 呈现先上升后降低的趋势, 堆肥结束时, 这 3 种堆肥的 C/N 分别降至 11.26、24.71 和 15.30. 而牛粪堆肥的 C/N 呈现逐渐下降的趋势, 堆肥结束时, 其 C/N 降至 14.17 [图 1(f)].

2.2 不同类型粪便堆肥过程中抗生素的降解效果

本试验共检测了 16 种磺胺类 (SAs)、19 种氟喹诺酮类 (FQs)、8 种大环内酯类 (MALs)、4 种四环素类 (TCs)、4 种氨基糖苷类 (AGs) 和 14 种 β -内酰胺类 (β -lactams) 抗生素. 其中, 用于蝇蛆养殖的猪粪中共检测到 8 种抗生素: 磺胺二甲嘧啶 (SM2)、磺胺-6-甲氧嘧啶 (SMM) 和磺胺氯哒嗪 (SCP), 恩诺沙星 (ENR), 土霉素 (OTC) 和强力霉素 (DOX), 泰乐菌素 (TYL) 和替米考星 (TMS); 经过 7 d 蝇蛆养殖产生的蛆粪中, 共检测到 5 种抗生素: SM2、SMM、SCP、DOX 和 TMS; 鸡粪中共检测到 3 种抗生素: SMM、氟罗沙星 (FLE) 和 DOX; 猪粪中共检测到 6 种抗生素: SM2 和 SMM, 环丙沙星 (CIP) 和 ENR, OTC 和 DOX; 牛粪中共检测到 4 种抗生素: SMM、ENR 和诺氟沙星 (NOR), DOX (表 2).

2.2.1 不同类型粪便中抗生素种类及堆肥降解率

用于蝇蛆养殖的猪粪中主要存在四大类抗生素, 其含量的高低次序为 $\text{MAs} > \text{TCs} > \text{SAs} > \text{FQs}$. 其中, MAs 含量最高, TMS 达 $2843.08 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 其次

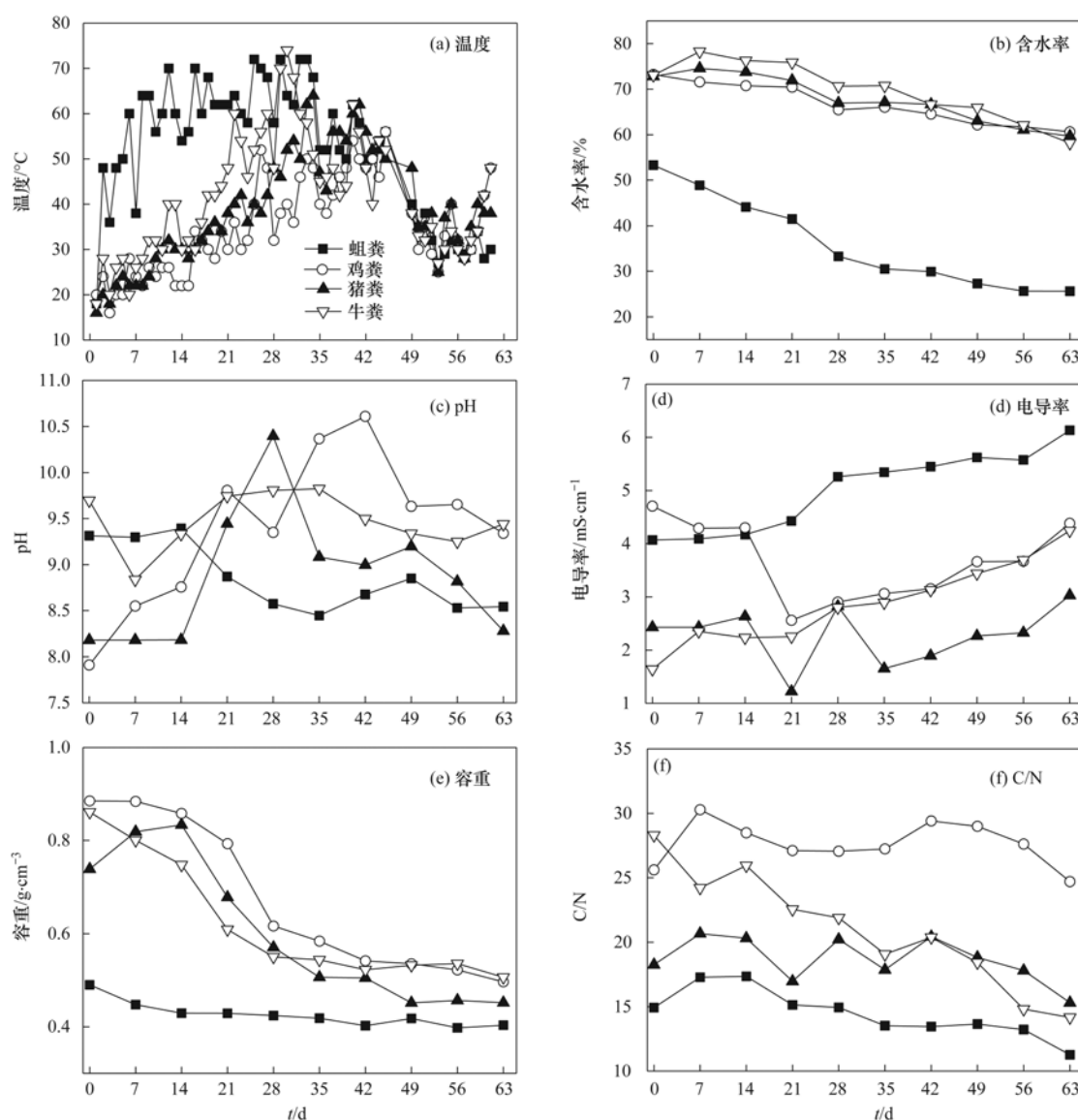


图1 不同类型粪便堆肥过程理化性质变化曲线

Fig. 1 Change in physical and chemical properties in different types of fecal composts

