

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第12期

Vol.35 No.12

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办

斜学出版社出版



ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第12期2014年12月15日

目 次(卷终)

北京雾霾天气生物气溶胶浓度和粒径特征
杭州大气颗粒物散射消光特性及霾天气污染特征 徐昶,叶辉,沈建东,孙鸿良,洪盛茂,焦荔,黄侃(4422)
太原市采暖季 PM _{2.5} 中元素特征及重金属健康风险评价 ······· 李丽娟, 温彦平, 彭林, 白慧玲, 刘凤娴, 史美鲜(4431)
成都市城区 PM _{2.5} 中二次水溶性无机离子污染特征 李友平,周洪,张智胜,王启元,罗磊(4439)
北京市臭氧的时空分布特征 王占山,李云婷,陈添,张大伟,孙峰,孙瑞雯,董欣,孙乃迪,潘丽波(4446)
南京北郊大气 VOCs 变化特征及来源解析 安俊琳,朱彬,王红磊,杨辉(4454)
祁连山中段降水化学的环境意义研究 李宗杰,李宗省,田青,宋玲玲,贾冰,郭瑞,宋耀选,苏索南,韩春坛(4465)
中亚热带典型林分不同层次氮硫湿沉降动态变化 孙涛,马明,王定勇,黄礼昕(4475)
本底大气 CO ₂ 观测分析过程中 QA/QC 方法的建立与评估 刘立新,周凌晞,夏玲君,王红阳,方双喜(4482)
轻型汽油车 CH_4 和 N_2O 排放因子研究 ·······················何立强,宋敬浩,胡京南,解淑霞,祖雷(4489)
煤燃烧超细微粒粒径谱演变及排放因子的实验研究
来然死起细腻性性性相便又及肝灰色」的关型明九 11 11 11 11 11 11 11 11 11 11 11 11 11
春、夏季长江口及其邻近海域溶解N,O的分布和海-气交换通量
珠江口水体组分的吸收特性分析
河流汇合处水体磷素形态特征及紫外光照的影响: 以渠江-嘉陵江、涪江-嘉陵江交汇为例
基于太湖微囊藻毒素的叶绿素 a 阈值研究 魏代春,苏婧,纪丹凤,伏小勇,王骥,霍守亮,崔驰飞,唐军,席北斗(4530)
百花湖周边城市近郊小流域氮、磷输出时空特征 冯源嵩, 林陶, 杨庆媛(4537)
自然光照对淹水条件下三峡库区消落带典型土壤磷释放影响 郭念, 江韬, 魏世强, 闫金龙, 梁俭, 卢松, 高洁(4544)
垂直流人工湿地 LDHs 覆膜改性沸石基质强化除磷效果及其机制 ················ 张翔凌,陈俊杰,郭露,陈巧珍,王晓晓(4553)
三峡库区消落带3种植物淹水后汞的动态变化及其对水体的影响 张翔,张成,孙荣国,王定勇(4560)
纳米 TiO ₂ 对底泥中汞释放及活化的影响 张金洋,李楚娴,王定勇,周雄,孙荣国,张成,梁丽(4567)
首都水源地——洋河流域人为源多环芳烃(PAHs)排放清单估算及其影响分析 ······ 高佳佳,罗维,奚晓霞(4573)
石化工业园区有毒废水来源识别研究 杨茜,于茵,周岳溪,陈学民,伏小勇,王淼(4582)
污水处理厂中红霉素抗药性基因的污染特征及选择性因子 李侃竹,吴立乐,黄圣琳,何势,刘振鸿,薛罡,高品(4589)
2种填料 BAF 深度处理印染废水沿程污染物变化规律研究 ····································
硫酸盐还原型甲烷厌氧氧化菌群驯化及其群落特征 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
MBR 处理腈纶废水的效能及微生物群落结构分析
MBK 处理朋纪放小的效能及似生物矸洛结构开例
制革废水的厌氧氨氧化 ABR 脱氮工艺研究
生物滤池工艺的数值模拟与运行优化
气力装置对伏氧氨氧化污泥形态及性能的影响 ························· 李拜, 黄男, 哀怡, 周呈, 除宗妲, 张大林(4636)
给水厂污泥改良生物滞留填料除磷效果的研究
北京地区不同城镇污水处理厂堆肥污泥的营养含量和重金属污染 白莉萍,齐洪涛,伏亚萍,李萍(4648)
电子垃圾拆解区污染池塘中鱼类多氯联苯及其代谢产物的组织分配及暴露风险 唐斌,罗孝俊,曾艳红,麦碧娴(4655)
广东罗非鱼养殖区水体和鱼体中重金属、HCHs、DDTs 含量及风险评价
崇明典型水生生物中雌激素含量和分布特征 耿婧婧,叶爱丽,杨毅,刘敏,张婧,周俊良(4671)
啶虫脒光催化降解动力学的优化及其降解产物的分析 周文常,阳海,胡志斌,兰世林(4678)
氮添加对生长季寒温带针叶林土壤有效氮和酸化的影响 陈高起,傅瓦利,罗亚晨,高文龙,李胜功,杨浩(4686)
土地利用方式对缙云山土壤团聚体稳定性及其有机碳的影响 李鉴霖, 江长胜, 郝庆菊(4695)
上海市郊设施大棚次生盐渍化土壤盐分含量调查及典型对应分析 唐冬,毛亮,支月娥,张进忠,周培,柴晓彤(4705)
某铅酸蓄电池污染场地表层土壤重金属 Pb 空间分布预测研究 ····································
海泡石对镉-铅复合污染钝化修复效应及其土壤环境质量影响研究
盐碱区不同开发年限水田温室气体排放规律及影响因素
不同热解温度生物炭对 Cd(Ⅱ)的吸附特性 王震宇,刘国成, Monica Xing, 李锋民, 郑浩(4735)
碱土金属钙沉积对 Mn-Ce/TiO, 低温 SCR 催化剂脱硝性能的影响
國大金属的仇权 Mn-Ce ² HO ₂ 似溫 SCR 催化剂 成明性能的影响 周发矣,七平哮,盛里义,谭月,物柳(4743) 国内外水泥工业大气污染物排放标准比较研究 江梅,李晓倩,纪亮,邹兰,魏玉霞,赵国华,车飞,李刚,张国宁(4752)
国内外外况上业人气行架物排放标准比较研究 ············ 江梅,字晓情,纪克,邓三,魏玉霞,赵国平,平飞,字刚,张国于(4732) 我国水泥工业大气污染物排放标准的修订历程与思考 ····································
工梅,李晓倩,纪亮,邹兰,魏玉霞,赵国华,车飞,李刚,张国宁(4759) 《环袋科》》第 25 节(2014 年) 并且司
《环境科学》第 35 卷(2014 年) 总目录 (4767)
《环境科学》征订启事(4617) 《环境科学》征稿简则(4654) 信息(4474, 4529,4536,4744)

