

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第3期

Vol.39 No.3

**2018**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

长三角典型站点冬季大气 PM<sub>2.5</sub> 中 OC、EC 污染特征 ..... 康晖, 朱彬, 王红磊, 施双双 (961)

南京北郊能见度变化中二次无机盐消光的重要作用 ..... 于超, 于兴娜, 赵天良, 张蕾, 马国煦, 王咏薇 (972)

常州夏冬季 PM<sub>2.5</sub> 中无机组分昼夜变化特征与来源解析 ..... 刘佳澍, 顾远, 马帅帅, 苏亚兰, 叶招莲 (980)

天津市春季道路降尘 PM<sub>2.5</sub> 和 PM<sub>10</sub> 中的元素特征 ..... 王士宝, 姬亚芹, 李树立, 张伟, 张蕾 (990)

北京、新乡夏季大气颗粒物中重金属的粒径分布及人体健康风险评价 ..... 张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 王小颖, 杨帅, 许骁鹏, 王书亭, 谷超, 王梦蕾, 任浩, 张子洋, 闫广轩, 曹治国, 王跃思 (997)

山西省武乡县城大气 PM<sub>2.5</sub> 痕量重金属的生态和健康风险分析 ..... 郭墨霞, 耿红, 张晋宏, 周欢, 彭妍, 翟帅莹, 李金磊, 陈雨杉 (1004)

隧道中机动车排放颗粒物及无机元素特征 ..... 李凤华, 张衍杰, 张静, 袁远, 吴琳, 毛洪钧 (1014)

河南省 2013 年大气氨排放清单建立及分布特征 ..... 王琛, 尹沙沙, 于世杰, 卫军华, 谷幸珂, 官密秘, 张瑞芹 (1023)

城市道路行道树池裸地扬尘排放特征 ..... 李贝贝, 秦建平, 祁丽荣, 杨涛, 曲松, 石爱军, 黄玉虎 (1031)

DOC 和 CDPF 对柴油公交车颗粒物组分影响 ..... 楼狄明, 耿小雨, 宋博, 谭丕强, 胡志远, 刘继跃 (1040)

南水北调中线工程总干渠河南段原水中消毒副产物前体物变化规律 ..... 黄飘逸, 徐斌, 郭东良 (1046)

广州市流溪河水体中 6 种内分泌干扰素时空分布特征与环境风险 ..... 樊静静, 王赛, 唐金鹏, 戴玉女, 王林, 龙胜兴, 何文祥, 刘帅磊, 王佳希, 杨扬 (1053)

西藏拉萨河流域河水主要离子化学特征及来源 ..... 张清华, 孙平安, 何师意, 文化, 刘明隆, 于爽 (1065)

太子河下游河流硝酸盐来源及其迁移转化过程 ..... 李艳利, 杨梓睿, 尹希杰, 孙伟 (1076)

海南岛北部海湾沉积物重金属来源、分布主控因素及生态风险评价 ..... 曾维特, 杨永鹏, 张东强, 刘兵, 张航飞, 吴多誉, 王晓林 (1085)

天津农田重金属污染特征分析及降雨沥浸影响 ..... 许萌萌, 刘爱凤, 师荣光, 蓝靖, 田永, 赵宗山 (1095)

太湖出入湖河道与湖体水质季节差异分析 ..... 查慧铭, 朱梦圆, 朱广伟, 杨周生, 许海, 沈睿杰, 钟春妮 (1102)

春季敏感时期三峡水库典型支流沉积物-水界面氮释放特性 ..... 李欣, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 苏青青, 吕林鹏, 王雄, 黄亚男, 吴庆 (1113)

不同湖泊入湖河流沉积物可转化态氮的空间分布及其影响因素 ..... 周睿, 袁旭音, Marip Ja Bawk, 于辉辉, 章琪, 唐豆豆 (1122)

水文气象因素对东南山区水库硅藻异常增殖的影响 ..... 孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽 (1129)

深水型水库热分层诱导水质及真菌种群结构垂向演替 ..... 商潘路, 陈胜男, 黄廷林, 张海涵, 康鹏亮, 王跃, 钊珍芳, 刘彤彤 (1141)

太湖竺山湾春季浮游细菌群落结构及影响因素 ..... 薛银刚, 刘菲, 孙萌, 江晓栋, 耿金菊, 滕加泉, 谢文理, 张皓, 陈心一 (1151)

分层型水源水库沉积物需氧量特性 ..... 苏露, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 文刚, 李扬, 陈家炜, 王晓江 (1159)

污水氮浓度和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>/NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 比对粉绿狐尾藻去氮能力和植物体氮组分的影响 ..... 马永飞, 杨小珍, 赵小虎, 胡承孝, 谭启玲, 孙学成, 吴金水 (1167)

水体氮营养负荷对苦草净化能力和光合荧光特性的影响 ..... 周裔文, 许晓光, 韩睿明, 周晓红, 冯德友, 李致春, 王国祥 (1180)

化学预氧化耦合生物锰氧化对水中有机物的去除 ..... 菅之舆, 常洋洋, 王立新, 梁金松, 柏耀辉 (1188)

铜铁氧体法处理模拟染料废水 ..... 韩志勇, 韩昆, 郝昊天, 于建伟, 石宝友, 庄媛, 孔岩 (1195)

草酸根对 α-FeOOH 多相 UV-Fenton 催化能力的增效实验 ..... 苗笑增, 戴慧旺, 陈建新, 蒋柏泉, 龚烟 (1202)

生物基纳米 HZO 杂化材料的研制及其除磷特性 ..... 邱慧, 秦智峰, 刘凤玲, 梁晨, 宋明霞, 许正文, 管益东 (1212)