为 TCs, OTC 和 DOX 分别为 $779.56 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $820.22 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 再次为 SAs, SCP 达 $340.74 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; FQs 含量相对较低. 经 7 d 蝇蛆养殖产生的蛆粪中仅存在三大类抗生素, 其含量的高低次序为 MAs > SAs > TCs. 其中, MAs 含量最高, TMS 达 $2109.45 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 其次为 SAs, SCP 达 $481.45 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 再次为 TCs, DOX 达 $317.34 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (表 2). 经 7 d 蝇蛆养殖后, 猪粪原料中 FQs、TCs 和 MAs 均有不同程度地降解, 其中 ENR、OTC 和 TYL 的降解幅度达到 100%, 而 SAs 中 SM2、SMM 和 SCP 的含量均有不同程度地上升. 此外, 图 2(a) 显示了蛆粪堆肥中各抗生素含量随时间变化的趋势. 经 63 d 的堆肥进程, DOX 和 TMS 的降解幅度分别为 95.14% 和 70.79%. SAs 中 SM2、SMM 和 SCP 的降解幅度分别为 76.12%、56.11% 和 44.29%.

鸡粪、猪粪和牛粪堆肥原料中主要存在 3 种类

型抗生素, 分别为 SAs、FQs 和 TCs. 鸡粪中 SAs 含量最高, SMM 达 $88.83 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. 此外, DOX 和 FLE 分别为 $39.78 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $9.52 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (表 2). 随着堆肥进程的发展, FLE 在堆肥第 7 d 检出水平为 0, 降解幅度达 100%. 堆肥结束时, SMM 和 DOX 的降解幅度分别为 81.88% 和 85.78% [图 2(b)]. 猪粪中, TCs 含量最高, OTC 和 DOX 分别为 $3727.13 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $1560.27 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 其次为 FQs, CIP 和 ENR 分别为 $697.06 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $840.39 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; SAs 含量最低, SM2 和 SMM 均低于 $30 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ (表 2). 随着堆肥进程的发展, CIP、ENR 和 OTC 在第 7 d 检出水平为 0, 降解幅度达 100%; 堆肥第 56 d, SMM 的降解幅度为 100%; 至堆肥结束时, DOX 和 SM2 的降解幅度分别为 97.87% 和 81.83% [图 2(c)]. 牛粪中 FQs 含量最高, NOR 达 $1904.59 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, TCs 和 SAs 含量较低 (表 2). 随着堆肥进

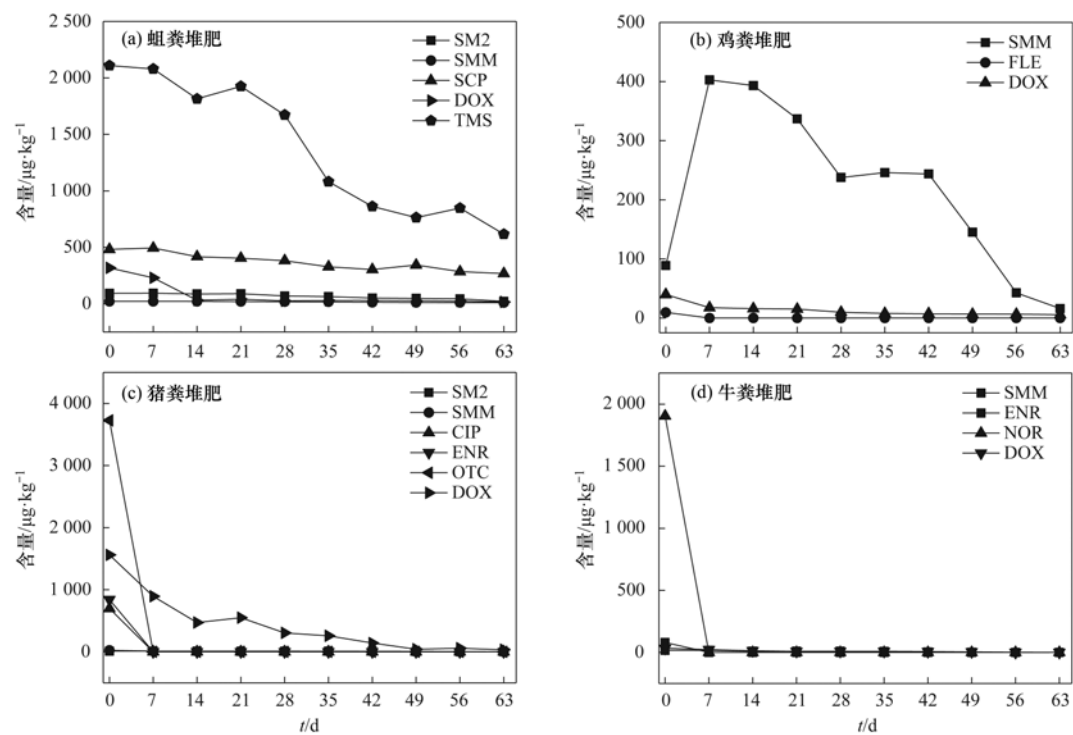


图2 不同类型粪便堆肥中抗生素的降解效果

Fig. 2 Degradation effect of antibiotics in different types of fecal composts

程的发展,ENR 和 NOR 在第 7 d 检出水平为 0,降解幅度达到 100%.此外,堆肥第 56 d,SMM 和 DOX 的降解幅度均为 100% [图 2(d)].