污水处理厂中红霉素抗药性基因的污染特征及选择性 因子

李侃竹,吴立乐,黄圣琳,何势,刘振鸿,薛罡,高品*

(东华大学环境科学与工程学院,上海 201620)

摘要:采用固相萃取-高效液相色谱串联质谱(SPE-HPLC-MS/MS)检测分析了上海某污水处理厂中 12 种不同药品和个人护理品 (pharmaceutical and personal care products, PPCPs) 的含量水平和分布特征,采用实时荧光定量 PCR 方法定量检测分析了 7 种红霉素抗药性基因 (ERY-ARGs) 在污水处理厂中的分布和丰度变化. 结果表明,在污水处理厂中共检出 5 种 PPCPs (包括磺胺甲噻唑、红霉素、四环素、卡马西平和三氯生),浓度范围分别为 24.5~38.7、47.5~49.2、43.1~85.4、2.5~3.9 和 423.2~8 973.3 ng·L⁻¹. 两段 A/O 生物处理工艺对三氯生具有较好的去除效果,但对其余 4 种 PPCPs 的去除效果较差. 与此同时,目标 ERY-ARGs 在污水处理厂中均被检出,在原水中的丰度达 9.28×10³ (ermA)~1.83×10² (ereA) copies·L⁻¹,虽然两段 A/O 工艺能够显著降低污水中的 ERY-ARGs (1.19 log~3.97 log),但其在最终处理出水中的浓度仍然较高. 通过相关性分析可知,ERY-ARGs 与红霉素和三氯生之间均具有显著相关性(P<0.05),表明污水处理厂中红霉素对 ERY-ARGs 的产生和传播具有重要影响,而三氯生对 ERY-ARGs 可能存在交叉选择性作用.

关键词:污水处理厂; 抗药性基因; PPCPs; 红霉素; 三氯生

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)12-4589-07 DOI: 10.13227/j. hjkx. 2014. 12. 023

Investigation of Pollution Characteristics of Erythromycin Resistance Genes in a Sewage Treatment Plant and the Relevant Selective Factors

LI Kan-zhu, WU Li-le, HUANG Sheng-lin, HE Shi, LIU Zhen-hong, XUE Gang, GAO Pin (College of Environmental Science and Engineering, Donghua University, Shanghai 201620, China)

Abstract: Occurrence and distribution of twelve pharmaceutical and personal care products (PPCPs) were investigated in a sewage treatment plant in Shanghai using solid-phase extraction combined with high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (SPE-HPLC-MS/MS). Quantitative PCR (qPCR) was used to determine the distribution and removal of seven erythromycin resistance genes (ERY-ARGs). The results showed that five PPCPs including sulfamethoxazole, erythromycin, tetracycline, carbamazepine and triclosan were detected in the collected wastewater samples with concentrations in the ranges of 24. 5-38. 7, 47. 5-49. 2, 43. 1-85. 4, 2.5-3. 9 and 423. 2-8 973. 3 $\,\mathrm{ng}\cdot\mathrm{L}^{-1}$, respectively. During the wastewater treatment process, a significant reduction of triclosan was observed, but the removal efficiencies for the other detected PPCPs were relatively low. Additionally, all target ERY-ARGs were detected in the wastewater samples ranging from 9. 28×10^3 (ermA) to 1. 83×10^8 (ereA) copies $\cdot\mathrm{L}^{-1}$ in raw influent. Though significant reductions (1. 19 $\,\mathrm{log}$ -3. 97 $\,\mathrm{log}$) of ERY-ARGs were obtained, their concentrations found in the final effluent were still high. Moreover, the concentration of ERY-ARGs exhibited significant positive correlation with the concentration of erythromycin and triclosan (P < 0.05), respectively, elucidating that erythromycin played an important role in the occurrence and spread of ERY-ARGs, while triclosan may confer cross-selection for ERY-ARGs.

Key words; sewage treatment plant; antibiotic resistance genes; PPCPs; erythromycin; triclosan

抗生素是一类被广泛用于治疗和预防人体和动物细菌感染的药物. 然而,越来越多的研究表明,抗生素的过量使用和误用是导致环境中抗药性基因产生、演变和散播最为重要的原因之一[1].

红霉素(erythromycin,ERY)是一种大环内酯类抗生素,主要被用于治疗耐青霉素金黄葡萄球菌及其它敏感菌导致的感染. ERY被人体或动物体摄入后,大部分以母体结构形式排出体外,这部分未被吸收代谢的 ERY 最终都会进入污水而被排入城市污水处理厂进行处理. 但是,有研究报道^[2,3],传统的

活性污泥法污水处理工艺对 ERY 去除效果较差,从而造成仍有一定数量的 ERY 进入地表水体,对生态环境和人体健康产生潜在的危害影响. 美国环境保护署(USEPA)也于 2009 年首次将 ERY 列为饮用水

收稿日期: 2014-05-11; 修订日期: 2014-06-11

基金项目: 国家自然科学基金项目(51208086, 51178093); 上海市 浦江人才计划项目(13PJ1400100); 中央高校基本科研 业务费专项(14D111312); 东华大学"励志计划"项目 (14D211301)

作者简介: 李侃竹(1990~),女,硕士研究生,主要研究方向为水污染控制及水质安全,E-mail:1010207544@qq.com

* 通讯联系人,E-mail:pingao@ dhu.edu.cn

标准需要优先检测和控制的候选污染物之一[4].