铁锰氧化物/生物炭复合材料对水中硝酸根的吸附特性 ..... 郑晓青, 韦安磊, 张一璇, 史良干, 张潇 (1220)

PAAm/HACC 半互穿网络水凝胶的制备及其对水中腐殖酸的吸附性能 ..... 刘泽瑛, 周少奇, 马福臻 (1233)

二氧化钛对地下水中砷硅的吸附及再生回用 ..... 马文静, 阎莉, 张建锋 (1241)

一体式絮体-超滤工艺去除腐殖酸效能与机制 ..... 李文江, 于莉芳, 苗瑞, 马百文 (1248)

中国城镇污水处理厂温室气体排放时空分布特征 ..... 闫旭, 邱德志, 郭东丽, 齐星昊, 郑仕侃, 程轲, 孙剑辉, 刘建伟 (1256)

硝化耦合 CANON 的铁锰生物净化工艺启动与运行 ..... 李冬, 曹瑞华, 杨航, 王艳菊, 吕赛赛, 张杰 (1264)

纤维载体的生物膜 CANON 反应器的启动特性 ..... 顾澄伟, 陈方敏, 李祥, 黄勇, 尤星怡, 金润, 张文静, 董石语 (1272)

DO/NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N 实现短程硝化过程中生物膜特性 ..... 赵青, 卞伟, 李军, 王文啸, 孙艺齐, 梁东博, 张舒燕 (1278)

AUSB 中置曝气对 CANON 颗粒污泥工艺的影响 ..... 成朔, 李冬, 张杰, 李帅, 曹瑞华, 吕赛赛 (1286)

有机碳源对启动及运行 CANON 颗粒污泥工艺的影响 ..... 李冬, 王艳菊, 吕育锋, 曹瑞华, 李帅, 张杰 (1294)

中试一体式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器的启动与区域特性 ..... 周正, 王凡, 林兴, 董石语, 朱强, 李祥, 黄勇 (1301)

硝化液回流比对 ABR-MBR 工艺反硝化除磷效能的影响 ..... 吕亮, 尤雯, 张敏, 吴鹏, 沈耀良 (1309)

磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响 ..... 宿程远, 郑鹏, 卢宇翔, 袁秋红, 赵力剑, 廖黎明, 黄智 (1316)

好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物的特征及主要组分 ..... 杨丹, 刘东方, 杜丽琼, 黄文力 (1325)

环丙沙星对膜生物反应器中微生物群落及抗性基因的影响 ..... 戴琦, 刘锐, 梁玉婷, 舒小铭, 徐灿灿, 陈昌军 (1333)

CEM-UF 组合膜-硝化/反硝化系统处理低 C/N 废水及种群结构分析 ..... 邢金良, 张岩, 陈昌明, 张博康, 郭威, 马翔山 (1342)

磷对混养反硝化污泥活性和微生物群落结构的影响 ..... 王佩琦, 周伟丽, 何圣兵, 黄荣振 (1350)

甲烷厌氧氧化协同硝酸盐还原菌群驯化及其群落特征 ..... 薛松, 张梦竹, 李琳, 刘俊新 (1357)

城市尾水排海过程中微生物及主要致病菌扩散规律 ..... 徐爱玲, 牛成洁, 宋志文, 郎秀璐, 郭明月 (1365)

氧四环素的微生物燃料电池处理及微生物群落 ..... 严伟富, 肖勇, 王淑华, 丁蕊, 赵峰 (1379)

近 30 年余干县耕地土壤碳氮比时空变异特征及其影响因素 ..... 江叶枫, 钟珊, 李婕, 王澜珂, 郭熙 (1386)

中宁枸杞土壤碳组分分布特征及其空间异质性 ..... 王幼奇, 赵云鹏, 白一茹, 张兴 (1396)

滨海滩涂围垦区不同围垦年限土壤酶活性变化及其与理化性质关系 ..... 解雪峰, 濮励珊, 王琪琪, 朱明, 王小涵 (1404)

青藏高原中东部表层土壤中多环芳烃的分布特征、来源及生态风险评价 ..... 周雯雯, 李军, 胡健, 朱兆洲 (1413)

基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤重金属源解析 ..... 卢鑫, 胡文友, 黄标, 李元, 祖艳群, 湛方栋, 邝荣禧 (1421)

铁锰双金属材料在不同 pH 条件下对土壤 As 和重金属的稳定化作用 ..... 费琦, 阎秀兰, 李永华 (1430)

我国 3 个城市人体血清中新型溴代阻燃剂水平趋势及分布特征 ..... 王庆华, 袁浩东, 金军, 李鹏, 马玉龙, 王英 (1438)

《环境科学》征订启事(979) 《环境科学》征稿简则(996) 信息(1022, 1064, 1293)

# 环丙沙星对膜生物反应器中微生物群落及抗性基因的影响

戴琦<sup>1</sup>, 刘锐<sup>1\*</sup>, 梁玉婷<sup>2</sup>, 舒小铭<sup>1</sup>, 徐灿灿<sup>1</sup>, 陈吕军<sup>1,3\*</sup>

(1. 浙江清华长三角研究院生态环境研究所, 浙江省水质科学与技术重点实验室, 嘉兴 314006; 2. 中国科学院南京土壤所, 南京 210008; 3. 清华大学环境学院, 北京 100084)