2.2.2 不同类型粪便堆肥中抗生素降解半衰期

由于鸡粪中 FLE,猪粪中 CIP 和 ENR,牛粪中 ENR 和 NOR 在堆肥第 7 d 检出水平即为 0,其变化趋势不符合一级动力学方程.除上述抗生素外,笔者对 4 种粪便堆肥中剩余的抗生素含量随时间的变化趋势进行曲线拟合,发现 4 种堆肥中各抗生素的变化趋势均符合一级动力学方程 $c = c_0 e^{-kt}$ ($P < 0.05$, 表 3).蛆粪堆肥中,SM2、SMM 和 SCP 的降解半衰

期分别为 35、50 和 69 d,DOX 和 TMS 的降解半衰期分别为 18 d 和 33 d.因此,蛆粪堆肥中各抗生素降解速率大小依次为:DOX > TMS > SM2 > SMM > SCP;鸡粪堆肥中,SMM 和 DOX 的降解半衰期分别为 22 d 和 26 d,各抗生素降解速率大小依次为:FLE > SMM > DOX;猪粪堆肥中,SM2、SMM 和 DOX 的降解半衰期分别为 25、26 和 11 d,各抗生素降解速率大小依次为:CIP、ENR、OTC > DOX > SM2 > SMM;牛粪堆肥中,SMM 和 DOX 的降解半衰期分别为 16 d 和 20 d,各抗生素降解速率大小依次为:ENR、NOR > SMM > DOX.

表 3 不同类型粪便堆肥中抗生素的降解半衰期

Table 3 Half-life of antibiotic degradation in different types of fecal composts					
堆肥类型	抗生素种类	一级动力学方程	降解常数 k/d^{-1}	Sig.	半衰期 $t_{1/2}/d$
蛆粪堆肥	磺胺二甲嘧啶 (SM2)	$c = 113.684e^{-0.020t}$	0.020	0.000	35
	磺胺-6-甲氧嘧啶 (SMM)	$c = 24.085e^{-0.014t}$	0.014	0.000	50
	磺胺氯哒嗪 (SCP)	$c = 491.786e^{-0.010t}$	0.010	0.000	69
	强力霉素 (DOX)	$c = 144.040e^{-0.039t}$	0.039	0.004	18
	替米考星 (TMS)	$c = 2446.019e^{-0.021t}$	0.021	0.000	33
鸡粪堆肥	磺胺-6-甲氧嘧啶 (SMM)	$c = 417.884e^{-0.032t}$	0.032	0.046	22
	强力霉素 (DOX)	$c = 25.659e^{-0.027t}$	0.027	0.000	26
猪粪堆肥	磺胺二甲嘧啶 (SM2)	$c = 15.289e^{-0.028t}$	0.028	0.004	25
	磺胺-6-甲氧嘧啶 (SMM)	$c = 17.155e^{-0.027t}$	0.027	0.006	26
	强力霉素 (DOX)	$c = 1519.294e^{-0.061t}$	0.061	0.000	11
牛粪堆肥	磺胺-6-甲氧嘧啶 (SMM)	$c = 21.548e^{-0.043t}$	0.043	0.002	16
	强力霉素 (DOX)	$c = 25.473e^{-0.035t}$	0.035	0.000	20

2.3 堆肥过程中抗生素降解率与环境因子间的相关性

为了评估不同类型粪便堆肥中抗生素降解率与堆体理化性质之间的相关性,笔者对这些参数进行了 Spearman 相关分析.由表 4 可知,除了极易降解的抗生素外,其余抗生素在不同粪便堆肥中其含量变化均与堆肥理化性质存在显著相关性.其中,4 种堆肥中的抗生素降解率几乎都与含水率和容重表现出了显著或极显著的负相关关系($P < 0.05$ 或 P

< 0.01).同时,蛆粪和牛粪中抗生素降解率分别与电导率和 C/N 呈正相关和负相关($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$),而鸡粪和猪粪中抗生素降解率与电导率和 C/N 无显著相关性(猪粪中 SM2 除外).此外,堆体 pH 只与蛆粪中抗生素降解率有显著或极显著负相关性($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$),而堆体温度只与鸡粪堆肥中 DOX 降解率有极显著正相关性($\rho = 0.841, P < 0.01$).