污水处理厂是环境中抗生素药物的重要污染源,也被认为是抗药性基因的重要储存库,但同时也为污水处理系统对其进行集中去除提供了机会^[5~8].目前,关于污水处理系统中抗生素药物对其抗药性细菌的选择性机制还尚不清楚^[9].与此同时,污水本身成分复杂,一些组分如重金属和杀菌剂等对抗药性细菌还可能会产生共选择效应和交叉抗性^[10,11].因此,深入研究抗生素及其抗药性基因在污水处理过程中的去除变化,以及相互之间的相关关系,对控制这些微污染物在环境中的迁移和散播具有重要意义.

本研究选取了 12 种不同药品和个人护理品 (pharmaceutical and personal care products, PPCPs) 作为研究对象(其中包括 8 种抗生素药物),考察其在上海某污水处理厂中的去除变化和浓度分布,同时采用实时荧光定量 PCR(qPCR)分析手段,检测分析红霉素抗药性基因(ERY-ARGs),包括 ereA、ereB、mefA/mefE、ermA、ermB、ermC 和 msrA/msrB,以及 16S rRNA 基因在污水处理工艺中的分布和去除情况,分析探讨了检出 PPCPs 与 ERY-ARGs 之间的相关关系,以期为揭示污水处理系统中 ARGs 的演变和散播过程机制提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 实验药品

本研究所选用的目标 PPCPs 包括:磺胺甲**噁**唑 (SMX,纯度为99%)、环丙沙星(CIP,纯度为98%)、四环素(TC,纯度为99%)、土霉素(OTC,

纯度为99%)、金霉素(CTC,纯度为99%)、强力霉素(DOC,纯度为99%)、红霉素(ERY,纯度为99.8%)、苯扎贝特(BZF,纯度为98%)、卡马西平(CBZ,纯度为99%)、布洛芬(IBF,纯度为99%)、双氯芬酸(DIF,纯度为98%)和三氯生(TCS,纯度为99.5%),均购自德国 Dr. Ehrenstorfer 公司.甲醇和乙腈为色谱纯,购自美国 Honeywell Burdick & Jackson 公司.甲酸、乙酸铵和乙二胺四乙酸二钠(Na₂EDTA)均为分析纯,购自国药集团化学试剂有限公司.

1.2 样品采集和预处理

污水取自上海某污水处理厂,采样时间为 2013 年 12 月~2014 年 3 月,污水处理工艺流程及各采样点位置见图 1 所示,按照污水处理流程共采集了进水(W1)、曝气沉砂池出水(W2)、一级 A/O 出水(W3)、中间沉淀池出水(W4)、二级 A/O 出水(W5)和最终二沉池出水(W6),共采样 3 次,每次取两个平行样,每个样品采集量为 1 L,装入聚丙烯采集瓶中迅速运回实验室进行预处理.

固相萃取前,污水样先经 0.45 μm 再生纤维素 滤膜过滤,加入 500 mg·L⁻¹ Na₂EDTA 以消除水中金属离子的干扰. 固相萃取小柱采用 HLB 小柱 (500 mg/6 mL, Waters),先使用甲醇和超纯水进行预活化,再将污水样以 5 mL·min⁻¹的流速经过固相萃取小柱进行富集,富集完成后,加入 10 mL 超纯水淋洗 HLB 小柱,以洗脱去除一些残留的无机离子,然后真空干燥,干燥完成后采用 6 mL 甲醇洗脱目标 PPCPs,洗脱液使用氮气吹干,最后使用甲醇定容至 1 mL,装入琥珀色进样小瓶待测.

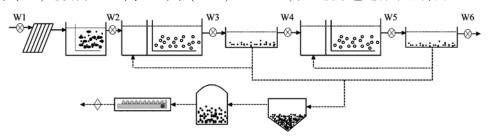


图 1 污水处理工艺流程示意以及取样位置

Fig. 1 Flow chart of wastewater treatment process and the sampling locations

1.3 检测分析方法

1.3.1 目标 PPCPs 检测方法的建立

目标 PPCPs 采用 HPLC-MS/MS(VARIAN 310) 进行检测,其中 OTC、TC、CTC、DOC、CIP、ERY、 SMX 和 CBZ 质谱检测选择电喷雾离子源正离子模 式,BZF、IBF、DIF 和 TCS 选择电喷雾离子源负离 子模式. 目标 PPCPs 浓度采用外标法进行定量分析.

色谱条件如下: Welch Ultimate XB-C18 色谱柱 (150 mm×2.1 mm, 3 μm); 正离子模式条件下流 动相 A 为含 0.1% 甲酸水溶液,流动相 B 为 100% 乙腈; 负离子模式条件下流动相 A 为含 5 mmol 乙

酸铵水溶液,流动相 B 为 100% 乙腈. 采用梯度洗脱模式,每个梯度完成后平衡时间为 5 min,流速 $0.2~\mathrm{mL}\cdot\mathrm{min}^{-1}$,进样量 $20~\mathrm{\mu L}$,柱温 30%.

质谱条件如下:雾化气和锥孔气为高纯氮气,碰撞气为氩气;喷雾针电压:5000 V(正离子模式),4500 V(负离子模式);雾化气压力:55 psi;干燥气温度:300℃(正离子模式),325℃(负离子模式);干燥气压力:22 psi;毛细管电压:45 V(正离子模式),35 V(负离子模式);检测模式除TCS为全扫描模式外,其余化合物为多离子反应检测(MRM)扫描模式.

1.3.2 ERY-ARGs 检测定量方法的建立

收集污水样过滤后的滤膜,使用 TIANamp Soil DNA Kit(TIANGEN)进行 DNA 提取,操作步骤均参照试剂盒操作说明书,所提取的 DNA 完整性、纯度和浓度分别使用 1.0% 琼脂糖凝胶电泳和 Nanodrop 2000C(Thermal Scientific)进行测定.

