

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

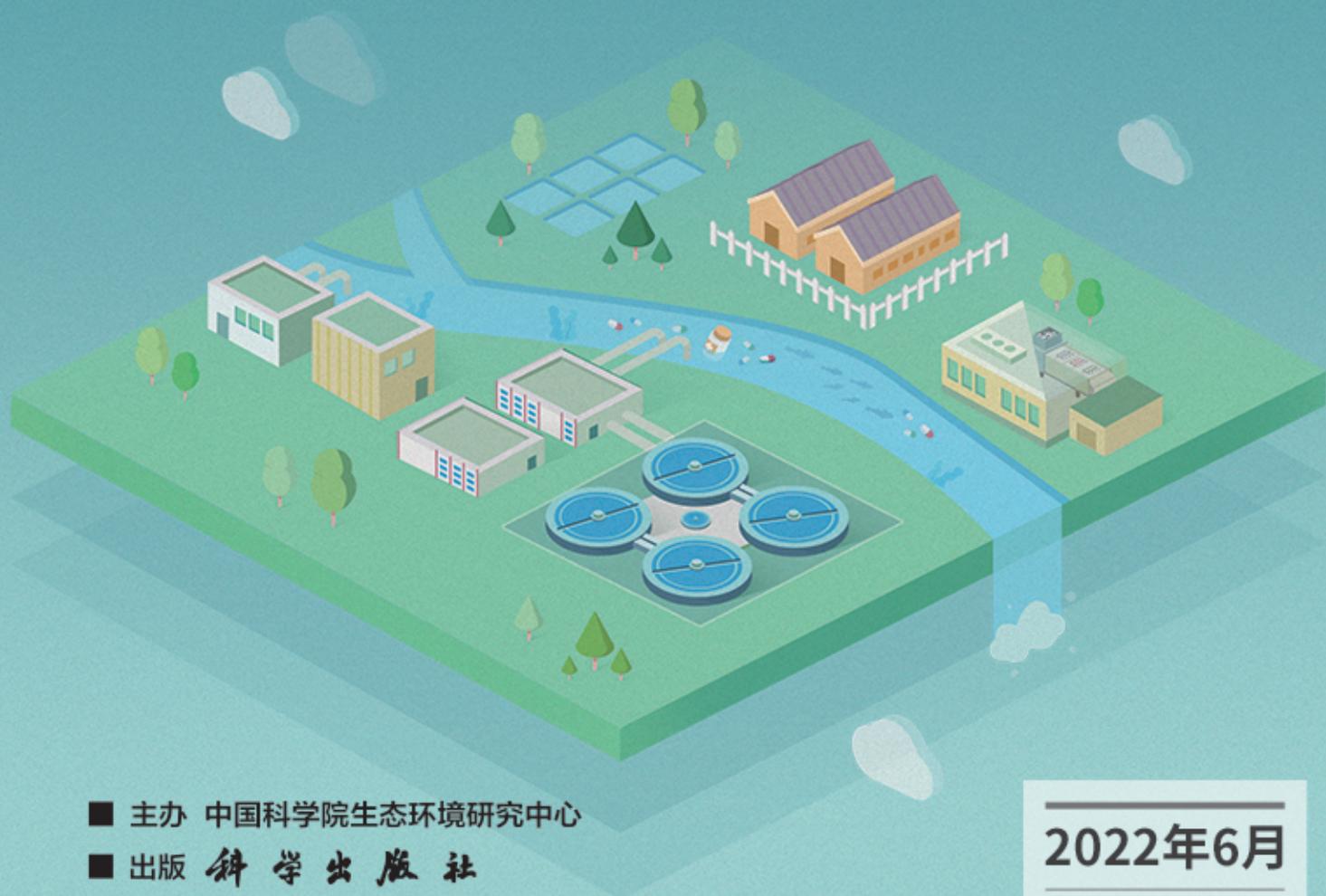
ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价

武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年6月

第43卷 第6期

Vol.43 No.6

目次

COVID-19 管控期间气象条件变化对京津冀 PM_{2.5} 浓度影响 邱雨露, 陈磊, 朱佳, 马志强, 李梓铭, 郭恒, 唐颖潇 (2831)

新冠疫情管控措施对郑州市 PM_{2.5} 浓度、粒径分布、组分和来源的影响 黄兵, 王申博, 和兵, 薛若雨, 高更宇, 张瑞芹 (2840)

COVID-19 管控期间苏州市 PM_{2.5} 中金属元素浓度变化及来源解析 缪青, 杨倩, 吴也正, 魏恒, 周民锋, 张晓华, 邹强 (2851)

2015 ~ 2019 年南京北郊碳质气溶胶组成变化 谢添, 曹芳, 章炎麟, 林煜祺, 范美益, 宋文怀, 鲍孟盈, 项妍琨, 赵祝钰, 杨笑影, 谢锋, 张煜炯, 俞浩然, 张子金, 邢佳莉 (2858)

基于受体和化学传输的综合模型解析重庆 PM_{2.5} 来源 彭超, 李振亮, 曹云攀, 蒲茜, 方维凯, 王晓宸, 汪凌韬 (2867)

保定市冬季 PM_{2.5} 的氧化潜势特征及其影响来源分析 吴继炎, 杨池, 张春燕, 范美益, 吴爱坪, 章炎麟 (2878)

南京江北新区 PM_{2.5} 中水溶性有机氮的污染特征及其来源 关璐, 丁铖, 张毓秀, 胡建林, 于兴娜 (2888)

广西十万大山背景点 PM_{2.5} 中非极性有机气溶胶组成及来源解析 邢佳莉, 曹芳, 王谦, 张煜炯, 章炎麟 (2895)

大气多环芳烃区域迁移转化模型比较与关键影响因素: 以京津冀地区为例 张馨露, 刘世杰, 韩美丽, 苏超, 张志鹏, 马琳琳, 李洋, 程苗苗 (2906)

基于过程分析的京津冀区域典型城市臭氧成因 唐颖潇, 姚青, 蔡子颖, 丁净, 樊文雁, 杨旭, 韩素芹 (2917)

天津市 PM_{2.5}-O₃ 复合污染特征及气象影响分析 肖致美, 李源, 孔君, 李鹏, 蔡子颖, 高璟, 徐虹, 戴运峰, 邓小文 (2928)

2016 ~ 2020 年山东省空气质量时空分布特征及影响因素分析 周梦鸽, 杨依, 孙媛, 张凤英, 李永华 (2937)

河南省臭氧污染趋势特征及敏感性变化 晏洋洋, 尹沙沙, 何秦, 秦凯, 张瑞芹 (2947)

热带气旋对珠三角秋季臭氧污染的影响 赵伟, 吕梦瑶, 卢清, 高博, 梁小明, 刘明, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳 (2957)

武汉市夏季大气挥发性有机物实时组成及来源 苏维峰, 孔少飞, 郑煌, 陈楠, 祝波, 全继宏, 祁士华 (2966)

运城市区夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析 温肖宇, 赵文婷, 罗淑贞, 张强, 王姝涛, 马俊杰, 刘新罡 (2979)

我国地表水新烟碱类杀虫剂对水生生物安全的威胁 范丹丹, 刘红玲, 杨柳燕 (2987)

长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价 武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌 (2996)

内蒙古东北部地区地下-地表饮用水源多环芳烃污染特征与风险 张坤峰, 昌盛, 付青, 樊月婷, 王思璐, 孙兴滨, 王山军 (3005)

不同尺度土地利用方式对地表水环境质量的影响及驱动机制 宋静雯, 张学霞, 姜东旸, 赵丞豪, 李鹏飞 (3016)

高原湖泊周边浅层地下水: 氮素时空分布及驱动因素 李桂芳, 杨恒, 叶远行, 陈清飞, 崔景阳, 陈安强, 张丹 (3027)

青海湖沉积物重金属分布及其潜在生态风险分析 张雅然, 车霏霏, 付正辉, 许野, 李薇 (3037)

东江湖表层沉积物重金属污染特征与潜在生态风险评价 赵晓亮, 李响, 卢洪斌, 卢少勇, 王涛, 张森霖, 国晓春, 张静, 弥启欣, 刘晓贺, 宋书峰 (3048)

湖泊沉积物有机磷释放动力学特征及水质风险 刘哲哲, 倪兆奎, 刘思儒, 李晓秀, 王圣瑞 (3058)