表 4 不同类型粪便堆肥抗生素降解率与环境因子的相关性(ρ 值)¹⁾

Table 4 Correlation between antibiotic degradation rate and environmental factors in different types of fecal composts(ρ)

堆肥类型	抗生素种类	环境因子					
		温度	含水率	pH	电导率	容重	C/N
蛆粪堆肥	磺胺二甲嘧啶(SM2)	-0.219	-0.976 **	-0.709 *	0.964 **	-0.922 **	-0.842 **
	磺胺-6-甲氧嘧啶(SMM)	-0.158	-1.000 **	-0.758 *	0.988 **	-0.935 **	-0.830 **
	磺胺氯哒嗪(SCP)	-0.158	-0.952 **	-0.818 **	0.915 **	-0.960 **	-0.903 **
	强力霉素(DOX)	-0.122	-0.952 **	-0.697 *	0.939 **	-0.898 **	-0.721 *
	替米考星(TMS)	-0.152	-0.976 **	-0.673 *	0.988 **	-0.898 **	-0.770 **
鸡粪堆肥	磺胺-6-甲氧嘧啶(SMM)	0.372	-0.648 *	-0.018	0.321	-0.659 *	-0.576
	强力霉素(DOX)	0.841 **	-0.988 **	0.527	-0.127	-0.994 **	-0.091
猪粪堆肥	磺胺二甲嘧啶(SM2)	0.244	-0.842 **	0.374	0.103	-0.772 **	-0.758 *
	磺胺-6-甲氧嘧啶(SMM)	0.566	-0.948 **	0.357	-0.030	-0.924 **	-0.456
	强力霉素(DOX)	0.598	-0.915 **	0.301	0.073	-0.912 **	-0.358
牛粪堆肥	磺胺-6-甲氧嘧啶(SMM)	0.428	-0.827 **	-0.170	0.900 **	-0.881 **	-0.924 **
	强力霉素(DOX)	0.491	-0.912 **	-0.085	0.960 **	-0.918 **	-0.973 **

1) ** 和 * 分别表示达到 $P < 0.01$ 和 $P < 0.05$ 的显著性水平

3 讨论

本研究表明,不同类型的粪其抗生素种类和含量均有所不同.据报道,目前用于畜禽养殖过程的抗生素主要是 SAs、FQs、TCs 和 MAs^[3].相应地,在本研究的蛆粪堆肥原料中共检测到三大类抗生素: SAs、TCs 和 MAs, 抗生素总含量为 $3\,022.08\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,以 MAs 为主.而经 7 d 蝇蛆养殖的猪粪原料抗生素总含量为 $5\,012.62\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,此结果表明蝇蛆养殖能显著降低猪粪中抗生素总含量.在鸡粪、猪粪和牛粪堆肥原料中检测到三大类抗生素: SAs、FQs 和 TCs.鸡粪中抗生素总含量最低,仅为 $138.13\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,以 SAs 为主.猪粪中抗生素含量最高,为 $6\,858.75\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,以 TCs 为主,且 TCs 在猪粪中的残留量远远高于其与其他畜禽粪便中的残留量.而牛粪中抗生素总含量仅高于鸡粪,为 $2\,034.89\ \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,以 FQs 为主.

由于不同类型的抗生素具有不同的化学结构,导致其在堆肥过程中对环境因子的响应方式不同,因此抗生素在环境中的降解(转化)机制因其种类不同而存在显著差异^[3].本研究中,由好氧堆肥对不同粪便中各抗生素的降解情况可知,对于 FQs 这类抗生素,不论是在鸡粪(FLE)中、猪粪

(CIP 和 ENR)中、还是在牛粪(ENR 和 NOR)中,均在堆肥第 7 d 检出水平为 0.季秋洁等^[15]在猪粪堆肥试验中,通过设置光照组和避光组,发现 FQs 在光照下降解较快,而在避光条件下几乎不降解.本研究中所有的堆肥过程均在露天环境下进行,且每 3 d 进行一次翻堆,堆体能够与阳光进行充分接触,由此推测 FQs 的降解可能与光照有关^[16].同时,TCs 中 OTC 也表现出了相同的趋势,在堆肥第 7 d 检出水平即为 0.此外,DOX 在 4 种堆肥中的降解半衰期在 11 ~ 26 d 之间,也表现出了很强的降解能力,至堆肥结束时,DOX 在蛆粪、猪粪和牛粪堆肥中的降解率几乎达到 100%,在鸡粪中的降解率略差,但也达到了 85.78%.结果表明,好氧堆肥处置方式对不同粪便中 TCs 均有很好地降解作用,一些对抗生素的吸附、水解、光解和其他药物动力学研究发现,TCs 更易进行非生物降解,通过脱水、差向异构和质子转移等途径形成代谢产物^[17],因此 TCs 的降解性能的强弱可能与其本身的结构和理化性质有关.

值得注意的是,经好氧堆肥, SAs 在鸡粪、猪粪和牛粪堆肥中降解半衰期介于 16 ~ 26 d 之间(表 3),至堆肥结束时, SAs 在鸡粪、猪粪和牛粪堆肥中降解幅度均能达到 80% 以上.结果表明,好氧堆肥