目标抗药性基因使用 Bio-rad T100 型普通 PCR

和 Rotor-Gene 3000 型 qPCR(Corbett)进行定性和定量检测分析,所使用的扩增引物序列信息详见表 1. qPCR 反应体系如下:10 μ L SuperReal Premix Plus(2 ×)(TIANGEN),上下游引物(10 μ mol·L⁻¹)各 1 μ L,DNA 模板 1 μ L,7 μ L ddH₂O,体系总体积 20 μ L. qPCR 反应程序如下:95 $^{\circ}$ T 预变性 15 min,95 $^{\circ}$ C 变性 10 s,58 $^{\circ}$ C 退火 30 s,72 $^{\circ}$ C 延伸 32 s,共40 个循环. 每组样品 3 个平行样,同时使用无菌水作为阴性对照. 利用 1.0%的琼脂糖凝胶电泳和熔解曲线检测 PCR 扩增产物的大小和特异性.

符合要求的扩增产物连接 PSG-TS 载体(BBI), 然后采用感受态细胞 E. coli DH5a(BBI)进行转化. 感受态细胞进行培养后使用质粒抽提试剂盒 (TIANGEN)提取出质粒作为标准品. 提取得到的 质粒标准品使用 NanoDrop 2000C 检测浓度和纯度. 标准品梯度稀释后进行 PCR 反应可得标准曲线. qPCR 标准曲线的扩增效率在84%~102%之间,相 关系数 R² 均大于 0.99.

表 1 qPCR 反应所使用的基因引物信息

基因名称	引物	引物序列	产物大小	文献
ereA	上游 下游	AACACCCTGAACCCAAGGGACG CTTCACATCCGGATTCGCTCGA	420	[12]
ereB	上游 下游	AGAAATGGAGGTTCATACTTACCA CATATAATCATCACCAATGGCA	546	[12]
mefA/mefE	上游 下游	AGTATCATTAATCACTAGTGC TTCTTCTGGTACTAAAAGTGG	346	[12]
ermA	上游 下游	AAGCGGTAAACCCCGCTGA TTCGCAAATCCCTTCTCAAC	190	[13]
ermB	上游 下游	AAAACTTACCCGCCATACCA TTTGGCGTGTTTCATTGCTT	139	[14]
ermC	上游 下游	AATCGTCAATTCCTGCATGT TAATCGTGGAATACGGGTTTG	299	[13]
msrA/msrB	上游 下游	GCAAATGGTGTAGGTAAGACAACT ATCATGTGATGTAAACAAAAT	399	[15]
16S rRNA	上游 下游	CAGCTCGTGTCGTGAGATGT AATCATTTGTCCCACCTTCG	420	[13]

Table 1 Sequences of primers for qPCR reactions

1.4 数据处理

数据分析采用 SPSS 19.0 统计分析软件,采用 线性回归进行相关性分析,计算因变量和自变量之间的皮尔逊相关系数(r) 和 P 值,设置规定的统计检验显著性水平 P=0.05,若 $P \le 0.05$,则认为具有显著相关性,反之则认为相关性不显著.

2 结果与讨论

2.1 目标 PPCPs 在污水处理过程中的含量水平和分布特征

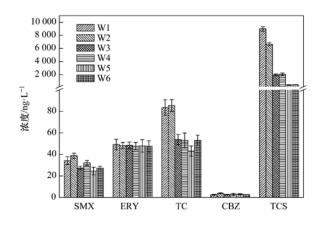
图 2 列出了目标 PPCPs 在污水处理过程中的浓度分布情况. 从中数据可以看出,在污水中共检测

出 5 种不同的 PPCPs,分别为 SMX、ERY、TC、CBZ 和 TCS,其中 TCS 浓度最高,达 423.2~8 973.3 $ng \cdot L^{-1}$,而 CBZ 浓度最低,为 2.5~3.9 $ng \cdot L^{-1}$, SMX、ERY 和 TC 浓度水平在 24.5~85.4 $ng \cdot L^{-1}$ 之间.

TCS 是一种广谱杀菌剂,大多数日用品如肥皂、牙膏、洗手液、化妆品等中均含有不同浓度的 TCS,由于其应用广泛,使用量大,从而导致大量的 TCS 残留进入生活污水中,这也是造成城市污水中 TCS 检出浓度较高的原因之一.本研究检测发现,两段 A/O 生物处理工艺对污水中 TCS 的去除率可达95.3%,较多的研究报道活性污泥处理工艺可以通过微生物降解和污泥吸附等联合作用实现对 TCS 的高效去除[16~18].

CBZ 是污水处理厂中检出频率较高的 PPCPs 之一,本研究检测发现 CBZ 在原水和最终出水中的浓度分别为 2.5 ng·L⁻¹和 2.7 ng·L⁻¹,从图 2 中数据分析可知,CBZ 在污水处理各工艺段出水中的浓度均要高于其在原水中的浓度,分析原因可能是在处理过程中 CBZ 的共轭代谢物发生聚合,也可能是污泥中的 CBZ 释放到水体中. 结果表明两段 A/O工艺对 CBZ 几乎没有去除效果,这与笔者前期的检测结果相一致^[19].

除此之外,两段 A/O 工艺对其余 3 种被检出的 PPCPs 去除率较低,去除率变化范围为 3.5% ~ 36.5%,分析原因可能是因为 SMX、ERY 和 TC 本身在原水中浓度就较低($34.2 \sim 83.6 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$). Li 等[20]在北京某废水处理回用厂检测发现, 2 /O 活性污泥处理工艺对 ERY 的去除率约为 19.5%. Xu



35 卷

图 2 目标 PPCPs 在污水处理过程中的浓度水平(n=6)

Fig. 2 Concentrations of target PPCPs during the wastewater treatment process (n = 6)

等 $^{[21]}$ 在北京某污水处理厂检测同样发现, A^2/O 活性污泥处理工艺联合 O_3 -BAF 深度处理工艺对 SMX 的去除率也仅为 26. 9%.