**摘要:** 用膜生物反应器(membrane bioreactor, MBR)处理含环丙沙星(ciprofloxacin, CIP)的合成废水,考察了不同CIP进水浓度(0、5、10、15 mg·L<sup>-1</sup>)下MBR的微生物群落特征和抗性基因丰度的变化。结果表明,随着进水中CIP浓度从0 mg·L<sup>-1</sup>增加至15 mg·L<sup>-1</sup>,变形菌门(Proteobacteria)和拟杆菌门(Bacteroidetes)仍保持为优势菌门,相对丰度比例分别为57.5%和12.7%;红环菌科(Rhodocyclaceae)、Chitinophagaceae和丛毛单胞菌科(Comamonadaceae)被选择成为优势菌科,比例分别为29.96%、5.44%和6.60%;*Methyloversatilis*、*Ferruginibacter*、动胶菌属(*Zoogloea*)和丛毛单胞菌属(*Comamonas*)被选择成为优势菌属,比例分别为21.70%、7.56%、5.24%和4.15%;Chao1、ACE、Shannon指数逐渐降低和Simpson指数逐渐升高,表明MBR污泥中微生物丰富度和多样性均降低;亚硝化单胞菌属(*Nitrosomonas*)、硝化螺旋菌属(*Nitrospira*)、产碱菌属(*Alcaligenes*)和硝化杆菌属(*Nitrobacter*)相对丰度减少,使得氨氮去除率降低。CIP抗性基因(CIP-ARGs)分析表明,当MBR在CIP投加浓度为5 mg·L<sup>-1</sup>下运行至第33 d时,反应器中的*gyrA*、*gyrB*和*parC*基因相对丰度较CIP投加初期增加,加大了抗药风险。

**关键词:** 环丙沙星;膜生物反应器;微生物群落;氨氮;抗性基因

中图分类号: X172; X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)03-1333-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201706179

## Influence of Ciprofloxacin on the Microbial Community and Antibiotics Resistance Genes in a Membrane Bioreactor

DAI Qi<sup>1</sup>, LIU Rui<sup>1\*</sup>, LIANG Yu-ting<sup>2</sup>, SHU Xiao-ming<sup>1</sup>, XU Can-can<sup>1</sup>, CHEN Lü-jun<sup>1,3\*</sup>

(1. Zhejiang Provincial Key Laboratory of Water Science and Technology, Department of Environment in Yangtze Delta Region Institute of Tsinghua University, Zhejiang, Jiaxing 314006, China; 2. Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 3. School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

**Abstract:** A membrane bioreactor (MBR) was used to treat ciprofloxacin (CIP)-contaminated artificial wastewater. The microbial community structure and the abundance of antibiotic resistant genes (ARGs) in the MBR were studied at four CIP dosages (0, 5 mg·L<sup>-1</sup>, 10 mg·L<sup>-1</sup>, and 15 mg·L<sup>-1</sup>). The results showed that Proteobacteria and Bacteroidetes remained the dominant phylum, with relative abundances of 57.5% and 12.7%, respectively, as the dosage of CIP was increased from 0 mg·L<sup>-1</sup> to 15 mg·L<sup>-1</sup>. Rhodocyclaceae, Chitinophagaceae, and Comamonadaceae became the dominant family with abundances of 29.96%, 5.44%, and 6.60%, respectively. *Methyloversatilis*, *Ferruginibacter*, *Zoogloea*, and *Comamonas* became the dominant genus, with relative abundances of 21.70%, 7.56%, 5.24%, and 4.15%, respectively. The decrease of Chao1, ACE, and Shannon and the increase of Simpson indicated a decrease in microbial abundance and diversity. The relative abundances of *Nitrosomonas*, *Nitrospira*, *Alcaligenes*, and *Nitrobacter* decreased, which caused a decrease in the NH<sub>3</sub>-N removal rate. A CIP-ARGs analysis revealed that the relative abundances of *gyrA*, *gyrB*, and *parC* were increased, beginning after the sludge was dosed with 5 mg·L<sup>-1</sup> of CIP for 33 days, which augmented the risk for microbial drug-resistance.

**Key words:** ciprofloxacin; membrane bioreactor (MBR); microbial community; ammonium nitrogen; antibiotic resistant genes (ARGs)

环丙沙星(ciprofloxacin, CIP)作为第三代氟喹诺酮类抗生素,因具有广谱抗菌活性而得到广泛应用<sup>[1,2]</sup>,这也导致越来越多的CIP进入环境之中。据报道,近年来CIP在生活污水<sup>[3]</sup>、制药废水<sup>[4]</sup>、农业废水<sup>[5,6]</sup>和地表水<sup>[7~9]</sup>中均被频繁检出。该物质化学性质稳定,很难被微生物降解<sup>[10,11]</sup>,因此其抗菌生物活性在环境中残留时间较长。有研究表

明<sup>[12~14]</sup>,CIP的大量使用甚至滥用致使致病菌长期

收稿日期: 2017-06-19; 修订日期: 2017-09-09

基金项目: 嘉兴市科技计划项目(2016AY23099); 南湖科技计划项目(2015QS01); 浙江清华长三角研究院青年骨干基金A类项目(2015)

作者简介: 戴琦(1992~),女,硕士研究生,主要研究方向为水污染防治, E-mail: xunyiDQ@163.com

\* 通信作者, E-mail: liuruitsinghuazj@gmail.com; chenlj@tsinghua.edu.cn

处于亚抑菌浓度中,致病菌很容易突变产生耐药性.因此,近年来 CIP 等新型污染物引起的微污染问题已引起了人们的广泛关注<sup>[15]</sup>.