长三角一体化示范区青浦区水体表层沉积物有机质分布特征、来源解析及污染评价 张智博, 段艳平, 涂耀仁, 罗鹏程, 高峻 (3066)

香溪河流域微塑料的分布特征及其迁移规律分析 陈圣盛, 李卫明, 张坤, 熊伟唯, 张续同, 刘子健 (3077)

城市水体微塑料垂向分布下附着细菌群落结构和功能响应 陈玉芳, 闫振华, 张燕, 赵海洲 (3088)

2015 ~ 2020 年洪泽湖浮游植物群落结构及其环境影响因子 屈宁, 邓建明, 张祯, 蔡永久, 龚志军, 李明 (3097)

嘉兴南湖不同湖区浮游植物群落结构特征与环境因子关系 王雅雯, 李迎鹤, 张博, 郭云艳, 陈俊伊, 韩松 (3106)

近 20 年来广东省农业面源污染负荷时空变化与来源分析 葛小君, 黄斌, 袁再健, 王栋栋, 王泉泉, 陈佳村, 谢真越 (3118)

长江上游平原丘陵区农业非点源污染输出特征和驱动机制 谭少军, 刘洋, 朱小婕, 刘荷, 邵景安, 邓华 (3128)

高分辨率数据驱动的流域非点源污染输出风险评估方法 顾晶晶, 冶涛涛, 董甲平, 蒋钟钟, 曹引, 赵红莉 (3140)

不同面源强度影响下城市河流溶解性有机质光谱特征变化 陈旭东, 高良敏 (3149)

生态沟渠-生物滞留池组合控制农村径流污染 石雷, 杨小丽, 吴青宇, 王亦铭, 徐佳莹 (3160)

不同水力扰动强度对老化 PSMPs 在泥水两相间迁移的影响 吴香香, 艾萍, 李大鹏 (3168)

北京市中心城区屋面径流污染特征及来源分析 席玥, 郭婧, 陶蕾, 田颖, 陈吉吉, 吴悦, 徐苏士, 荆红卫, 刘保献 (3177)

不同植被绿色屋顶径流水质年际变化特征 章孙逊, 张守红, 葛德, 闫婧, 杨航, 王任重远, 魏良怡, 张成玉 (3187)

可见光促有机物诱导铁还原的多相类芬顿体系强化效能与机制 曹丝雨, 许路, 付权超, 金鑫, 石炬, 金鹏康 (3195)

4 种典型抗生素在反硝化体系中的去除特性 唐佳, 陈茜, 覃牧川, 唐溪, 唐崇俭 (3204)

农业废弃物基生物炭对水溶液中镉的吸附效果与机制 龚沛云, 孙丽娟, 宋科, 孙雅菲, 秦秦, 周斌, 薛永 (3211)

腐殖酸-重金属对 ANAMMOX 菌脱氮性能的影响及其动力学分析 李芸, 崔楠, 熊星星, 黄志远, 李泽兵, 王东亮, 李朝明, 许丹, 李军 (3221)

2000 ~ 2020 年西南地区植被 NDVI 对气候变化和人类活动响应特征 徐勇, 黄雯婷, 窦世卿, 郭振东, 李欣怡, 郑志威, 靖娟利 (3230)

黄河三角洲湿地不同植被类型下土壤营养元素空间分布及其生态化学计量学特征 孙德斌, 栗云召, 于君宝, 杨继松, 杜朝红, 孙丹丹, 凌越, 马元庆, 周迪, 王雪宏, 赵佳怡 (3241)

青藏高原东北部地区表层土壤中全氟化合物的分布特征及来源解析 温祥洁, 陈朝辉, 徐维新, 吴小娟, 郝云庆, 刘伟, 印红玲, 方淑红 (3253)

西南典型“退耕还林”区土地利用/覆被变化对土壤中硒及重金属含量的影响 刘永林, 刘属灵, 吴梅, 田兴鑫, 刘双燕 (3262)

贵州普定喀斯特关键带土壤重金属形态特征及风险评价 张倩, 韩贵琳 (3269)

南丹盆地东部山区土壤锆分布特征及其影响因素分析 董秋瑶, 赖书雅, 宋超, 温皓天, 严明疆, 杨振京 (3278)

神农架川金丝猴栖息地重金属污染特征及风险评价 严佳莉, 于紫玲, 余辉亮, 向明灯, 王传华 (3288)

石灰海泡石钝化后两种轮作模式对重度镉污染农田土壤的利用及修复 许璐, 周春海, 刘梅, 孔辉, 李元, 黄志红 (3299)

水稻磷盈亏对镉吸收转运的影响 谭文韬, 霍洋, 周航, 仇银燕, 曾鹏, 辜娇峰, 廖柏寒 (3308)

改良剂调控下水稻镉累积和土壤溶解性有机质光谱特征的响应 罗会龙, 陈娟, 张云慧, 袁贝, 杨宾, 张昊, 杜平 (3315)

土壤真菌群落对五台山亚高山草甸退化的响应 罗正明, 赫磊, 刘晋仙, 胡砚秋, 周妍英, 郑庆荣, 柴宝峰 (3328)

小麦与不同作物多样化轮作对土壤真菌群落的影响 靳海洋, 岳俊芹, 闫雅倩, 张德奇, 杨程, 张素瑜, 李向东, 邵运辉, 方保停, 王汉芳, 秦峰 (3338)

重庆农田土壤有机碳稳定性同位素空间分布特征 廖宇琴, 龙娟, 木志坚, 文首鑫, 李翠莲, 杨志敏, 赵秀兰 (3348)

长江三角洲 2018 年土壤 NO 排放特征 廖加强, 薛金, 王文锦, 朱永慧, 朱安生, 黄凌, 王杨君, 李莉 (3357)

基于多源数据的城市扩张中热环境演变及响应 梁建设, 白永平, 杨雪菡, 高祖桥, 李玲蔚, 张春悦, 王倩 (3365)

《环境科学》征订启事 (3004) 《环境科学》征稿简则 (3047) 信息 (3252, 3298, 3327)

4 种典型抗生素在反硝化体系中的去除特性

唐佳^{1,2}, 陈茜^{1,2}, 覃牧川^{1,2}, 唐溪^{1,2}, 唐崇俭^{1,2*}

(1. 中南大学冶金与环境学院, 长沙 410083; 2. 国家重金属污染防治工程技术研究中心, 长沙 410083)

摘要: 污水处理厂是抗生素的重要汇集场所,反硝化是污水处理厂生物脱氮的关键环节。为了探究抗生素在反硝化污泥体系中的去除特性,选取诺氟沙星(NOR)、土霉素(OTC)、磺胺甲噁唑(SMX)和甲氧苄啶(TMP),对比研究了其在不同碳源条件下的变化规律,评估了吸附和生物降解等途径对抗生素去除的贡献。结果表明,反硝化脱氮体系对 NOR、OTC 和 TMP 具有一定的去除作用,且 NOR 和 OTC 可被用作碳源进行反硝化。反硝化污泥对 NOR 和 OTC 的去除是快速吸附和缓慢生物降解的过程,其中,吸附对 NOR 和 OTC 总去除量的贡献率分别达到 83.5% 和 58.9%,生物降解的贡献率分别为 16.5% 和 41.1%。在吸附过程中,胞外聚合物(EPS)吸附的贡献率达到 40% 以上,而在 OTC 的生物降解过程中,P450 酶发挥重要作用,其贡献率达到 20%。

关键词: 反硝化; 抗生素; 吸附; 生物降解; 胞外聚合物

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)06-3204-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.202109144

Removal Characteristics of Four Typical Antibiotics in Denitrification System

TANG Jia^{1,2}, CHEN Xi^{1,2}, QIN Mu-chuan^{1,2}, TANG Xi^{1,2}, TANG Chong-jian^{1,2*}

(1. School of Metallurgy and Environment, Central South University, Changsha 410083, China; 2. Chinese National Engineering Research Center for Control and Treatment of Heavy Metal Pollution, Central South University, Changsha 410083, China)

Abstract: Wastewater treatment plants are an important gathering place for antibiotics, where denitrification plays a vital role in biological nitrogen removal. In order to explore the removal characteristics of antibiotics in a denitrifying sludge system, norfloxacin (NOR), oxytetracycline (OTC), sulfamethoxazole (SMX), and trimethoprim (TMP) were selected to investigate their transformation under different carbon source conditions in a denitrification system. The contribution of adsorption and biodegradation for antibiotic removal was also evaluated in this study. The results showed that a certain proportion of NOR, OTC, and TMP could be removed by denitrification, whereas NOR and OTC could act as the sole carbon source for denitrification. The removal of NOR and OTC showed a rapid adsorption and then slow biodegradation trend in the denitrification system. The contributions of adsorption were recorded as 83.5% and 58.9% for NOR and OTC removal, respectively. More than 40% were adsorbed by extracellular polymer substances (EPS), whereas the P450 enzyme played an important role in the OTC biodegradation process, with a contribution of 20%.