2.2 污水处理过程中 ERY-ARGs 的浓度水平和分布特征

目前在不同菌属中检测发现的 ERY-ARGs 至少有 17 种 $^{[22]}$,但最为常见的主要有 ermA、ermB 和 ermC,在 $94\% \sim 98\%$ 的红霉素抗药性葡糖球菌中均发现含有这些基因 $^{[23]}$. 除此之外,ereA、ereB、mefA/mefE 和 msrA/msrB 也是被检出频率较高的 ERY-ARGs.

图 3 为 ERY-ARGs 和 16S rRNA 基因在污水处理过程中的浓度分布情况. 从数据分析可知,所有目标 ERY-ARGs 均被检出,其中 ereA 在原水中浓度最高,达 1.83×10^8 copies· L^{-1} ,其次为 ermB、mefA/

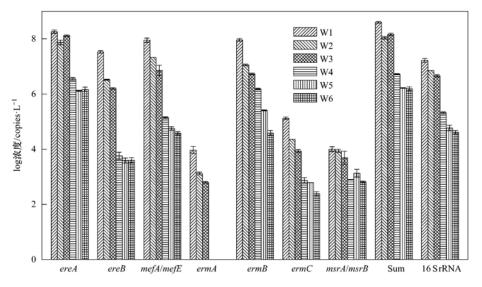


图 3 目标 ERY-ARGs 在污水处理过程中的浓度水平(n=9)

Fig. 3 Concentrations of ERY-ARGs during the wastewater treatment process (n = 9)

mefE 和 ereB, 分别达 9.02×10⁷、8.82×10⁷ 和 3.41 ×10⁷copies·L⁻¹, 而 ermA 浓度最低,浓度为 9.28 × 10^3 copies · L⁻¹.

从 ERY-ARGs 和 16S rRNA 在整个污水处理工 艺流程中的浓度水平变化可以看出,所有的检测基 因浓度基本呈现出逐步降低的趋势,在最终处理出 水中除 ermA 未检出外,其余 ERY-ARGs 的浓度水平 在 $2.5 \times 10^2 (ermC) \sim 3.5 \times 10^5 (ereA)$ copies·L⁻¹之 间,这与 Guo 等[24]的研究结果类似. 其中,污水初 级处理工艺(格栅+曝气沉砂池)对目标 ERY-ARGs 均具有一定去除作用,降低幅度为 0.07 (msrA/ msrB)~1.02(ereB)个对数浓度;一级 A/O 生物处 理段能够显著地降低污水中的目标 ERY-ARGs(P <0.05),降低幅度可达 0.88(ermB)~3.12(ermA) 个对数浓度. 此外,从检测数据分析可知,二级 A/O 生物处理段对 ermA 去除效果显著,在处理出水中未 检出,而对其它目标 ERY-ARGs 的去除影响要远低 于一级 A/O 生物处理段(ermB 除外),去除变化幅 度为 0.08 (msrA/msrB) ~ 0.57 (mefA/mefE) 个对数 浓度.

由上可知,虽然两段 A/O 污水生物处理工艺能 够显著降低污水中的目标 ERY-ARGs(1.19~3.97 log),但 ERY-ARGs 总量在最终处理出水中的浓度 仍然较高,对受纳地表水体会造成潜在的污染影响, 可能会引起天然水体中 ERY-ARGs 背景浓度的 增高.

 \boldsymbol{P}

0.378

2.3 检出 PPCPs 与 ERY-ARGs 之间相关性分析

很多研究报道,细菌抗药性的出现时由于抗生 素药物对其产生的选择性压力引起的,然而在笔者 的前期研究过程中发现,在活性污泥系统处理过程 中,污水中四环素抗药性基因(tetO+tetW)与四环素 抗生素浓度之间的相关性并不显著,而磺胺类抗药 性基因 sull 与磺胺类抗生素浓度之间呈现出较好的 线性相关性[25]. 因此,目前关于污水处理过程中抗 牛素药物对其抗药性基因演变产牛的选择性机制还 尚不清楚[26].

表 2 中分析数据显示, SMX 作为一种磺胺类抗 生素药物,与 ERY-ARGs 之间无显著相关性,而 CBZ 本身不属于抗生素药物范畴,与 ERY-ARGs 之 间也无明显相关性. TC 属于四环素类抗生素药物, 结果显示其与 msrA/msrB 基因浓度之间呈现出显著 相关性,而与其它 ERY-ARGs 浓度之间相关性不显 著. 尽管如此,本研究发现所有 ERY-ARGs (除 ermA)与ERY之间均呈现出显著的正相关性(0.859 <r < 0.963, P < 0.05), 并且 ERY-ARGs 总和也与 ERY 之间具有非常高的显著相关性 (r = 0.967, P <0.01),这在一定程度上表明污水中 ERY 对 ERY-ARGs 的诱导产生和散播具有一定的促进作用. Wu 等[27]对中国某养猪场附近土壤中四环素及其抗药 性基因检测分析研究同样发现,tet 基因(tetM、tetQ、 tetO、tetW 总和)绝对拷贝数与四环素残留浓度之间 具有显著相关性 $(r^2 = 0.45, P < 0.05)$.

表 2 检出 PPCPs 与 ERY-ARGs 之间相关性分析

基因名称	项目	SMX	ERY	TC	CBZ	TCS
ereA	r	0. 388	0. 963 ¹⁾	0. 649	-0.268	0. 759
STEA	P	0. 448	0.002	0. 164	0.608	0.080
ereB	r	0. 396	0. 859	0. 658	-0.365	0.819
пед	P	0. 437	0. 029	0. 155	0. 477	0. 046
nefA/mefE	r	0. 505	0. 884	0. 757	-0.238	0.891
neja/meje	P	0. 307	0. 019	0. 081	0. 650	0. 017
ermA	r	0. 191	0. 942	0. 518	-0.508	0.800
Пил	P	0. 878	0. 217	0. 654	0. 661	0.410
rmB	r	0. 420	0. 865	0. 677	-0.343	0.835
ППД	P	0. 407	0. 026	0. 140	0. 506	0. 039
rmC	r	0. 452	0. 874	0.710	-0.301	0.858
ame	P	0. 368	0. 023	0. 114	0. 562	0. 029
nsrA/msrB	r	0.720	0. 873	0. 914	0. 201	0. 941
шал шаги	P	0. 107	0. 023	0. 011	0. 702	0.005
Sum of ERY-ARGs	r	0. 444	0. 967	0.716	-0.303	0. 854