对鸡粪、猪粪和牛粪中的 SAs 也有很好地降解作用。而蛆粪中的 SAs 经好氧堆肥后,其降解率并不是特别高,尤其是 SMM 和 SCP,其降解幅度仅为 56.11% 和 44.29%。其原因可归结为蛆粪原料的初始含水率仅为 53.29%,因而没有外源添加木屑就直接进行了堆肥试验。前人的研究指出,SAs 的去除可能主要归因于两个方面:一方面是 SAs 易溶于水发生水解;另一方面是锯末等有机质对其吸附的影响^[18,19]。Kim 等^[18]的研究发现,锯末有机质的存在有助于堆肥中 SAs 药物的去除。Selvam 等^[19]也通过试验发现在猪粪堆肥中添加锯末可以促进磺胺嘧啶的降解。作为堆肥载体和调理剂的锯末等有机质不仅可以提高堆肥孔隙率、调节含水率与 C/N 比,也提供了大量能促使抗生素降解的结合位点^[20]。因此蛆粪堆肥中 SAs 的低降解率可能是由于堆肥原料含水率较低及锯末等有机质的缺乏造成的。此外,本研究还发现,经好氧堆肥过程,蛆粪中 TMS 降解率能达到 70.79%。综上所述,好氧堆肥是各类粪便中抗生素快速降解的重要手段,且绝大部分的抗生素降解半衰期在 35 d 以内,适当延长堆肥时间对抗生素的降解有利。

抗生素在堆肥过程中含量的降低,并非完全是由微生物降解所致,堆肥温度、有机物吸附及抗生素自降解等非生物因素均存在影响^[21]。其中,堆肥温度被认为是与抗生素降解相关的重要因素,大量研究表明,抗生素的去除主要发生在升温及高温阶段,且其去除率随着堆体温度的升高而提高^[22,23]。但本研究发现,温度并不是影响堆肥中抗生素的最重要因素。Spearman 相关性分析显示,仅鸡粪中 DOX 降解率与温度表现出了极显著的正相关性($P < 0.01$,表 4)。与温度相比,含水率是影响 4 种粪便堆肥中抗生素降解率的最重要的因素,含水率与 4 种粪便堆肥中抗生素降解率均表现出了显著或极显著的负相关性($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$,表 4)。原因可能在于,含水率直接影响着堆体内微生物新陈代谢速率,从而影响温度的升高,并进一步影响抗生素的降解速率^[3]。堆肥容重一方面受到含水率变化的影响,另一方面与通气供氧息息相关,因此也与抗生素的降解率表现出了显著或极显著的负相关性($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$,表 4)。此外,仅蛆粪和牛粪中抗生素的降解率分别与电导率和 C/N 表现出了正相关和负相关关系($P < 0.05$ 或 $P < 0.01$,表 4),鸡粪和猪粪中绝大多数的抗生素降解率与 pH、电导率和 C/N 均没有表现出明显的相关性,表明抗生素降解率与环境因子之间的相关性也会受到粪便类型的影响。

4 结论

(1) 蛆粪堆肥的理化性质与鸡粪、猪粪和牛粪堆肥表现出了明显的不同。蛆粪原料含水率仅为 50% 左右,而鸡粪、猪粪和牛粪原料含水率均大于 70%。堆肥原料含水率的差异是导致堆肥过程理化性质差异最主要的原因。

(2) 不同类型粪便中抗生素种类和含量均不同。本研究中蛆粪、鸡粪、猪粪和牛粪的主要抗生素类型分别为:大环内酯类、磺胺类、四环素类和氟喹诺酮类。4 种粪便中抗生素总含量大小顺序依次为:猪粪 > 蛆粪 > 牛粪 > 鸡粪。

(3) 不同种类抗生素在不同类型粪便堆肥中其降解效率存在差异。氟喹诺酮类和四环素类抗生素在 4 种粪便堆肥中的降解效果均较好,其中氟喹诺酮类抗生素和土霉素在堆肥第 7 d 检出水平即为 0,强力霉素在 4 种堆肥中降解率能达到 85% 以上,半衰期介于 11 ~ 26 d。磺胺类抗生素在鸡粪、猪粪和牛粪堆肥过程中降解效果较好(80% 以上),半衰期介于 16 ~ 26 d,而在蛆粪堆肥中效果较差,半衰期介于 35 ~ 69 d。大环内酯类仅存在于蛆粪中,其堆肥降解半衰期为 33 d。

(4) 含水率和容重是影响 4 种粪便堆肥中抗生素降解率的最主要因素。

参考文献:

- [1] 王晓峰. 畜禽粪污处理技术和模式要立足于生产—畜禽养殖主推技术审定会成功召开[J]. 中国禽业导刊, 2015, 32(23): 55-56.
- [2] 万遂如. 关于我国畜牧业生产中限制抗生素的使用问题[J]. 养猪, 2017(1): 1-5.
- [3] 潘兰佳, 唐晓达, 汪印. 畜禽粪便堆肥降解残留抗生素的研究进展[J]. 环境科学与技术, 2015, 38(12Q): 191-198.
Pan L J, Tang X D, Wang Y. Research progress of residual antibiotics degradation in livestock and poultry feces composting[J]. Environmental Science & Technology, 2015, 38(12Q): 191-198.
- [4] Bound J P, Voulvoulis N. Pharmaceuticals in the aquatic environment—a comparison of risk assessment strategies[J]. Chemosphere, 2004, 56(11): 1143-1155.
- [5] 郭丽, 王淑平. 兽用抗生素在土壤中运移规律研究进展[J]. 环境科学与技术, 2014, 37(120): 237-246.
Guo L, Wang S P. Migration law of veterinary antibiotics in soil[J]. Environmental Science & Technology, 2014, 37(120): 237-246.
- [6] Guan T Y, Holley R A. Pathogen survival in swine manure environments and transmission of human enteric illness—a review[J]. Journal of Environmental Quality, 2003, 32(2): 383-392.
- [7] Boxall A B A, Fogg L A, Blackwell P A, et al. Veterinary medicines in the environment[C]//Reviews of Environmental Contamination and Toxicology. Berlin: Springer, 2004. 1-91.
- [8] Hu Z H, Liu Y L, Chen G W, et al. Characterization of organic matter degradation during composting of manure—straw mixtures spiked with tetracyclines[J]. Bioresource Technology, 2011,