Key words: denitrification; antibiotics; adsorption; biodegradation; extracellular polymer substances

抗生素(antibiotics)是指由细菌、霉菌或其他微生物在生活过程中所产生,具有抗病原体或其他活性的一类次级代谢产物,被广泛地应用于人类及动物的疾病防治、农业生产、畜牧和水产养殖等领域^[1]。我国是世界上最大的抗生素生产和使用国^[2],抗生素每年生产和使用量超过 2.5 万 t^[3]。污水处理厂是抗生素的重要汇集场所,人类活动使用的抗生素会通过多种途径汇集到污水处理厂生物处理系统。如我国厦门某厌氧-缺氧-好氧污水处理厂中检测到 10 种以上抗生素^[4]。在污水生物处理系统中,未被生物降解的抗生素常被吸附到污泥上或残留在水体中。其中,吸附到污泥上且未被去除的抗生素可能会对污泥体系中的功能微生物造成不利影响;抗生素随剩余污泥和出水排入环境,则会加剧水环境功能紊乱,危害水质安全^[5]。因此,研究抗生素在污水处理厂生物处理系统中的归趋及去除特性具有重要意义。

反硝化是污水处理厂生物脱氮的关键环节,反硝化菌可在缺氧及有机物共存条件下将硝态氮转化为氮气^[6]。由于抗生素是一类相对难降解

的特殊有机物,现有大多数研究集中于氧化能力更强的好氧化体系^[7-9],其在缺氧反硝化脱氮体系的变化规律尚不清晰。有研究表明,反硝化对一些有毒难降解有机物的转化起着重要作用^[10],反硝化菌群甚至能够利用芳香族化合物,如邻苯二酚^[11]和苯扎氯氨^[12]等作为碳源进行反硝化。因此,阐明抗生素在反硝化脱氮体系中的去除特性对科学评估抗生素对污水生物处理系统的影响具有重要参考价值。

本研究基于抗生素的分子结构、使用量、生物毒性等特征,筛选出诺氟沙星(norfloxacin, NOR)、土霉素(oxytetracycline, OTC)、磺胺甲噁唑(sulfamethoxazole, SMX)和甲氧苄啶(trimethoprim, TMP)这 4 种典型抗生素,对比研究了其在反硝化体系中的归趋行为和去除机制,以期对污水生物处理

收稿日期: 2021-09-15; 修订日期: 2021-11-13

基金项目: 国家自然科学基金项目(U21A20291, 51878662); 湖南省科技计划重点项目(2017SK2420); 湖南省自然科学基金杰出青年项目(2019JJ20033)

作者简介: 唐佳(1998~),男,硕士研究生,主要研究方向为污水生物脱氮, E-mail: 2247116414@qq.com

* 通信作者, E-mail: chjtang@csu.edu.cn

系统的优化运行提供参考。

1 材料与方法

1.1 主要试剂

实验采用模拟废水. 所需 NO_3^- -N和有机碳源分别以 NaNO_3 和 CH_3COONa 形式提供. 4种典型抗生素,

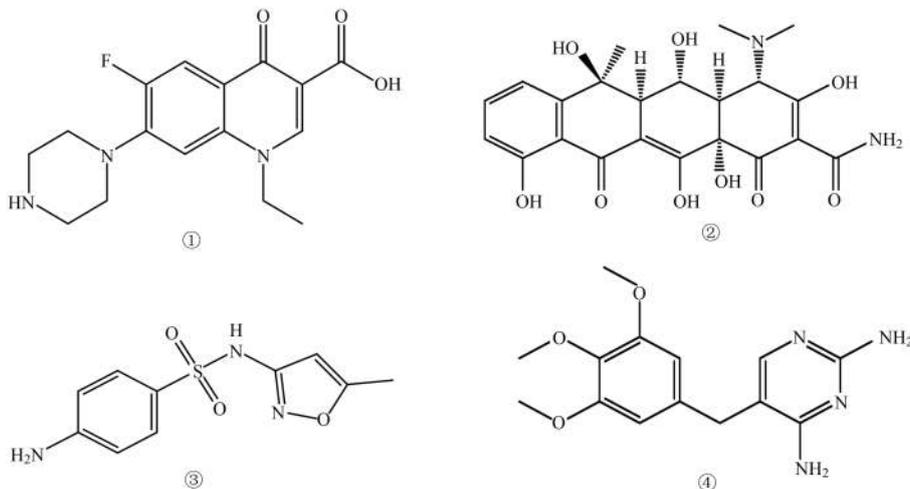
诺氟沙星(CAS # 70458-96-7, norfloxacin, NOR, $\text{C}_{16}\text{H}_{18}\text{FN}_3\text{O}_3$)、土霉素(CAS # 79-57-2, oxytetracycline, OTC, $\text{C}_{22}\text{H}_{24}\text{N}_2\text{O}_9$)、磺胺甲噁唑(CAS #723-46-6, sulfamethoxazole, SMX, $\text{C}_{10}\text{H}_{11}\text{N}_3\text{O}_3\text{S}$)和甲氧苄啶(CAS # 738-70-5, trimethoprim, TMP, $\text{C}_{14}\text{H}_{18}\text{N}_4\text{O}_3$)的理化性质如表1所示。

表1 4种抗生素的理化性质¹⁾

Table 1 Physicochemical properties of four antibiotics

抗生素	缩写	M_r	$\text{p}K_a$	$\lg K_{ow}$	$K_H/\text{Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{mol}^{-1}$	结构式
诺氟沙星	NOR	319.3	5.77, 8.68	-1.03	8.8×10^{-13}	①
土霉素	OTC	460.4	3.27	-0.9	1.7×10^{-20}	②
磺胺甲噁唑	SMX	253.3	5.81	0.89	6.5×10^{-8}	③
甲氧苄啶	TMP	290.3	3.23, 6.76	0.91	2.4×10^{-9}	④

1) M_r 表示相对分子质量, $\text{p}K_a$ 表示酸度系数, $\lg K_{ow}$ 表示辛醇-水分配系数, K_H 表示亨利常数



1.2 实验污泥

反硝化污泥取自实验室长期运行的 5 L SBR, 反应器运行温度保持为 $(30 \pm 1)^\circ\text{C}$, 运行周期为进水(10 min)、缺氧搅拌(300 min)、静置(20 min)、排水(20 min)和闲置(10 min). 反应器氮容积负荷(以 NO_3^- -N计)为 $0.6 \text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$, 有机容积负荷(以 COD 计)为 $2.4 \text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$, 悬浮固体浓度控制在 $2000 \sim 3000 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 高通量测序结果表明反应器中典型的反硝化菌属 *Thauera* 的相对丰度为 26.44%.

1.3 实验方法

采用批次实验考察抗生素在不同基质条件(无碳源供给和外加充足碳源)下的去除情况. 配制反硝化所需的 NO_3^- -N和 CH_3COONa 浓度, 分别加入 $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 NOR、OTC、SMX 和 TMP. 调节 pH 为 6.8~7.0 之间, 加入一定量洗涤干净的实验室培育好的反硝化污泥, 通入 20 min 95% Ar -5% CO_2 气体, 密闭后置于恒温水浴振荡器中, 于 30°C 、 $170 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的条件下避光振荡. 所取水样经 $0.22 \mu\text{m}$ 滤头过滤后测定 NO_2^- -N和 NO_3^- -N等水质指标和抗生素浓度.