0.002

0.109

0.560

0.030

Table 2 Correlation analysis of detected PPCPs and ERY-ARGs concentration

Sum of ERY-ARGs

¹⁾粗体表示具有显著相关性

值得特别注意的,表2中分析数据显示,ERY-ARGs(除 ereA 和 ermA 之外)及其基因总和与 TCS 之间也呈现出显著相关性(0.819 < r < 0.941, P <0.05). 有研究发现,TCS 在具有某些非特异性杀菌 机制的同时,也可以针对特定的细菌靶位抑制细菌 脂肪酸的生物合成,这种与抗生素药物相似的抑菌 机制使得 TCS 存在与抗生素之间产生交叉抗性的 可能性[28]. TCS 还可作为大肠杆菌(E. coli)和铜绿 假单胞菌(Pseudomonas aeruginosa)体内多种药物外 排泵的底物[29]. 外排泵的过度表达会导致对多种 抗生素药物,以及一些染料、洗涤剂和消毒剂的抵 抗性,若暴露在属于这种外排泵底物的环境条件下, 将有助于外排泵的过度表达和随之发生的对这种外 排泵其它底物的交叉抗性[30]. 早在 2001 年. Chuanchuen 等[31] 实验发现 Pseudomonas aeruginosa 经 TCS 暴露后可对多种药物产生交叉抗性.

3 结论

- (1)在上海某污水处理厂中共检出 SMX、ERY、TC、CBZ 和 TCS 共 5 种不同的 PPCPs. 结果表明,两段 A/O 污水处理工艺对 TCS 去除率可达95.3%,但对其它 4 种 PPCPs 去除效果较差.
- (2)目标 ERY-ARGs 在污水处理厂中均被检出,尽管两段 A/O 污水处理工艺能够显著降低污水中 ERY-ARGs 含量(1.19 log~3.97 log),但在最终处理出水中的浓度仍然较高.
- (3) ERY 与 ERY-ARGs 之间具有显著相关性, 表明 ERY 对 ERY-ARGs 的产生和散播具有重要影响. 杀菌剂 TCS 与 ERY-ARGs 之间同样具有显著相关性,表明 TCS 对 ERY-ARGs 可能具有交叉选择性作用.

参考文献:

- [1] Chen H, Zhang M M. Occurrence and removal of antibiotic resistance genes in municipal wastewater and rural domestic sewage treatment systems in eastern China [J]. Environment International, 2013, 55: 9-14.
- [2] Alighardashi A, Pandolfi D, Potier O, et al. Acute sensitivity of activated sludge bacteria to erythromycin [J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 172(2-3); 685-692.
- [3] 毛菲菲, 刘畅, 何梦琦, 等. 红霉素降解菌的筛分及其降解 特性的研究[J]. 环境科学与技术, 2013, **36**(7); 9-12.
- [4] US Environmental Protection Agency. Drinking water standards and health advisories table [S]. San Francisco, CA, USA, 2009.
- [5] Zhang Y L, Marrs C F, Simon C, et al. Wastewater treatment contributes to selective increase of antibiotic resistance among

- Acinetobacter spp. [J]. Science of the Total Environment, 2009, 407(12): 3702-3706.
- [6] 甘秀梅, 严清, 高旭, 等. 典型抗生素在中国西南地区某污水处理厂中的行为和归趋[J]. 环境科学, 2014, **35**(5): 1817-1823
- [7] 徐维海,张干,邹世春,等. 典型抗生素类药物在城市污水处理厂中的含量水平及其行为特征[J]. 环境科学,2007,28(8):1779-1783.
- [8] 葛峰, 郭坤, 周广灿, 等. 南京市 4 个污水处理厂的活性污泥中细菌的分离鉴定和抗生素耐药性分析[J]. 环境科学, 2012, 33(5): 1646-1651.
- [9] Tello A, Austin B, Telfer T C. Selective pressure of antibiotic pollution on bacteria of importance to public health [J]. Environmental Health Perspectives, 2012, 120(8): 1100-1106.
- [10] Graham D W, Olivares-Rieumont S, Knapp C W, et al. Antibiotic resistance gene abundances associated with waste discharges to the Almendares River near Havana, Cuba [J]. Environmental Science and Technology, 2011, 45 (2): 418-424.
- [11] Ji X, Shen Q, Liu F, et al. Antibiotic resistance gene abundances associated with antibiotics and heavy metals in animal manures and agricultural soils adjacent to feedlots in Shanghai, China [J]. Journal of Hazardous Materials, 2012, 235-236: 178-185.
- [12] Sutcliffe J, Grebe T, Tait-Kamradt A, et al. Detection of erythromycin-resistant determinants by PCR [J]. Antimicrobial Agents and Chemotherapy, 1996, 40(11): 2562-2566.
- [13] Strommenger B, Kettlitz C, Werner G, et al. Multiplex PCR assay for simultaneous detection of nine clinically relevant antibiotic resistance genes in Staphylococcus aureus [J]. Journal of Clinical Microbiology, 2003, 41(9): 4089-4094.
- [14] Knapp C W, Dolfing J, Ehlert P A I, et al. Evidence of increasing antibiotic resistance gene abundances in archived soils since 1940 [J]. Environmental Science and Technology, 2010, 44(2): 580-587.
- [15] Nawaz M S, Khan S A, Khan A A, et al. Comparative molecular analysis of erythromycin-resistance determinants in staphylococcal isolates of poultry and human origin [J]. Molecular and Cellular Probes, 2000, 14(5): 311-319.
- [16] Lozano N, Rice C P, Ramirez M, et al. Fate of triclocarban, triclosan and methyltriclosan during wastewater and biosolids treatment processes [J]. Water Research, 2013, 47 (13): 4519-4527.
- [17] Thomas P M, Foster G D. Tracking acidic pharmaceuticals, caffeine, and triclosan through the wastewater treatment process [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2005, 24(1): 25-30.
- [18] Ying G G, Kookana R S. Triclosan in wastewaters and biosolids from Australian wastewater treatment plants [J]. Environment International, 2007, 33(2): 199-205.
- [19] Gao P, Ding Y J, Li H, et al. Occurrence of pharmaceuticals in a municipal wastewater treatment plant; mass balance and