- 102(15): 7329-7334.
- [9] 张树清, 张夫道, 刘秀梅, 等. 高温堆肥对畜禽粪中抗生素降解和重金属钝化的作用[J]. 中国农业科学, 2006, **39**(2): 337-343.
- Zhang S Q, Zhang D F, Liu X M, *et al.* Degradation of antibiotics and passivation of heavy metals during thermophilic composting process[J]. *Scientia Agricultura Sinica*, 2006, **39**(2): 337-343.
- [10] 李国学, 张福锁. 固体废物堆肥化与有机复混肥生产[M]. 北京: 化学工业出版社, 2000. 75-79.
- [11] 牛俊玲, 崔宗均, 王丽莉, 等. 堆肥化过程中有机污染物生物降解的研究进展[J]. 中国生态农业学报, 2006, **14**(1): 152-155.
- Niu J L, Cui Z J, Wang L L, *et al.* Biodegradation of organic pollutant in composting process[J]. *Chinese Journal of Eco-Agriculture*, 2006, **14**(1): 152-155.
- [12] Zhu F X, Yao Y L, Wang S J, *et al.* Housefly maggot-treated composting as sustainable option for pig manure management[J]. *Waste Management*, 2015, **35**: 62-67.
- [13] 鲍士旦. 土壤农化分析[M]. 北京: 中国农业出版社, 2000.
- Bao S D. Soil and agricultural chemistry analysis[M]. Beijing: China Agriculture Press, 2000.
- [14] 林辉, 汪建妹, 孙万春, 等. 磺胺抗性消长与堆肥进程的交互特征[J]. 环境科学, 2016, **37**(5): 1993-2002.
- Lin H, Wang J M, Sun W C, *et al.* Interaction between sulfonamide antibiotics fates and chicken manure composting[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(5): 1993-2002.
- [15] 季秋洁. 3种氟喹诺酮类抗生素在猪粪中的残留与降解[D]. 合肥: 安徽农业大学, 2012.
- [16] 刘小云, 舒为群. 水中抗生素污染现状及检测技术研究进展[J]. 中国卫生检验杂志, 2005, **15**(8): 1011-1014.
- [17] Sanderson H, Ingerslev F, Brain R A, *et al.* Dissipation of oxytetracycline, chlortetracycline, tetracycline and doxycycline using HPLC—UV and LC/MS/MS under aquatic semi-field microcosm conditions[J]. *Chemosphere*, 2005, **60**(5): 619-629.
- [18] Kim K R, Owens G, Ok Y S, *et al.* Decline in extractable antibiotics in manure-based composts during composting[J]. *Waste Management*, 2012, **32**(1): 110-116.
- [19] Selvam A, Xu D L, Zhao Z Y, *et al.* Fate of tetracycline, sulfonamide and fluoroquinolone resistance genes and the changes in bacterial diversity during composting of swine manure[J]. *Bioresource Technology*, 2012, **126**: 383-390.
- [20] Kulshrestha P, Giese R F, Aga D S. Investigating the molecular interactions of oxytetracycline in clay and organic matter; insights on factors affecting its mobility in soil[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(15): 4097-4105.
- [21] Sarmah A K, Meyer M T, Boxall A. A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment[J]. *Chemosphere*, 2006, **65**(5): 725-759.
- [22] Arian O A, Mulbry W, Rice C. Management of antibiotic residues from agricultural sources; use of composting to reduce chlortetracycline residues in beef manure from treated animals[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **164**(2-3): 483-489.
- [23] 温沁雪, 曹永森, 陈志强. 猪粪堆肥过程中金霉素去除及重金属形态变化[J]. 环境科学, 2017, **38**(10): 4405-4411.
- Wen Q X, Cao Y S, Chen Z Q. Removal of chlortetracycline and morphological changes in heavy metals in swine manure using the composting process[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(10): 4405-4411.