CIP 在环境中持续地迁移扩散,当达到一定浓度后会对某些敏感微生物的生长产生抑制,甚至直接杀死它们,从而改变土著微生物区系和数量,影响微生物群落结构分布<sup>[16]</sup>.同时,环境中残留的 CIP 等氟喹诺酮类抗生素能促进抗性基因(antibiotic resistant genes, ARGs)的产生<sup>[17]</sup>.目前,在河流、湖泊、土壤、底泥等不同介质中就检出了由于抗生素作用而产生的抗性基因和耐药细菌.抗性基因的传播和扩散可能会加快抗药性菌群的大量繁殖<sup>[18]</sup>,且细菌抗药性一旦生成就很难在短时间内消失<sup>[19]</sup>,对微生物群落结构形成了潜在的威胁.抗性基因作为一种新型污染物,其危害比抗生素本身要大<sup>[20]</sup>,这给人类的身体健康和生态环境安全带来了不可预测的风险<sup>[21, 22]</sup>.近年来,围绕着 CIP 对水或土壤中微生物群落的影响开展了较多的研究<sup>[23~25]</sup>,但大多集中于 CIP 痕量水平( $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$  或  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  级别),关于高浓度 CIP( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$  水平)对活性污泥中微生物群落结构、功能微生物数量及抗性基因丰度的影响还少有报道.

Xie 等<sup>[26]</sup>针对某抗生素生产废水开展研究,发现废水中 CIP 浓度很高,达到  $5.06\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,生化处理对 CIP 去除效果不佳,处理出水中残留浓度仍高达  $3.23\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ;且该系统对有机物和氨氮去除效果较差,推测是废水中的 CIP 对活性污泥中功能微生物造成了影响.此外,本实验室前期研究也发现 CIP 对膜生物反应器(membrane bioreactor, MBR)运行效能会产生负面影响<sup>[27]</sup>.

本研究旨在通过 MBR 处理 CIP 模拟废水实验,考察不同 CIP 投加浓度下 MBR 中微生物群落结构和功能微生物丰度的变化;探讨 CIP-ARGs,包括 *gyrA*、*gyrB*、*parC* 和 *parE* 在 CIP 选择压力下的变化情况,以期为 CIP 生产废水的无害化处理提供数据支撑.

## 1 材料与方法

### 1.1 实验用水

MBR 进水中含有  $200\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  葡萄糖、 $256.67\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  无水乙酸钠、 $94.17\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  硫酸铵和  $17.50\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  磷酸二氢钾(C:N:P=100:5:1),其 COD、氨氮和磷浓度分别约为  $400$ 、 $20$  和  $4\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ .整个实验分为 4 个工况,共运行 132 d,运行工况 1(1~

33 d)、2(34~66 d)、3(67~99 d)、4(100~132 d)条件下分别向上述 MBR 进水中投加 CIP 浓度为 0、5、10 和  $15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ .所用 CIP(上海阿拉丁生化科技股份有限公司)、葡萄糖、无水乙酸钠、硫酸铵、磷酸二氢钾等药剂均为分析纯.

### 1.2 实验装置与运行条件

MBR 主要由有机玻璃容器(长方体结构,有效体积为 12 L)、膜组件(日本三菱丽阳株式会社的中空纤维膜,膜平均孔径为  $0.1\ \mu\text{m}$ ,膜面积为  $0.09\text{ m}^2$ )和曝气装置组成(图 1).反应器中接种污泥取自某生活污水处理厂好氧膜池,经稀释水洗和稀释后,调整反应器中初始 MLSS 为  $6.2\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ .整个 MBR 装置和进水桶采取遮光处理,避免 CIP 发生光解.反应器连续进水,流速为  $25\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ ;间歇抽吸出水,每连续出水 5 min 后停止出水 1 min,以减缓膜污染,出水流速为  $30\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ .整个实验中,反应器水力停留时间(HRT)为 8 h,溶解氧为  $2\sim 4\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,pH 为  $7\sim 8$ ,水温为  $25\sim 30\text{ }^\circ\text{C}$ ,COD 容积负荷约  $1.2\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ ,除工况 1 视情况周期性排泥外其余 3 个工况几乎没有排泥(检测时所取混合液体积与整个 MBR 体积相比,影响甚微,可忽略此污泥损耗).

每个工况下周期性取样分析常规水质指标和 CIP 的变化情况,并取污泥样品密封避光保存于  $-70\text{ }^\circ\text{C}$  超低温冰箱内,用于分析微生物群落及其抗性基因的变化.

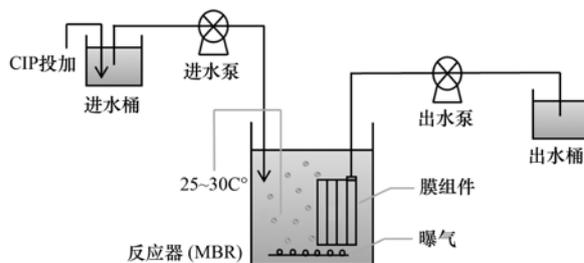


图 1 实验装置结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of MBR

### 1.3 分析项目与方法

#### 1.3.1 高通量测序

分别于第 33 d(运行工况 1 末)、36 d 和 66 d(即工况 2 的第 3 d 和 33 d)、69 d 和 99 d(即工况 3 的第 3 d 和 33 d)、102 d 和 132 d(即工况 4 的第 3 d 和 33 d)采取污泥样品,委托生工生物工程(上海)股份有限公司进行高通量测序.

泥水混合物  $3000\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$  离心去上清液,沉淀固体部分使用 E. Z. N. ATM Mag-Bind Soil DNA

Kit 试剂盒(OMEGA)进行 DNA 提取,之后用 Qubit<sup>®</sup> 2.0 荧光计(Invitrogen)检测 DNA 浓度,用琼脂糖凝胶(美国 UVP)检测 DNA 完整性,用 Qubit 2.0 DNA 检测试剂盒(Life)对基因组 DNA 精确定量. PCR 扩增采用融合了 MiSeq 测序平台的 V3-V4 通用引物 341F (CCCTACACGACGCTCTTCCGATCTG (barcode) CCTACGGGNGGCWGCAG) 和 805R (GACTGGAGTTCCTTGGCAGCCGAGAATTCCAGACTACHVGGGTATCTCTA ATCC). PCR 扩增、DNA 纯化回收和定量混合等步骤参照文献[28].