为了评估每种去除途径对抗生素去除的贡献, 设计了因素控制实验, 实验条件如表2所示. 在反应体系 I 中, 4种去除途径同时存在; 在反应体系 II 中, 加入 0.1% NaN_3 完全抑制污泥中微生物的活性, 以排除生物降解的作用; 反应体系 III 中, 不加入污泥, 考察挥发和水解对抗生素去除的贡献. 采用如下算式计算生物降解、吸附、挥发和水解作用对抗生素去除量:

$$\text{抗生素生物降解量} = \text{I 中抗生素的去除量} - \text{II 中抗生素的去除量} \quad (1)$$

$$\text{抗生素吸附量} = \text{II 中抗生素的去除量} - \text{III 中抗生素的去除量} \quad (2)$$

为了探究胞外聚合物(extracellular polymeric substances, EPS)和污泥在抗生素吸附中的贡献, 使用改进的方法^[13]提取污泥中的 EPS. 取 1、3、8 和 24 h 反应后的混合液样品, 在 1793 g 的条件下离心 15 min, 上清液经 $0.22 \mu\text{m}$ 滤头过滤后用于测定水中抗生素浓度. 将管内剩余污泥添加 5% NaCl 溶液至原体积, 在 60°C 水浴中水浴 30 min, 然后将混合污泥以 13680 g 离心 15 min, 上清液经 $0.22 \mu\text{m}$ 滤头过滤

表 2 抗生素去除途径的实验设计¹⁾

Table 2 Experimental design of antibiotic removal pathways

反应体系	反硝化污泥	基质	抗生素(1 mg·L ⁻¹)	0.1% NaN ₃	曝气	去除途径
I	+	+	+	-	+	B + A + V + H
II	+	+	+	+	+	A + V + H
III	-	+	+	+	+	V + H

1) B 表示生物降解, A 表示吸附, V 表示挥发, H 表示水解; “+”和“-”分别表示添加和不添加

后用于测定 EPS 吸附的抗生素浓度. 污泥中抗生素浓度通过总吸附量减去 EPS 吸附的量确定.

为了探究 P450 酶在抗生素生物降解中的作用, 通过添加 P450 酶特征抑制剂 1-氨基苯并三唑进行对照实验.

1.4 分析方法

NO₂⁻-N、NO₃⁻-N 和 COD 分别采用 N-(1-萘基)-乙二胺分光光度法、紫外分光光度法、快速消解法进行测定. NOR、OTC、SMX 和 TMP 使用超高效液相色谱 (Acquity UPLC H-class) 测定, 其紫外最大吸收波长(λ_{max}) 分别为 278、355、268 和 271 nm. 色谱柱为 ACQUITY UPLC BEH C₁₈ (1.7 μm, 2.1 mm × 50 mm) 选用乙腈和磷酸盐缓冲液 (PBS, 20 mmol·L⁻¹, pH = 3.0) 作为流动相, 流速为 0.3 mL·min⁻¹, 进样体积为 10 μL, 色谱柱温度为 35℃.

2 结果与讨论

2.1 4 种抗生素在不同碳源条件下的去除特性

2.1.1 无污泥体系下的去除特性

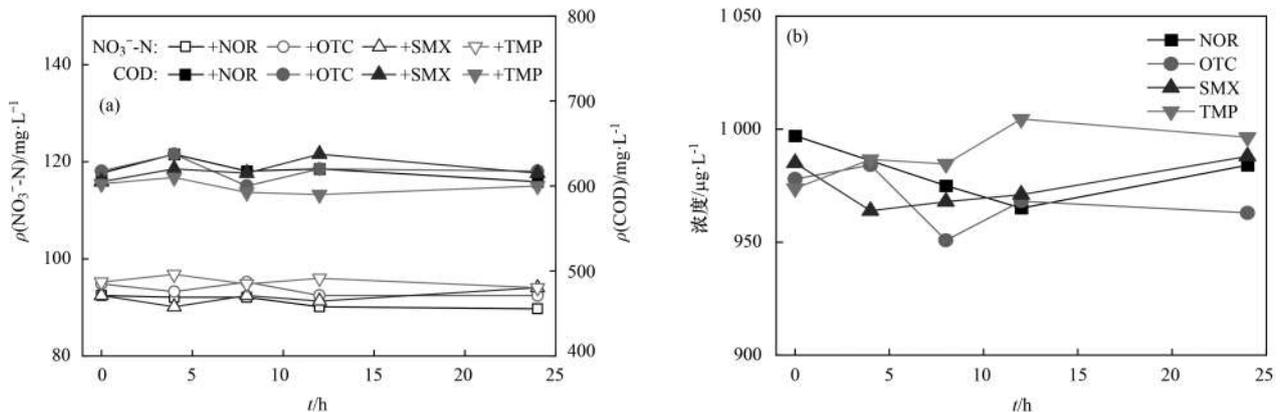
首先考察了不投加反硝化污泥时主要污染物浓度的变化情况, 结果如图 1 所示. 反应体系内的 NO₃⁻-N 和 COD 浓度均保持不变, 表明无微生物时基质不发生化学作用; 4 种抗生素的浓度也保持不变. 据报道, 抗生素在污水生物处理系统中的去除主要包括光解、挥发、水解、吸附和生物降解等作用^[14]. 结果表明, 在所试条件下 4 种抗生素的挥发

和水解作用均可忽略不计. 其难以挥发的原因主要与其极低的亨利定律常数 (1.7 × 10⁻²⁰ ~ 6.5 × 10⁻⁸ Pa·m³·mol⁻¹, 表 1)、较大的相对分子质量 (> 200, 表 1) 和一些极性基团的存在有关^[15].

由于所有实验在避光条件下进行, 也可排除光解作用对抗生素去除的影响. 因此, 后续研究中将主要考察吸附和生物降解对抗生素的去除作用.

2.1.2 反硝化碳源充足时的去除特性

当以乙酸钠为碳源时, 控制 COD/N 为 5 (高于理论反硝化的碳氮比 2.5), 考察了碳源充足条件下 4 种抗生素的去除特性. 前期探索实验表明, 当添加量为 5 mg·L⁻¹ 时, 4 种抗生素均未对反硝化性能产生抑制作用. 但与其他 3 种抗生素明显不同, 磺胺甲噁唑 (SMX) 浓度在初始阶段 (2 h) 稍有降低, 之后又逐步回升至原有水平并保持不变 (图 2), 说明在碳源充足的情况下, 反硝化污泥对 SMX 几乎没有去除作用. 而诺氟沙星 (NOR)、土霉素 (OTC) 和甲氧苄啶 (TMP) 的浓度在 1 h 内分别迅速降至 4、3.8 和 3.3 mg·L⁻¹, 之后 TMP 浓度基本不变, 而 NOR 和 OTC 浓度在后续 23 h 内缓慢持续降低, 最终分别下降到 3.7 mg·L⁻¹ 和 2.3 mg·L⁻¹, 得到的 NOR、OTC 和 TMP 的去除率分别为 18.5%、51.1% 和 31.3%. 有研究认为, 污泥对抗生素的吸附作用发生较为迅速, 因此常将抗生素快速下降的初始 0.5 ~ 2 h 定义为吸附阶段, 将随后时间内发生的继续下降过程定义为生物降解阶段^[16, 17]. 综合实验结果可知, 在反



(a) 添加抗生素下的 NO₃⁻-N 和 COD 浓度的变化; (b) 抗生素浓度变化

图 1 无污泥添加条件下基质和抗生素的浓度变化

Fig. 1 Concentration profile of substrates and antibiotics without addition of sludge