CONTENTS

Influencing Factors of Long-term Variations on Gridded PM _{2.5} of Typical Regions in China Based on GAM Model	NAN Yang, ZHANG Qian-qian, ZHANG Bi-hui (499)
Gridded Atmospheric Emission Inventory of PCDD/Fs in China	CHEN Lu-lu, HUANG Tao, CHEN Kai-jie, <i>et al.</i> (510)
Spatio-Temporal Variations and Source Apportionment of Carbonaceous Species in PM _{2.5} Across Multiple Sampling Locations in the Chengdu Plain	SHI Fang-tian, LUO Bin, ZHANG Wei, <i>et al.</i> (520)
Diurnal Variations and Source Apportionment of Water-soluble Ions in PM _{2.5} During Winter in Nanjing Jiangbei New Area	QIU Chen-chen, YU Xing-na, DING Cheng, <i>et al.</i> (529)
Characterization, Seasonal Variation, and Source Apportionments of Particulate Amines (PM _{2.5}) in Northern Suburb of Nanjing	LI Xu-jie, SHI Xiao-wen, MA Yan, <i>et al.</i> (537)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of <i>n</i> -Alkanes and PAHs in Summertime PM _{2.5} at Background Site of Yangtze River Delta	XUE Guo-yan, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (554)
Source Apportionment and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM _{2.5} in Changchun City, Autumn of 2017	ZHANG Yi-xuan, CAO Fang, ZHENG Han, <i>et al.</i> (564)
Heavy Pollution Characteristics and Assessment of PM _{2.5} Predicted Model Results in Beijing-Tianjin-Hebei Region and Surrounding Areas During November 23 to December 4, 2018	ZHU Yuan-yuan, GAO Yu-xiao, CHAI Wen-xuan, <i>et al.</i> (574)
Analysis of Characteristics and Meteorological Influence Factors of Ozone Pollution in Henan Province	QI Yan-jie, YU Shi-jie, YANG Jian, <i>et al.</i> (587)
Spatio-Temporal Distribution and Variation Characteristics of Aerosol Optical Properties in Henan Province	ZHANG Rui-fang, YU Xing-na (600)
Analysis of Water Soluble Organic Aerosol in Spring PM _{2.5} with Soot Particle Aerosol Mass Spectrometry (SP-AMS)	HUANG Wen-qian, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (609)
Temporal Evolution and Main Influencing Factors of Black Carbon Aerosol in Nanjing	YANG Xiao-min, SHI Shuang-shuang, ZHANG Chen, <i>et al.</i> (620)
Pollution Characteristics and Ozone Formation Potential of Ambient Volatile Organic Compounds(VOCs) in Summer and Autumn in Different Functional Zones of Lianyungang, China	QIAO Yue-zhen, CHEN Feng, LI Hui-peng, <i>et al.</i> (630)
Operation and Maintenance of Cost-Effective Volatile Organic Compounds Abatement Alternatives	QIANG Ning, SHI Tian-zhe, MIAO Hai-chao (638)
Pollution and Deposition Characteristics of Precipitation and Its Source Apportionment in Xi'an City	DING Cheng, YU Xing-na, HOU Si-yu (647)
Bacterial Diversity and Community Structure Antibiotic-resistant Bacteria in Bioaerosol of Animal Farms	SHA Yun-fei, SUN Xing-bin, XIN Wen-peng, <i>et al.</i> (656)
Vehicle Emission Inventory and Scenario Analysis in Liaoning from 2000 to 2030	JIN Jia-xin, SUN Shi-da, WANG Peng, <i>et al.</i> (665)
VOCs Emission Characteristics of DPF Regeneration in National VI Diesel Engine	QIAN Feng, XUE Chang-xin, XU Xiao-wei, <i>et al.</i> (674)
Characteristics and Significance of Stable Isotopes and Hydrochemistry in Surface Water and Groundwater in Nanxiaohegou Basin	GUO Ya-wen, TIAN Fu-qiang, HU Hong-chang, <i>et al.</i> (682)
Spatio-Temporal Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Middle and Lower Reaches of Le'an River	YU Yang, LÜ Ya-ning, WANG Wei-jie, <i>et al.</i> (691)
Spatio-temporal Evolution and Relationship of Water Environment Quality and Phytoplankton Community in Wenyu River	ZHU Li-ying, CHEN Yuan-yuan, LIU Jing, <i>et al.</i> (702)
High-Frequency Dynamics of Water Quality and Phytoplankton Community in Inflowing River Mouth of Xin'anjiang Reservoir, China	DA Wen-yi, ZHU Guang-wei, LI Yun-xiang, <i>et al.</i> (713)
Phosphorus Storage Capacity and Loss Risk in Coastal Reed Wetland Surrounding Bohai Sea	SONG Jia-wei, XU Gang, ZHANG Yang, <i>et al.</i> (728)
Spatio-Temporal Variation of Release Flux of Sediment Nitrogen and Phosphorus in High-Risk Period of Algal Bloom in Lake Erhai	LIU Si-ru, ZHAO Ji-dong, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (734)
Fluorescence Characteristics and Source Analysis of DOM in Snowfall of Xi'an	YANG Yi, HAN Li-yuan, LIU Huan-wu, <i>et al.</i> (743)
Performance Assessment of Permeable Interlocking Concrete Pavement Facility Structure	ZHANG Jia-wei, LIU Yong, JIN Jian-rong, <i>et al.</i> (750)
Photocatalytic Degradation of Rhodamine B with Micro-SiC/Graphene Composite Under Visible Light Irradiation	ZHU Hong-qing, YANG Bing, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i> (756)
Removal of BPA and EE2 from Water by Mn-Fe Embedded in Acicular Mullite	ZHOU Qiu-hong, LONG Tian-yu, HE Jing, <i>et al.</i> (763)