### 1.3.2 抗性基因检测分析

采用 PowerSoil<sup>®</sup> DNA Isolation Kit 试剂盒(MO BIO)并结合液氮冷冻研磨法对样品的基因组 DNA 进行提取. PCR 的扩增引物如表 1 所示<sup>[29]</sup>. PCR 反应体系:DNA 模板 1  $\mu\text{L}$ ,  $2 \times \text{Taq}$  酶 12.5  $\mu\text{L}$ , 上下游引物( $10 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ )各 0.5  $\mu\text{L}$ , 10.5  $\mu\text{L}$  ddH<sub>2</sub>O, 反应体系总体积为 25  $\mu\text{L}$ . PCR 反应程序:94 $^{\circ}\text{C}$  预热 5 min, 30 个循环:94 $^{\circ}\text{C}$  变性 30 s, 退火温度(*gyrA*, *gyrB*: 55 $^{\circ}\text{C}$ ; *parC*, *parE*: 57 $^{\circ}\text{C}$ ; 16S rRNA: 60 $^{\circ}\text{C}$ )30 s, 72 $^{\circ}\text{C}$  延伸 30 s, 最后 72 $^{\circ}\text{C}$  停留 7 min. 再采用 Universal DNA Purification Kit(TIANGEN)试剂盒对 CIP-ARGs 的 PCR 产物进行纯化回收,并委托中国科学院南京土壤研究所对纯化的 PCR 产物进行定量分析.

表 1 引物信息

基因	引物序列(5'→3')	片段大小/bp
<i>gyrA</i>	F_ACGTACTAGCAATGACTGG	192
	R_AGAAGTCCCGCTCGATAGAAC	
<i>gyrB</i>	F_GCGCGTGAGATGACCCGCCGT	391
	R_CTGGCGGTAGAAGAAGGTACG	
<i>parC</i>	F_CTGGAGCCGATTCCAAGCAC	306
	R_GAAGGACTTGGGATCGTCCGG	
<i>parE</i>	F_CGGCGTTCGTCTCGGCGTGGTGAAGGA	593
	R_TCGAGGGCGTAGATGTCCTTGCCGA	
16S rRNA	515F_GTGCCAGCMGCCCGG	292
	806R_GGACTACHVGGGTWTCTAAT	

### 1.3.3 其它指标检测

CIP 浓度采用高效液相色谱仪 HPLC (LC-2010A 型, 日本岛津)测定;色谱柱为 ODS-2, 5  $\mu\text{m}$  4.6  $\times$  250 mm(WondaCract, 日本岛津);检测器为紫外可见吸收检测器(UV-Vis), 波长为 277 nm;流动相为色谱纯乙腈:水(含 0.1% 甲酸, 色谱纯) = 20:80(体积比);流速为 0.7  $\text{mL} \cdot \text{min}^{-1}$ ;温度为 35 $^{\circ}\text{C}$ ;进样体积为 10  $\mu\text{L}$ . COD、氨氮和 MLSS 分别采用重铬酸钾法、纳氏试剂分光光度法和重量法<sup>[30]</sup>测定;TOC 采用 TOC-V<sub>CSN</sub> 总有机碳分析仪(日

本岛津)测定.

## 2 结果与讨论

### 2.1 不同 CIP 投加浓度下 MBR 中微生物群落解析

#### 2.1.1 活性污泥的微生物群落结构

不同 CIP 投加浓度下 MBR 污泥中微生物群落在门、纲、目、科、属等分类水平上的平均种类分布如图 2 所示. 门、纲、目、科、属等 5 个分类水平微生物种类数分布大体上都随着 CIP 投加浓度和运行时间的增加呈现减少的趋势.

在工况 1 下 MBR 运行稳定时,微生物群落分析中共检出了 17 个门、34 个纲、60 个目、104 个科和 232 个属.

当运行至工况 2, MBR 进水中 CIP 浓度为 5  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$  时,微生物体系突然受到 CIP 的胁迫,敏感微生物活性受到抑制而死亡,使得微生物群落的门、纲和目种类减少;继续运行至该阶段末, MBR 运行逐渐趋于稳定,此时科和属种类数相较于 0  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$  (33 d) 时分别下降了 21% 和 25%.

继续增加 MBR 进水中 CIP 浓度至 10  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$  和 15  $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ , 门和纲水平上微生物种类数基本趋于稳定;但目、科、属水平上微生物种类数却有较大程度减少,尤其是属水平,工况 4 末的属水平种类数相较于工况 1 末下降了 53%. 结果显示, CIP 的加入对微生物群落的门和纲数量影响不大,但对目、科、属数量影响较大;表明了微生物分类单位越小, CIP 胁迫所引起的微生物种类变化越明显.

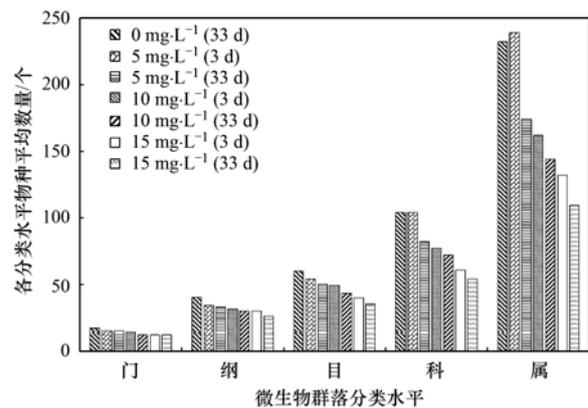


图 2 各分类水平微生物群落数量分布

Fig. 2 Distribution of the microbial community at different classification levels

为了深入探究不同 CIP 浓度对微生物群落结构的影响,接下来分别从门、科、属水平上进行群落结构分析. 门水平上, MBR 中微生物群落结构分布如图 3 所示.