硝化碳源充足情况下,反硝化体系对 NOR、OTC 和 TMP 均发生了吸附和生物降解作用,其中在 OTC 去除中的生物降解作用更为明显。

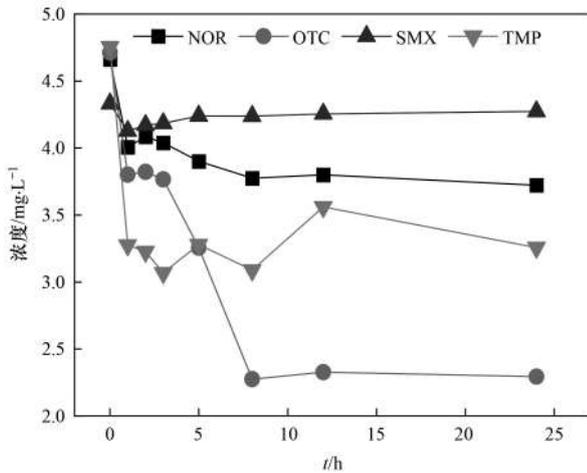


图2 碳源充足时抗生素的浓度变化

Fig. 2 Concentration variation of antibiotics under sufficient carbon source

2.1.3 无外加碳源时的去除特性

保持在反硝化体系中不外加碳源,仅添加 $5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 抗生素为反应体系中唯一有机物质,考察了无外加碳源条件下 4 种抗生素的去除特性,结果如图 3 所示. SMX 和 TMP 浓度在实验过程中几乎不发生变化,表明 SMX 和 TMP 在实验中没有发生去除,进一步说明两者均不能作为有机碳源被反硝化菌群利用. Suarez 等^[18]的研究也指出, SMX 和 TMP 在生物处理过程中难以被降解. 值得指出的是,与碳源充足时不同(图 2),无外加碳源时的 TMP 浓度保持不变,由此可见有机碳源的存在促进了 TMP 的去除,表明反硝化体系对 TMP 的吸附降解过程与微生物代谢作用有关. 而 NOR 和 OTC 的浓度分别降至 $2.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,去除率分别为 53.3% 和

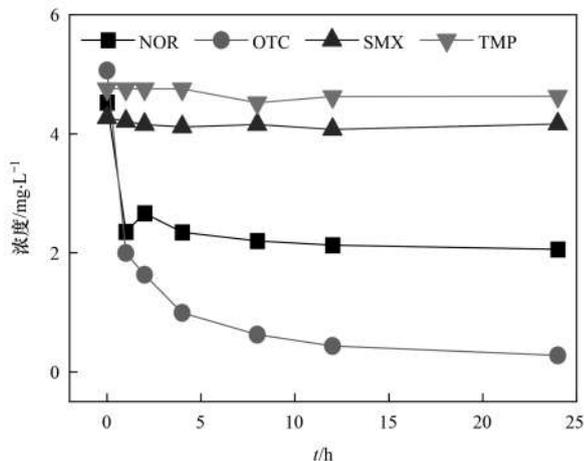


图3 无外加碳源时抗生素的浓度变化

Fig. 3 Concentration variation of antibiotics without external carbon source

94.1%. 由此可知,在无外加碳源条件下,生物降解作用在反硝化去除 NOR 和 OTC 过程中占据主导地位,反硝化菌群能够利用 NOR 和 OTC 作为碳源进行反硝化作用,从而导致抗生素的生物降解。

进一步测定了反应体系中 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 的浓度变化,结果如图 4 所示. 加入 SMX 和 TMP 的实验结果中, $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 浓度基本没有变化. 而加入 NOR 和 OTC 之后,反应体系的硝酸盐浓度明显降低,在反应结束时, $\rho(\text{NO}_3^- \text{-N})$ 从 $50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 分别降低至 $41.4 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $43.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,同时 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 随着时间的变化逐渐积累,在 24 h 时累积到 $3.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $3.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,而对照组中 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 浓度没有明显变化. 这一结果证实,加入 NOR 和 OTC 后反应体系中确实发生了反硝化反应,反硝化菌利用 NOR 和 OTC 或其生物降解产物作为碳源进行了反硝化。

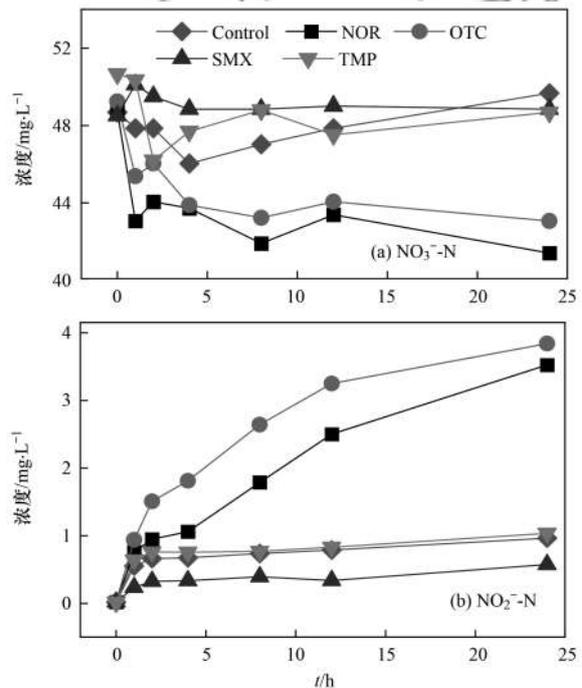


图4 无外加碳源时 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 和 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ 浓度变化

Fig. 4 Concentration of $\text{NO}_3^- \text{-N}$ and $\text{NO}_2^- \text{-N}$ without external carbon source

2.2 碳源充足条件下 NOR 和 OTC 的去除途径分析

2.2.1 吸附作用

由于 NOR 和 OTC 可被反硝化菌群所利用,而 TMP 和 SMX 难以被生物利用,因此后续重点针对 NOR 和 OTC 的去除途径进行分析研究. 在反硝化碳源充足条件下,通过在对照组加入微生物活性抑制剂 NaN_3 ,以完全抑制微生物活性,对比研究了吸附和生物降解对抗生素去除的贡献率. 如图 5 所示,对于 NaN_3 抑制组,在反应的初始 1 h 内, NOR 和 OTC 都以较快速度被吸附去除,吸附量(污泥以 VSS 计)

分别为 $204 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $173.7 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$, 之后吸附速率逐渐减慢. NOR 和 OTC 通过吸附作用所致的去除率分别为 39.4% 和 33.8%. 这是因为吸附初期, 污泥上的吸附结合位点丰富, 吸附速度快, 随着时间的推移和吸附作用的进行, 有效结合位点减少, 吸附速率下降^[19]. 一般认为, 抗生素会先吸附到污泥的外表面, 然后通过污泥孔隙结构进入污泥实现内部吸附, 但抗生素是有机物, 分子筛效应导致抗生素在污泥内部的吸附过程较慢^[20]. 与吸附不同的是, 在非

NaN_3 抑制组, NOR 和 OTC 的生物降解过程缓慢, 且持续时间较长, 在 24 h 内对 NOR 和 OTC 的去除率分别为 7.8% 和 23.5%. 总体来看, 吸附和生物降解对 NOR 总去除量的贡献率分别为 83.4% 和 16.5%, 对 OTC 去除量的贡献率分别为 58.9% 和 44.1%. 因此, 污泥对 NOR 和 OTC 的去除是先快速吸附再缓慢生物降解的过程; 吸附是反硝化体系去除抗生素的重要初始步骤, 之后再通过生物降解不断去除.

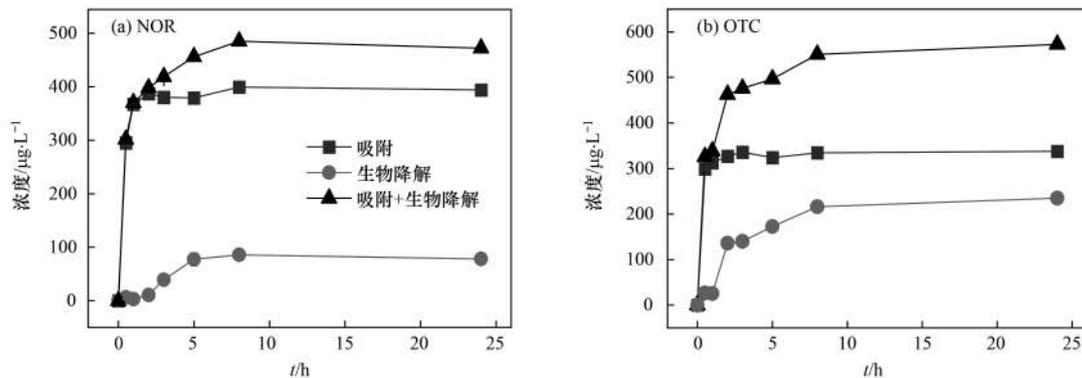
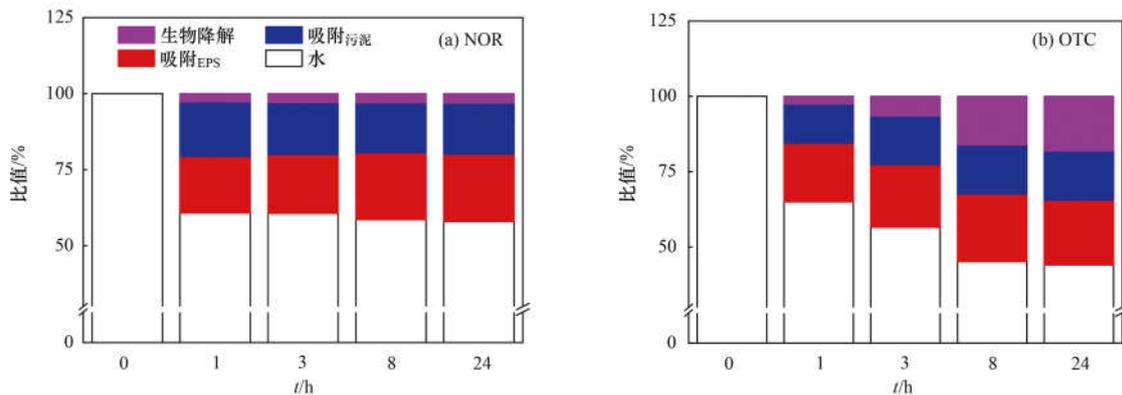