- removal processes [J]. Chemosphere, 2012, 88 (1): 17-24.
- [20] Li W H, Shi Y L, Gao L H, et al. Occurrence and removal of antibiotics in a municipal wastewater reclamation plant in Beijing, China [J]. Chemosphere, 2013, 92(4): 435-444.
- [21] Xu J, Xu Y, Wang H M, et al. Occurrence of antibiotics and antibiotic resistance genes in a sewage treatment plant and its effluent-receiving river [J]. Chemosphere, 2014, doi: 10.1016/j.chemosphere.2014.02040.
- [22] Leclercq R, Courvalin P. Bacterial resistance to macrolide, lincosamide, and streptogramin antibiotics by target modification [J]. Antimicrobial Agents and Chemotherapy, 1991, 35 (7): 1267-1272.
- [23] Westh H, Hougaard D M, Vuust J, et al. Prevalence of erm gene classes in erythromycin-resistant Staphylococcus aureus strains isolated between 1959 and 1988 [J]. Antimicrobial Agents and Chemotherapy, 1995, 39(2): 369-373.
- [24] Guo M T, Yuan Q B, Yang J. Ultraviolet reduction of erythromycin and tetracycline resistant heterotrophic bacteria and their resistance genes in municipal wastewater [J]. Chemosphere, 2013, 93(11): 2864-2868.
- [25] Gao P, Munir M, Xagoraraki I. Correlation of tetracycline and sulfonamide antibiotics with corresponding resistance genes and resistant bacteria in a conventional municipal wastewater treatment plant [J]. Science of the Total Environment, 2012, 421-422: 173-183.

- [26] Pruden A, Larsson D G J, Amézquita A, et al. Management options for reducing the release of antibiotics and antibiotic resistance genes to the environment [J]. Environmental Health Perspectives, 2013, 121(8): 878-885.
- [27] Wu N, Qiao M, Zhang B, et al. Abundance and diversity of tetracycline resistance genes in soils adjacent to representative swine feedlots in China [J]. Environmental Science and Technology, 2010, 44(18): 6933-6939.
- [28] Aiello A E, Larson E. Antibacterial cleaning and hygiene products as an emerging risk factor for antibiotic resistance in the community [J]. The Lancet Infectious Diseases, 2003, 3(8): 501-506.
- [29] McMurry L M, Oethinger M, Levy S B. Overexpression of marA, soxS, or acrAB produces resistance to triclosan in laboratory and clinical strains of Escherichia coli [J]. Federation of European Microbiological Societies Microbiology Letters, 1998, 166 (2): 305-309.
- [30] Webber M A, Piddock L J V. The importance of efflux pumps in bacterial antibiotic resistance [J]. Journal of Antimicrobial Chemotherapy, 2003, 51(1): 9-11.
- [31] Chuanchuen R, Beinlich K, Hoang T T, et al. Cross-resistance between triclosan and antibiotics in Pseudomonas aeruginosa is mediated by multidrug efflux pumps: exposure of a susceptible mutant strain to triclosan selects nfxB mutants overexpressing MexCD-OprJ [J]. Antimicrobial Agents and Chemotherapy, 2001, 45(2): 428-432.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 35 No. 12 Dec. 15, 2014