MBR 在工况 1 中运行稳定时,微生物群落共检出 17 个门,优势菌群为变形菌门(Proteobacteria)、拟杆菌门(Bacteroidetes)、浮霉菌门(Planctomycetes)、酸杆菌门(Acidobacteria)和硝化螺旋菌门(Nitrospirae),其中变形菌门所占丰度比例最大,为 52%。工况 2, MBR 进水中开始投加  $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  的 CIP, 上述优势菌群受到 CIP 的突然冲击,其相对丰度比例呈现出不同程度地降低;厚壁菌门(Firmicutes)、放线菌门(Actinobacteria)、Candidatus Saccharibacteria 和绿弯菌门(Chloroflexi)为该工况下新增的优势菌群。

随着运行时间的延长和 CIP 投加浓度的继续增加,上述优势菌群的相对丰度比例呈现不同的变化

趋势:变形菌门和拟杆菌门的相对丰度比例呈先升高后降低再升高再降低的趋势,表明这两种菌群对 CIP 浓度的增加比较敏感;浮霉菌门、酸杆菌门和硝化螺旋菌门的相对丰度比例均呈先增后减的趋势,表明这 3 种菌群能适应一定浓度的 CIP 环境但在更高浓度的 CIP 环境中很难生存; $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  (3 d) 时新检出的优势菌群均不能适应 CIP 的长期胁迫而持续减少,甚至消失。

在高浓度 CIP 的长期选择性压力下变形菌门和拟杆菌门成为 MBR 污泥中的主要菌群,工况 4 末二者相对丰度比例分别为 57.5% 和 12.7%,表明 MBR 中大部分抗 CIP 的微生物是属于这两种优势菌群,这与前人的研究一致<sup>[31]</sup>。

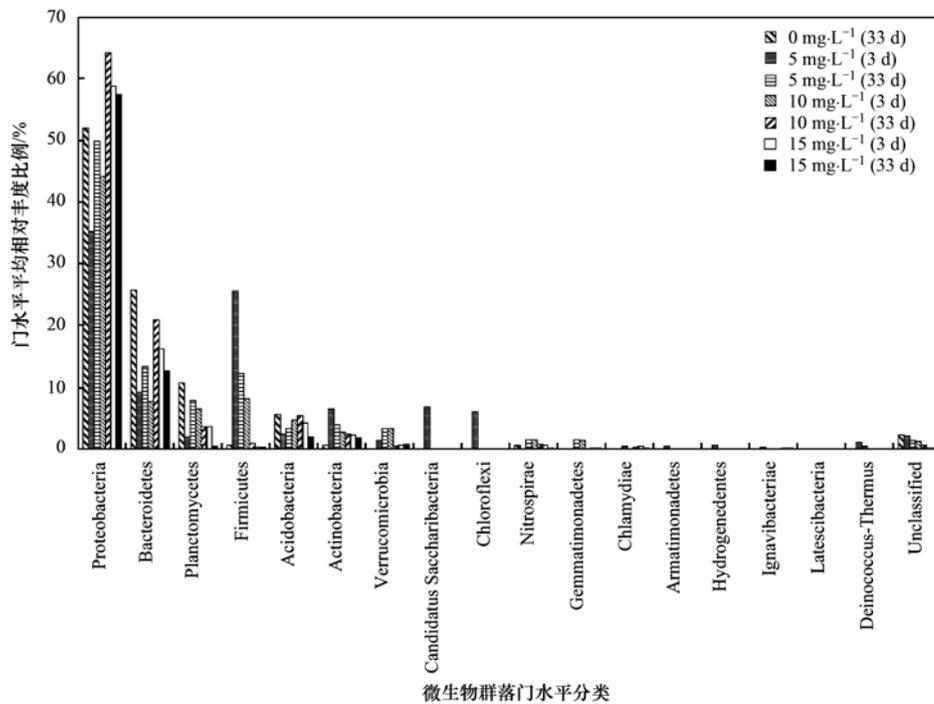


图 3 门水平上微生物群落结构分布

Fig. 3 Distribution of the microbial community at the phylum level

科水平上, MBR 中微生物群落结构分布如图 4 所示(仅显示整个运行过程中平均相对丰度比例  $\geq 2.5\%$  的菌科)。

工况 1 条件下, MBR 中检出的优势菌科有红环菌科(Rhodocyclaceae)、Kofleriaceae、生丝微菌科(Hyphomicrobiaceae)、Chitinophagaceae 和浮霉菌科(Planctomycetaceae), 所占比例分别为 15.45%、5.80%、5.67%、16.10% 和 10.13%; 前 3 者均属于变形菌门, 后两者分别隶属于拟杆菌门和浮霉菌门。工况 2, 当 MBR 进水中开始投加 CIP 时, 这些优势菌科活性和生长受到 CIP 的抑制, 相对丰度比例均急剧降低; 而红杆菌科(Rhodobacteraceae)、消