图 5 NOR 和 OTC 的吸附和生物降解量随时间的变化

Fig. 5 Effect of contact time on NOR and OTC biosorption and degradation

反硝化污泥对 NOR 和 OTC 都具有较强的吸附能力. 胞外聚合物 (EPS) 作为细胞间黏合的介质, 在废水生物处理过程中对微量有机物的吸附去除具有重要作用. EPS 的化学组分复杂, 包括蛋白质、多糖、核酸、腐殖质和氨基酸等, 其中蛋白质和多糖占其总量的 70% 以上^[21], 存在多种官能团和疏水区域, 因此能够为有机物的吸附提供结合位点. 有研究表明, 许多微量有机物包括抗生素都能被 EPS 吸附^[22]. 为了进一步探究 NOR 和 OTC 在污泥和 EPS 上的吸附情况, 分别测定了水体、EPS 和污泥中的抗生素含量, 结果如图 6 所示. 前期探索实验表明, 在所试 NOR 和 OTC 含量水平, $\omega(\text{EPS})$ 变化低于 3

$\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$, 因此抗生素对污泥 EPS 产量的影响可忽略不计. NOR 的分布表明, 污泥和 EPS 都能够吸附 NOR, 初始 1 h 内, NOR 主要被 EPS 吸附, EPS 吸附量占总吸附量的 49%. 之后 EPS 对 NOR 的吸附量略有下降, 但仍然保持在 43% 左右; 提取 EPS 后的污泥对 NOR 的吸附比例逐渐增加, 表明被 EPS 吸附的 NOR 可能进一步进入细胞, 继而生物降解. OTC 的分布规律也显示, OTC 一开始主要被吸附到 EPS 上, 之后逐渐释放到污泥中, EPS 吸附占吸附总量的 43.1%. 由此可知, EPS 在污泥的吸附中发挥了重要作用, 其较强的吸附能力有利于后续生物降解的进行.



纵坐标表示某一时刻抗生素在水体、EPS 和污泥中的含量与抗生素的初始含量的比值

图 6 NOR 和 OTC 在污泥和 EPS 上的吸附情况

Fig. 6 Adsorption distribution of NOR and OTC in sludge and EPS

2.2.2 生物降解作用

细胞色素 P450 酶普遍存在于细菌中^[23], 在多种抗生素、药物的生物转化中起到重要作用^[24,25]. 为探究碳源充足条件下 P450 酶对 NOR 和 OTC 降解的贡献, 通过添加 1-氨基苯并三唑 (P450 酶特征抑制剂), 对比研究了 2 种抗生素的去除情况, 结果如图 7 所示. 与不添加 P450 酶抑制剂时的去除率 (NOR 为 54.2%, OTC 为 60.1%)

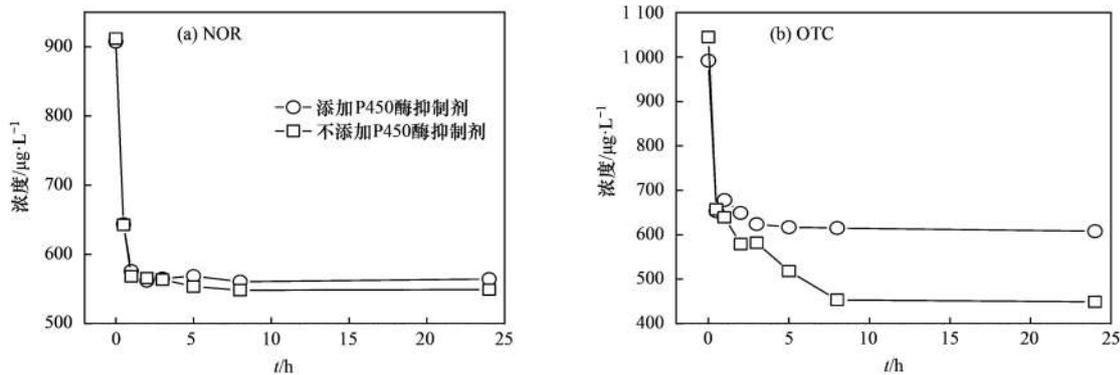


图 7 P450 酶在 NOR 和 OTC 降解中的作用

Fig. 7 Role of P450 enzyme in the biodegradation of NOR and OTC

3 结论

(1) 反硝化污泥对 SMX 几乎没有去除能力, 但在碳源充足时, 对 NOR、OTC 和 TMP 有一定的去除作用; 在无碳源存在的条件下, 反硝化污泥可利用 NOR 和 OTC 作为碳源进行反硝化, 去除率分别可达 53.3% 和 94.1%。

(2) 反硝化污泥对 NOR 和 OTC 的去除是快速吸附和缓慢生物降解的过程. NOR 和 OTC 的去除都以吸附为主, 吸附对 NOR 和 OTC 总去除量的贡献率分别为 83.5% 和 58.9%. EPS 在抗生素的吸附过程中起着重要作用, 其对 NOR 和 OTC 的吸附量均占总吸附量的 40% 以上。

(3) 反硝化污泥生物降解 OTC 的能力 (23.5%) 高于 NOR (7.8%)。P450 酶在碳源充足条件下对 OTC 的生物降解起着重要作用, 其对生物降解的贡献率达到 20%。

参考文献:

[1] 章强, 辛琦, 朱静敏, 等. 中国主要水域抗生素污染现状及生态环境效应研究进展[J]. 环境化学, 2014, **33**(7): 1075-1083.
Zhang Q, Xin Q, Zhu J M, et al. The antibiotic contaminations in the main water bodies in China and the associated environmental and human health impacts [J]. Environmental Chemistry, 2014, **33**(7): 1075-1083.
[2] Zhu Y G, Johnson T A, Su J Q, et al. Diverse and abundant antibiotic resistance genes in Chinese swine farms [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2013, **110**(9): 3435-3440.

相比, 加入 P450 酶抑制剂后, NOR 的去除效率几乎不变; 而 OTC 的去除率降低了 20.1%, 说明在 OTC 的降解中 P450 酶确实发挥了重要作用. P450 酶是一类丰富的酶家族, 也是常见的药物降解酶, 有研究表明 P450 酶可以分解哌嗪基, 或者发生羟基化反应^[26]. 但关于其对 OTC 的生物降解过程是否涉及反硝化或微生物共代谢机制, 尚需进一步深入研究。