Fabrication of La-MHTC Composites for Phosphate Removal; Adsorption Behavior and Mechanism	SONG Xiao-bao, HE Shi-ying, FENG Yan-fang, <i>et al.</i> (773)
Adsorption of Low-Concentration Phosphorus from Water by Composite Metal Modified Biochar	SUN Ting-ting, GAO Fei, LIN Li, <i>et al.</i> (784)
Phosphate Adsorption from Water on CaO ₂ -loaded Magnetic Diatomite	XU Chu-tian, LI Da-peng, ZHANG Shuai, <i>et al.</i> (792)
Phosphorus Forms and Release Risk of Sediments in Urban Sewage Treatment Plant Effluent and Receiving Stream Reach	TANG Ning, LI Ru-zhong, WANG Yu-qing, <i>et al.</i> (801)
Purification Characteristics of Urban Tail Water from Sewage Treatment Plant by Biofilm Ecological Floating Bed	ZHAO Zhi-rui, ZHANG Jia-yao, LI Duo, <i>et al.</i> (809)
Removal Performance of Antibiotic Resistance Genes and Heavy Metal Resistance Genes in Municipal Wastewater by Magnetic-Coagulation Process	YU Wen-chao, ZHENG Li-bing, WEI Yuan-song, <i>et al.</i> (815)
Effect of Tetracycline Antibiotic on Abundance and Transcriptional Expression Level of Tetracycline Resistance Genes in Activated Sludge	RUAN Xiao-hui, QIAN Ya-jie, XUE Gang, <i>et al.</i> (823)
Denitrification Process and N ₂ O Production Characteristics of Heterotrophic Nitrifying Bacterium <i>Pseudomonas aeruginosa</i> YL	YANG Lei, CUI Shen, REN Yong-xiang, <i>et al.</i> (831)
Environmental Factors Influence and Microbial Community Structure Analysis of Entrapped Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria	WANG Xiao-tong, YANG Hong, SU Yang, <i>et al.</i> (839)
Research on Denitrification Performance of Enhanced Secondary Effluent by Embedded Denitrification Filler and Pilot Application	ZHOU Ya-kun, YANG Hong, WANG Shao-lun, <i>et al.</i> (849)
Temporal Anaerobic Effect on Aerobic Granular Sludge with Intermittent Influent-Intermittent Aeration	ZHANG Jie, WANG Yu-ying, LI Dong, <i>et al.</i> (856)
Simultaneous Short-Cut Nitrification-Denitrification Phosphorus Removal Granules Induced by Phosphorus Removal Granules	LI Dong, LIU Bo, WANG Wen-qi, <i>et al.</i> (867)
Spatial Distribution Characteristics and Pollution Assessment of Heavy Metals on Farmland of Geochemical Anomaly Area in Southwest Guangxi	WANG Fo-peng, XIAO Nai-chuan, ZHOU Lang, <i>et al.</i> (876)
Evaluation and Source of Heavy Metal Pollution in Surface Soil of Qinghai-Tibet Plateau	YANG An, WANG Yi-han, HU Jian, <i>et al.</i> (886)
Characteristics and Factors of Soil Enzyme Activity for Different Plant Communities in Yellow River Delta	MO Xue, CHEN Fei-jie, YOU Chong, <i>et al.</i> (895)
Effects of Management Measures on Soil Water-soluble Carbon and Nitrogen and Their Three-Dimensional Fluorescence Characteristics of <i>Pinus tabulaeformis</i> Plantations on Loess Plateau	SONG Ya-hui, ZHANG Jiao-yang, LIU Hong-fei, <i>et al.</i> (905)
Effects of Biochar Input on Changes of Available Nutrient Elements in Riparian Soils with Different Landuse Types	ZHOU Hui-hua, YUAN Xu-yin, XIONG Yu-ting, <i>et al.</i> (914)
Effect of Applying Hydrochar for Reduction of Ammonia Volatilization and Mechanisms in Paddy Soil	YU Shan, XUE Li-hong, HUA Yun, <i>et al.</i> (922)
Effects of Mycorrhizal Fungi on Nitrification and Denitrification in the Rhizospheric Soil of Aquatic Plants and Its Microbial Mechanism	LIU Duo, WANG Lei, CAO Zhan-bo, <i>et al.</i> (932)
Comparison of Floating Chamber and Diffusion Model Methods for Measuring Methane Emissions from Inland Fish-Aquaculture Ponds	HU Tao, HUANG Jian, DING Ying, <i>et al.</i> (941)
Simultaneous Quantitative Detection of Thirteen Common Antibiotics in Leafy Vegetables by Ultra-High Performance Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry	CHEN Qian, LIU Yang, XIAO Li-jun, <i>et al.</i> (952)
Accumulation and Translocation of Cd in <i>Brassica rapa</i> Under the Influence of Selenium	YU Yao, LUO Li-yun, LIU Zhe, <i>et al.</i> (962)
Tolerance Mechanism and Cadmium Enrichment Abilities in Two <i>Brassica napus</i> L. Cultivars	BIAN Jian-lin, GUO Jun-mei, WANG Xue-dong, <i>et al.</i> (970)
Enhanced Phytoextraction of Cadmium Contaminated Soil by <i>Trifolium Repens</i> with Biodegradable Chelate GLDA	HE Yu-long, YU Jiang, XIE Shi-qian, <i>et al.</i> (979)
Heavy Metal Contents in Animal Manure in China and the Related Soil Accumulation Risks	MU Hong-yu, ZHUANG Zhong, LI Yan-ming, <i>et al.</i> (986)
Microbial Community Succession in Industrial Composting with Livestock Manure and Peach Branches and Relations with Environmental Factors	CAI Han-bing, FENG Wen-wen, DONG Yong-hua, <i>et al.</i> (997)
Degradation Characteristics of Antibiotics During Composting of Four Types of Feces	ZHU Wei-jing, ZHU Feng-xiang, WANG Wei-ping, <i>et al.</i> (1005)