CONTENTS

Concentration and Size Distribution of Bioaerosols at Non-haze and Haze Days in Beijing	GAO Min, QIU Tian-lei, JIA Rui-zhi, et al. (4415)
Light Scattering Extinction Properties of Atmospheric Particle and Pollution Characteristics in Hazy Weather in Hangzhou	
Characteristic of Elements in PM _{2,5} and Health Risk Assessment of Heavy Metals During Heating Season in Taiyuan	
Pollution Characteristics of Secondary Water-soluble Inorganic Ions of PM _{2.5} in Urban Chengdu, China	LI You-ping, ZHOU Hong, ZHANG Zhi-sheng, et al. (4439)
Temporal and Spatial Distribution Characteristics of Ozone in Beijing	······ WANG Zhan-shan, LI Yun-ting, CHEN Tian, et al. (4446)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds (VOCs) in the Northern Suburb of Nanjing	AN Jun-lin, ZHU Bin, WANG Hong-lei, et al. (4454)
Environmental Significance of Wet Deposition Composition in the Central Qilian Mountains, China	LI Zong-jie, LI Zong-xing, TIAN Qing, et al. (4465)
Dynamics of Nitrogen and Sulfur Wet Deposition in Typical Forest Stand at Different Spatial Levels in Simian Mountain, Mid-subtr	opical Region ·····
	SUN Tao, MA Ming, WANG Ding-yong, et al. (4475)
Establishment and Assessment of QA/QC Method for Sampling and Analysis of Atmosphere Background CO ₂	LIU Li-xin, ZHOU Ling-xi, XIA Ling-jun, et al. (4482)
An Investigation of the CH ₄ and N ₂ O Emission Factors of Light-duty Gasoline Vehicles	HE Li-qiang, SONG Jing-hao, HU Jing-nan, et al. (4489)
Experimental Study on the Size Spectra and Emission Factor of Ultrafine Particle from Coal Combustion	
Distributions and Air-Sea Fluxes of Dissolved Nitrous Oxide in the Yangtze River Estuary and Its Adjacent Marine Area in Spring a	and Summer
	·· WANG Lan, ZHANG Gui-ling, SUN Ming-shuang, et al. (4502)
Spectral Absorption Properties of the Water Constituents in the Estuary of Zhujiang River	
Characteristics of Phosphorus Forms and the Effects of UV Light in the Confluences Water of Quijiang-Jialing River and Fujiang-Jia	ling River ·····
	YAN Jin-long, JIANG Tao, WEI Shi-qiang, et al. (4522)
Research on the Threshold of Chl-a in Lake Taihu Based on Microcystins	
Temporal and Spatial Characteristic of Nitrogen and Phosphorus Output in the Suburb Watershed Around the Baihua Lake	
Effects of Light Irradiation on Phosphorous Releases from Typical Submerged Soils of Water-Level Fluctuation Zones of Three Gorgo	
	GUO Nian, JIANG Tao, WEI Shi-qiang, et al. (4544)
Analysis on the Removal Efficiency and Mechanisms of Phosphorus by Modified Zeolites Substrates Coated with LDHs Reacted by	
Constructed Wetlands	
Mercury Dynamics of Several Plants Collected from the Water-Level Fluctuation Zone of the Three Gorges Reservoir Area During F	
2 January 2 January 2 Colon Talan Society 1 and 1 and 1 and 2 and	ZHANG Xiang ZHANG Cheng SUN Rong-guo et al. (4560)
Effect of Nano-TiO ₂ on the Release and Activation of Mercury in Sediment	
Estimation Inventory of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) from Anthropogenic Sources and Its Impacts within the Yanghe	
Estimation inventory of Foreigner Atomatic Physicanonis (17115) from Antinopogenic Sources and its impacts within the Fangile	
Source Identification of Toxic Wastewaters in a Petrochemical Industrial Park	
Investigation of Pollution Characteristics of Erythromycin Resistance Genes in a Sewage Treatment Plant and the Relevant Selective	
investigation of rotation characteristics of Expanoniyan resistance offices in a sewage freatment rank and the referant selective	II Kan-zhu WII Li-le HUANC Sheng-lin et al. (4589)
Variation of Pollutants Along the Height of Two Media BAF During Advanced Treatment of Dyeing Wastewater	
Acclimatization and Characteristics of Microbial Community in Sulphate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation	
Capability and Microbial Community Analysis of a Membrane Bioreactor for Acrylic Fiber Wastewater Treatment	
Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX ABR Process in Tannery Wastewater Treatment	
Numerical Simulation and Operation Optimization of Biological Filter	
Effect of Gas-lift Device on the Morphology and Performance of ANAMMOX Sludge	
Water Treatment Residual as a Bioretention Media Amendment for Phosphorus Removal	• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •
Nutrient Contents and Heavy Metal Pollutions in Composted Sewage Sludge from Different Municipal Wastewater Treatment Plants	in Beijing Region
Polychlorinated Biphenyls and Their Methylsulfonyl Metabolites in Fish from an Electronic Waste Recycling Site in South China; T	
Residues and Health Risk Assessment of HCHs , DDTs and Heavy Metals in Water and $\it Tilapias$ from Fish Ponds of Guangdong $$ $$ $\!$	
Concentration and Distribution Characteristics of Estrogen in Aquatic Organism from Chongming Island	
Photocatalytic Degradation of Acetamiprid by ${ m TiO}_2$ and Xe Lamp: Kinetics and Degradation Intermediates	
Effects of Nitrogen Addition on Available Nitrogen Content and Acidification in Cold-temperate Coniferous Forest Soil in the Growin	ng Season
Impact of Land Use Type on Stability and Organic Carbon of Soil Aggregates in Jinyun Mountain	
Investigation and Canonical Correspondence Analysis of Salinity Contents in Secondary Salinization Greenhouse Soils in Shanghai S	
Spatial Distribution Prediction of Surface Soil Pb in a Battery Contaminated Site	LIU Geng, NIU Jun-jie, ZHANG Chao, et al. (4712)
Immobilization Remediation of Cd and Pb Contaminated Soil; Remediation Potential and Soil Environmental Quality	
Rules and Impact Factors of Greenhouse Gases Emission in the Saline-Alkali Paddy Fields in Different Years	
Adsorption of Cd(II) Varies with Biochars Derived at Different Pyrolysis Temperatures	····· WANG Zhen-yu, LIU Guo-cheng, Monica Xing, et al. (4735)
Poisoning Effect of Ca Depositing Over Mn-Ce/TiO $_2$ Catalyst for Low-temperature Selective Catalytic Reduction of NO by NH $_3$ \cdots	····· ZHOU Ai-yi, MAO Hua-feng, SHENG Zhong-yi, et al. (4745)
A Comparative Study on Domestic and Foreign Emission Standards of Air Pollutants for Cement Industry	
Revision Process and Thinking of Emission Standard of Air Pollutants for Cement Industry	JIANG Mei, LI Xiao-qian, JI Liang, et al. (4759)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编:欧阳自远

副主编:赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委:(按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军

朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明

欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞

黄耀 鲍强潘纲潘涛魏复盛

环维种草

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2014年12月15日 第35卷 第12期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 12 Dec. 15, 2014

主	管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主	办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese
协	办	(以参加先后为序)			Academy of Sciences
		北京市环境保护科学研究院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental
		清华大学环境学院			Protection
主	编	欧阳自远			School of Environment, Tsinghua University
编	辑	《环境科学》编辑委员会	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
21111	11	北京市 2871 信箱(海淀区双清路	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING
		18 号,邮政编码:100085)			KEXUE)
		电话:010-62941102,010-62849343			P. O. Box 2871, Beijing 100085, China
		传真:010-62849343			Tel:010-62941102,010-62849343; Fax:010-62849343
		E-mail; hjkx@ rcees. ac. cn			E-mail; hjkx@ rcees. ac. cn
		http://www.hjkx.ac.cn			http://www. hjkx. ac. cn
出	版	4 星 虫 版 社	Published	by	Science Press
щ	///	北京东黄城根北街 16 号			16 Donghuangchenggen North Street,
		邮政编码:100717			Beijing 100717, China
印刷装	ìΤ	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发	行	斜学出版社	Distributed	by	Science Press
		电话:010-64017032			Tel:010-64017032
		E-mail:journal@mail.sciencep.com			E-mail:journal@mail.sciencep.com
订 购	处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发	衸行	中国国际图书贸易总公司	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji
		(北京 399 信箱)			Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301 CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价:90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行