[3] Yan C X, Yang Y, Zhou J L, et al. Antibiotics in the surface water of the Yangtze Estuary: occurrence, distribution and risk assessment [J]. Environmental Pollution, 2013, **175**: 22-29.
[4] Ashfaq M, Li Y, Wang Y W, et al. Occurrence, fate, and mass balance of different classes of pharmaceuticals and personal care products in an anaerobic-anoxic-oxic wastewater treatment plant in Xiamen, China [J]. Water Research, 2017, **123**: 655-667.
[5] 王大鹏, 张娴, 颜昌宙. 4 种磺胺类药物及乙酰化代谢物在污水处理厂的去除及机制 [J]. 环境科学, 2019, **40**(3): 1347-1352.
Wang D P, Zhang X, Yan C Z. Removal efficiencies and mechanism research on four sulfonamides and their acetyl metabolites in a wastewater treatment plant [J]. Environmental Science, 2019, **40**(3): 1347-1352.
[6] 代莎, 李彭, 彭五庆, 等. 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 [J]. 环境科学, 2020, **41**(3): 1401-1408.
Dai S, Li P, Peng W Q, et al. Influence of antibiotics on the denitrification process of antibiotic resistant denitrifying bacteria and the analysis of microbial community structure [J]. Environmental Science, 2020, **41**(3): 1401-1408.
[7] 赵亚奇. A/O-MBR 工艺对废水中抗生素的去除效能研究 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2017.
[8] 邓红娜. 好氧颗粒污泥处理含磺胺甲恶唑污水效能研究 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨商业大学, 2020.
[9] 赵霞. 好氧颗粒污泥系统处理含 PPCPs 污水的效能及微生物群落演替 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2015.
[10] Hutchins S R, Sewell G W, Kovacs D A, et al. Biodegradation of aromatic hydrocarbons by aquifer microorganisms under denitrifying conditions [J]. Environmental Science & Technology, 1991, **25**(1): 68-76.
[11] Moussavi G, Jafari S J, Yaghmaeian K. Enhanced biological denitrification in the cyclic rotating bed reactor with catechol as carbon source [J]. Bioresource Technology, 2015, **189**: 266-272.

- [12] Tezel U, Pavlostathis S G. Transformation of benzalkonium chloride under nitrate reducing conditions [J]. Environmental Science & Technology, 2009, **43**(5): 1342-1348.
- [13] Li X Y, Yang S F. Influence of loosely bound extracellular polymeric substances (EPS) on the flocculation, sedimentation and dewaterability of activated sludge [J]. Water Research, 2007, **41**(5): 1022-1030.
- [14] Min X B, Li W, Wei Z S, *et al.* Sorption and biodegradation of pharmaceuticals in aerobic activated sludge system: a combined experimental and theoretical mechanistic study [J]. Chemical Engineering Journal, 2018, **342**: 211-219.
- [15] Li B, Zhang T. Biodegradation and adsorption of antibiotics in the activated sludge process [J]. Environmental Science & Technology, 2010, **44**(9): 3468-3473.
- [16] Xu J, Sheng G P, Ma Y, *et al.* Roles of extracellular polymeric substances (EPS) in the migration and removal of sulfamethazine in activated sludge system [J]. Water Research, 2013, **47**(14): 5298-5306.
- [17] Meng F G, Gao G H, Yang T T, *et al.* Effects of fluoroquinolone antibiotics on reactor performance and microbial community structure of a membrane bioreactor [J]. Chemical Engineering Journal, 2015, **280**: 448-458.
- [18] Suarez S, Lema J M, Omil F. Removal of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) under nitrifying and denitrifying conditions [J]. Water Research, 2010, **44**(10): 3214-3224.
- [19] Wei D, Li M T, Wang X D, *et al.* Extracellular polymeric substances for Zn (II) binding during its sorption process onto aerobic granular sludge [J]. Journal of Hazardous Materials, 2016, **301**: 407-415.
- [20] Ji L L, Chen W, Duan L, *et al.* Mechanisms for strong adsorption of tetracycline to carbon nanotubes: a comparative study using activated carbon and graphite as adsorbents [J]. Environmental Science & Technology, 2009, **43**(7): 2322-2327.
- [21] 钱飞跃, 王琰, 王建芳, 等. 好氧颗粒污泥中凝胶型聚多糖的特性研究进展 [J]. 化学通报, 2015, **78**(4): 320-324.
- Qian F Y, Wang Y, Wang J F, *et al.* Advances in the study on gel-forming property of exopolysaccharides isolated from aerobic granular sludge [J]. Chemistry, 2015, **78**(4): 320-324.
- [22] Sheng G P, Yu H Q, Li X Y. Extracellular polymeric substances (EPS) of microbial aggregates in biological wastewater treatment systems: a review [J]. Biotechnology Advances, 2010, **28**(6): 882-894.
- [23] Sheng G P, Yu H Q, Yue Z B. Production of extracellular polymeric substances from *Rhodospseudomonas acidophila* in the presence of toxic substances [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2005, **69**(2): 216-222.
- [24] Mir-Tutusaus J A, Masís-Mora M, Corcellas C, *et al.* Degradation of selected agrochemicals by the white rot fungus *Trametes versicolor* [J]. Science of the Total Environment, 2014, **500-501**: 235-242.
- [25] Gao N, Liu C X, Xu Q M, *et al.* Simultaneous removal of ciprofloxacin, norfloxacin, sulfamethoxazole by co-producing oxidative enzymes system of *Phanerochaete chrysosporium* and *Pycnoporus sanguineus* [J]. Chemosphere, 2018, **195**: 146-155.
- [26] Jia Y Y, Khanal S K, Shu H Y, *et al.* Ciprofloxacin degradation in anaerobic sulfate-reducing bacteria (SRB) sludge system: Mechanism and pathways [J]. Water Research, 2018, **136**: 64-74.