化链球菌科(Peptostreptococcaceae)和叶杆菌科(Phyllobacteriaceae)比例增大, 成为优势菌科。

当 MBR 在  $5 \sim 15 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  的 CIP 环境中运行期间, 微生物群落结构产生不同的变化。其中红环菌科逐渐适应 CIP 环境, 相对丰度比例持续增加; Kofleriaceae、Chitinophagaceae 和浮霉菌科的相对丰度比例呈现出先升高后降低再升高再降低的过程, 表现出波动状态, 表明这 3 种菌科易受到 CIP 浓度增加的影响, 其中 Chitinophagaceae 的变化趋势与拟杆菌门完全一致; 生丝微菌科、红杆菌科、消化链球菌科和叶杆菌科相对丰度比例逐渐降低, 表明这 4 种菌科经不住 CIP 的长期胁迫。

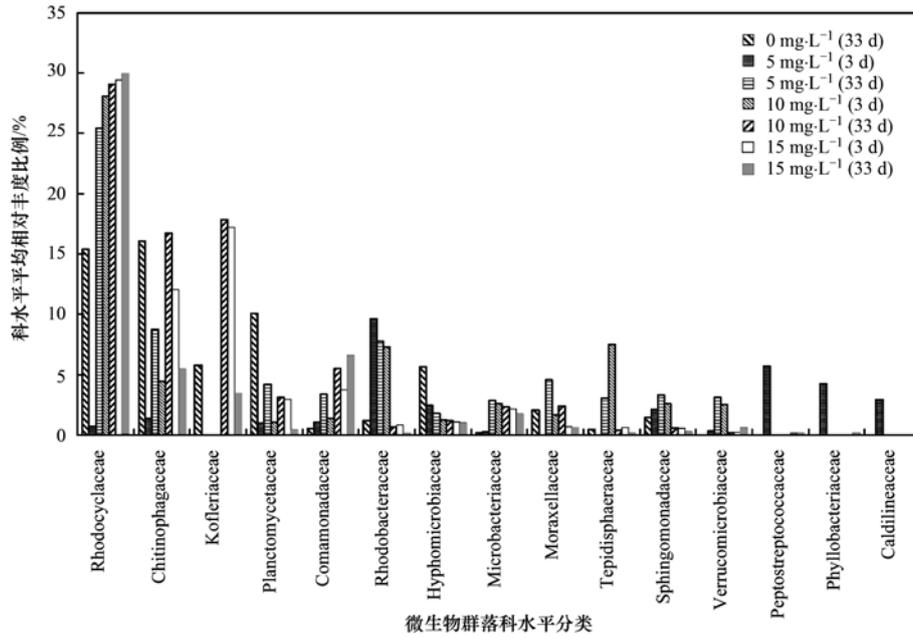


图 4 科水平上微生物群落结构分布

Fig. 4 Distribution of the microbial community at the family level

面对高浓度 CIP 长时间的选择性压力，在工况 4 末期选择出来的优势菌科为红环菌科、Chitinophagaceae 和 丛毛单胞菌科 (Comamonadaceae)，相对丰度比例分别为 29.96%、5.44% 和 6.60%。

属水平上，MBR 中微生物群落结构分布如图 5 所示(仅显示整个运行过程中平均相对丰度比例  $\geq 2.5\%$  的菌属)。MBR 进水中未投加 CIP 时，污

泥中的优势菌属为 *Azospira*、*Kofleria*、*Ferruginibacter*、动胶菌属(*Zoogloea*)和生丝微菌属(*Hyphomicrobium*)，所占比例分别为 13.07%、5.80%、10.41%、7.03% 和 4.48%。工况 2，当 MBR 进水中开始投加 CIP 时，上述优势菌属相对丰度比例均急剧降低，表明其活性和生长受到了 CIP 的抑制；此时优势菌属为动胶菌属(隶属于红环菌科)、*Tissierella* (隶属于消化链球菌科)、

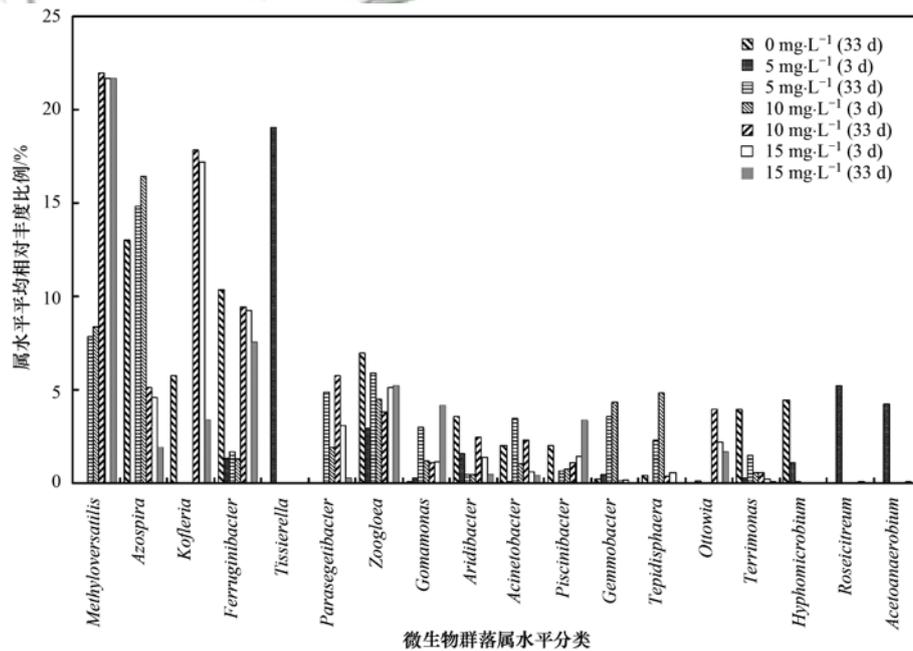


图 5 属水平上微生物群落结构分布

Fig. 5 Distribution of the microbial community at the genus level

*Acetoanaerobium* 和 *Roseicetrum*.