CONTENTS

Impacts of Changes in Meteorological Conditions During COVID-19 Lockdown on PM _{2.5} Concentrations over the Jing-Jin-Ji Region	QIU Yu-lu, CHEN Lei, ZHU Jia, <i>et al.</i> (2831)
Influence of COVID-19 Prevention and Control Measures on PM _{2.5} Concentration, Particle Size Distribution, Chemical Composition, and Source in Zhengzhou, China	HUANG Bing-yi, WANG Shen-bo, HE Bing, <i>et al.</i> (2840)
Concentration Variation and Source Analysis of Metal Elements in PM _{2.5} During COVID-19 Control in Suzhou	MIAO Qing, YANG Qian, WU Ye-zheng, <i>et al.</i> (2851)
Changes in Carbonaceous Aerosol in the Northern Suburbs of Nanjing from 2015 to 2019	XIE Tian, CAO Fang, ZHANG Yan-lin, <i>et al.</i> (2858)
Source Apportionment of PM _{2.5} Based on Hybrid Chemical Transport and Receptor Model in Chongqing	PENG Chao, LI Zhen-liang, CAO Yun-qing, <i>et al.</i> (2867)
Analysis on the Characteristics of Oxidation Potential and Influence Sources of PM _{2.5} in Baoding City in Winter	WU Ji-yan, YANG Chi, ZAHNG Chun-yan, <i>et al.</i> (2878)
Pollution Characteristics and Sources of Water-soluble Organic Nitrogen in PM _{2.5} in Jiangbei New Area, Nanjing	GUAN Lu, DING Cheng, ZHANG Yu-xiu, <i>et al.</i> (2888)
Organic Aerosols and Source Analysis of Fine Particles in the Background of Shiwanda Mountain, Guangxi	XING Jia-li, CAO Fang, WANG Qian, <i>et al.</i> (2895)
Comparison of Regional Transport and Transformation Models of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Research on Key Influencing Factors: Take the Beijing-Tianjin-Hebei Region as Example	ZHANG Xin-lu, LIU Shi-jie, HAN Mei-li, <i>et al.</i> (2906)
Exploring Formation of Ozone in Typical Cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region Using Process Analysis	TANG Ying-xiao, YAO Qing, CAI Zi-ying, <i>et al.</i> (2917)
Characteristics and Meteorological Factors of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Tianjin	XIAO Zhi-mei, LI Yuan, KONG Jun, <i>et al.</i> (2928)
Spatio-temporal Characteristics of Air Quality and Influencing Factors in Shandong Province from 2016 to 2020	ZHOU Meng-ge, YANG Yi, SUN Yuan, <i>et al.</i> (2937)
Trend Changes in Ozone Pollution and Sensitivity Analysis of Ozone in Henan Province	YAN Yang-yang, YIN Sha-sha, HE Qin, <i>et al.</i> (2947)
Effects of Tropical Cyclones on Ozone Pollution in the Pearl River Delta in Autumn	ZHAO Wei, LÜ Meng-yao, LU Qing, <i>et al.</i> (2957)
Real-time Composition and Sources of VOCs in Summer in Wuhan	SU Wei-feng, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (2966)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Summer in Yuncheng City	WEN Xiao-yu, ZHAO Wen-ting, LUO Shu-zhen, <i>et al.</i> (2979)
Neonicotinoid Insecticides Threaten Surface Waters at the National Scale in China	FAN Dan-dan, LIU Hong-ling, YANG Liu-yan (2987)
Spatiotemporal Distribution and Risk Assessment of Pharmaceuticals in Typical Drinking Water Sources in the Middle Reaches of the Yangtze River	WU Jun-mei, WEI Lin, PENG Jing-qian, <i>et al.</i> (2996)
Pollution Characteristics and Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Underground and Surface Drinking Water Sources in Northeast Inner Mongolia	ZHANG Kun-feng, CHANG Sheng, FU Qing, <i>et al.</i> (3005)
Impact of Land Use Types at Different Scales on Surface Water Environment Quality and Its Driving Mechanism	SONG Jing-wen, ZHANG Xue-xia, JIANG Dong-yang, <i>et al.</i> (3016)
Shallow Groundwater Around Plateau Lakes: Spatiotemporal Distribution of Nitrogen and Its Driving Factors	LI Gui-fang, YANG Heng, YE Yuan-hang, <i>et al.</i> (3027)
Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Lake Qinghai	ZHANG Ya-ran, CHE Fei-fei, FU Zheng-hui, <i>et al.</i> (3037)
Analysis of Heavy Metal Pollution Characteristics and Potential Ecological Risks of Surface Sediments in Dongjiang Lake	ZHAO Xiao-liang, LI Xiang, LU Hong-bin, <i>et al.</i> (3048)
Kinetic Release Characteristics of Organic Phosphorus of Sediment-water and Water Quality Risks	LIU Zhe-zhe, NI Zhao-kui, LIU Si-ru, <i>et al.</i> (3058)
Distribution Characteristics, Source Analysis, and Pollution Evaluation of Organic Matter in Surface Sediments of Qingpu District, Yangtze River Delta Integration Demonstration Area	ZHANG Zhi-bo, DUAN Yan-ping, TU Yao-ji, <i>et al.</i> (3066)
Distribution Characteristics of Microplastics and Their Migration Patterns in Xiangxi River Basin	CHEN Sheng-sheng, LI Wei-ming, ZHANG Kun, <i>et al.</i> (3077)
Community Structure and Microbial Function Responses of Biofilms Colonizing on Microplastics with Vertical Distribution in Urban Water	CHEN Yu-fang, YAN Zhen-hua, ZHANG Yan, <i>et al.</i> (3088)
Community Structure of Phytoplankton and Environmental Impact Factors in Lake Hongze from 2015 to 2020	QU Ning, DENG Jian-ming, ZHANG Zhen, <i>et al.</i> (3097)
Structural Characteristics of Zooplankton and Phytoplankton Communities and Its Relationship with Environmental Factors in Different Regions of Nanhu Lake in Jiaxing City	WANG Ya-wen, LI Ying-he, ZHANG Bo, <i>et al.</i> (3106)
Temporal and Spatial Variation Characteristics and Source Analysis of Agricultural Non-point Source Pollution Load in Guangdong During the Past 20 Years	GE Xiao-jun, HUANG Bin, YUAN Zai-jian, <i>et al.</i> (3118)
Output Characteristics and Driving Mechanism of Agricultural Non-point Source (AGNPS) Pollutant in Plain and Valley Region of Upper Yangtze River, China	TAN Shao-jun, LIU Yang, ZHU Xiao-jie, <i>et al.</i> (3128)
Risk Assessment Method of Non-point Source Pollution Output for Watershed Using High Resolution Data	GU Jing-jing, YE Yun-tao, DONG Jia-ping, <i>et al.</i> (3140)
Spectral Characteristics Change in Dissolved Organic Matter in Urban River Under the Influences of Different Intensities of Non-point Source Pollution	CHEN Xu-dong, GAO Liang-min (3149)
Combination of Ecological Ditch and Bioretention Pond to Control Rural Runoff Pollution	SHI Lei, YANG Xiao-li, WU Qing-yu, <i>et al.</i> (3160)
Influence of Different Hydraulic Disturbance Intensities on the Migration of Aged PSMPs Between Sediment and Water	WU Xiang-xiang, AI Ping, LI Da-peng (3168)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of Rainfall Runoff from Roofs in the Central District of Beijing	XI Yue, GUO Jing, TAO Lei, TIAN Ying, <i>et al.</i> (3177)
Inter-annual Changes in Runoff Quality from Green Roofs with Different Vegetation	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, GE De, <i>et al.</i> (3187)
Effectivity of Multiphase Fenton-like System of Iron Reduction Induced by Bisphenol A Autoxidation	CAO Si-yu, XU Lu, FU Quan-chao, <i>et al.</i> (3195)
Removal Characteristics of Four Typical Antibiotics in Denitrification System	TANG Jia, CHEN Xi, QIN Mu-chuan, <i>et al.</i> (3204)
Adsorption Capacity and Mechanism of Biochar Derived from Typical Agricultural Wastes for Cadmium in Aqueous Solutions	GONG Pei-yun, SUN Li-juan, SONG Ke, <i>et al.</i> (3211)
Effect of Humic Acid-Heavy Metals on the Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Bacteria and Its Kinetic Analysis	LI Yun, CUI Nan, XIONG Xing-xing, <i>et al.</i> (3221)
Responding Mechanism of Vegetation Cover to Climate Change and Human Activities in Southwest China from 2000 to 2020	XU Yong, HUANG Wen-ting, DOU Shi-qing, <i>et al.</i> (3230)
Spatial Distribution and Eco-stoichiometric Characteristics of Soil Nutrient Elements Under Different Vegetation Types in the Yellow River Delta Wetland	SUN De-bin, LI Yun-zhao, YU Jun-bao, <i>et al.</i> (3241)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Perfluoroalkyl Substances in Surface Soils of the Northeast Tibetan Plateau	WEN Xiang-jie, CHEN Zhao-hui, XU Wei-xin, <i>et al.</i> (3253)
Effect of Land Use/Land Cover Change on the Concentration of Se and Heavy Metals in Soils from a "Return Cropland to Forest" Area, Southwest China	LIU Yong-lin, LIU Shu-ling, WU Mei, <i>et al.</i> (3262)
Speciation Characteristics and Risk Assessment of Soil Heavy Metals from Puding Karst Critical Zone, Guizhou Province	ZHANG Qian, HAH Gui-lin (3269)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Germanium in Soil in the Eastern Mountainous Area of the Nanyang Basin	DONG Qiu-yao, LAI Shu-ya, SONG Chao, <i>et al.</i> (3278)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Risk Assessment of Golden Snub-nosed Monkey (<i>Rhinopithecus roxellana</i>) Habitat in Shennongjia Mountains	YAN Jia-li, YU Zi-ling, YU Hui-liang, <i>et al.</i> (3288)
Utilization and Remediation of Heavily Cadmium-Contaminated Agricultural Soils by Two Crop Rotation Patterns After Lime and Sepiolite Passivation	XU Lu, ZHOU Chun-hai, LIU Mei, <i>et al.</i> (3299)
Effects of Phosphorus Sufficiency and Deficiency on Cadmium Uptake and Transportation by Rice	TAN Wen-tao, HUO Yang, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (3308)
Responses of Cd Accumulation in Rice and Spectral Characteristics of Soil Dissolved Organic Matter Regulated by Soil Amendments	LUO Hui-long, CHEN Juan, ZHANG Yun-hui, <i>et al.</i> (3315)
Responses of Soil Fungal Communities to Subalpine Meadow Degradation in Mount Wutai	LUO Zheng-ming, HE Lei, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (3328)
Response of Soil Fungal Communities in Diversified Rotations of Wheat and Different Crops	JIN Hai-yang, YUE Jun-qin, YAN Ya-qian, <i>et al.</i> (3338)
Spatial Characterization of Stable Isotope Composition of Organic Carbon from Farmland Soils in Chongqing	LIAO Yu-qin, LONG Juan, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (3348)
Characteristics of Soil NO Emissions in the Yangtze River Delta Region for Year 2018	LIAO Jia-qiang, XUE Jin, WANG Wen-jin, <i>et al.</i> (3357)
Thermal Environment Evolution and Response Mechanism of Urban Sprawl Based on Multi-source Data	LIANG Jian-she, BAI Yong-ping, YANG Xue-di, <i>et al.</i> (3365)