由图 5 可知,继续延长 CIP 作用时间并增加 CIP 的投加浓度,微生物群落结构分布产生显著性差异. 其中 *Azospira*、*Kofleria*、*Tissierella*、生丝微菌属、*Acetoanaerobium* 和 *Roseicetrum* 在 CIP 长期胁迫下很难生存而失去优势; 而 *Methyloversatilis*、*Ferruginibacter*、动胶菌属和丛毛单胞菌属 (*Comamonas*) 在高浓度 CIP 的选择性压力下成为优势菌属, 工况 4 末各相对丰度比例分别为 21.70%、7.56%、5.24% 和 4.15%.

门、科、属水平上的微生物群落结构分析表明,在高浓度 CIP 的长期胁迫和选择性压力下,敏感性微生物活性受到抑制而难以生存; 而变形菌门中红环菌科下的 *Methyloversatilis*、*Ferruginibacter* 和动胶菌属及丛毛单胞菌科下的丛毛单胞菌属最终成为了 MBR 中的优势菌属.

表 2 CIP 投加浓度对微生物群落 Chao1、ACE、Simpson 和 Shannon 指数的影响

Table 2 Influence of CIP concentration on Chao1, ACE, Simpson and Shannon indexes

CIP 投加浓度/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	运行时间/d	Chao1 指数	ACE 指数	Simpson 指数	Shannon 指数
0	33	1271.7	1319.4	0.031	4.81
5	3	895.0	935.2	0.069	4.29
5	33	892.5	1112.5	0.066	3.66
10	3	733.5	771.2	0.095	3.39
10	33	661.3	803.7	0.090	3.29
15	3	633.2	862.1	0.095	3.27
15	33	469.7	510.3	0.139	3.01

### 2.1.3 CIP 投加浓度对部分功能微生物群落的影响

考察 CIP 投加浓度对 TOC、氨氮和 CIP 去除效果的影响(如图 6), 浅析污染物去除率变化与微生物群落结构变化的关系. 结合图 5 和图 6 可知,随着 CIP 投加浓度从  $0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  增加到  $15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , TOC 平均去除率从 97.56% 下降至 90.84%, 表明 CIP 对有机物去除有所影响但影响程度不大. 众所周知,菌胶团是活性污泥和生物膜的重要组成部分,是有机物降解去除的主力军;动胶菌属作为菌胶团的主要构成体<sup>[31]</sup>,在 CIP 长期胁迫下,其相对丰度比例趋于稳定,或许 TOC 去除效果较稳定就与之相关.

图 5 显示,丛毛单胞菌属也逐渐成为 MBR 中优势菌属之一,有研究报道该菌属能利用 CIP 作为碳源<sup>[32]</sup>;但在整个运行期间 CIP 去除率较低,除了  $5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  (3 d) 时主要靠污泥吸附去除 59.03% 的 CIP 外,其余时段平均去除率仅为 7.24% ~ 24.90%,表明大部分优势菌种虽可在 CIP 胁迫下生存和繁殖,但对 CIP 利用率不高.

### 2.1.2 CIP 投加浓度对 MBR 中微生物群落多样性的影响

考察 CIP 投加浓度对 MBR 中微生物群落丰富度与多样性的影响,结果如表 2 所示. Chao1 和 ACE 指数用来估计微生物群落的丰富度,而 Simpson 和 Shannon 指数代表群落多样性. 由表 2 可知,随着 MBR 进水中 CIP 投加浓度的增加和反应时间的延长,Chao1 指数呈下降趋势,从  $0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  (33 d) 的 1271.7 降至  $15\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  (33 d) 的 469.7,下降率为 63%; ACE 指数在整个运行中比较波动,但整体上呈下降趋势; Simpson 指数持续升高,而 Shannon 指数持续降低. Chao1、ACE、Shannon 指数的降低和 Simpson 指数的升高表明了 MBR 污泥中微生物群落受到了 CIP 的抑制导致部分微生物难以生存而死亡,使得污泥中微生物群落丰富度和多样性均呈下降趋势,这与图 2 显示的结果一致.

由图 6 和图 7 可知,随着 CIP 投加浓度的增加和运行时间的延长,亚硝化单胞菌属 (*Nitrosomonas*) 和硝化螺旋菌属 (*Nitrospira*) 相对丰度呈先降低后升高再降低的趋势;产碱菌属 (*Alcaligenes*) 和硝化杆菌属 (*Nitrobacter*) 持续减少,最后消失. 这 4 种菌属的减少或消失对 MBR 中氨氮的去除造成了负面影响,平均去除率由  $0\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$

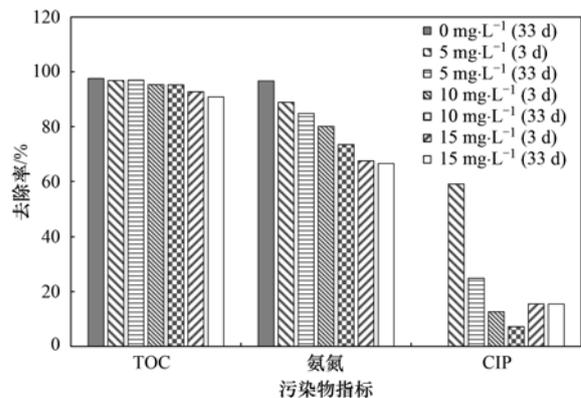


图 6 CIP 投加浓度对污染物去除率的影响

Fig. 6 Influence of CIP concentration on pollutant removal

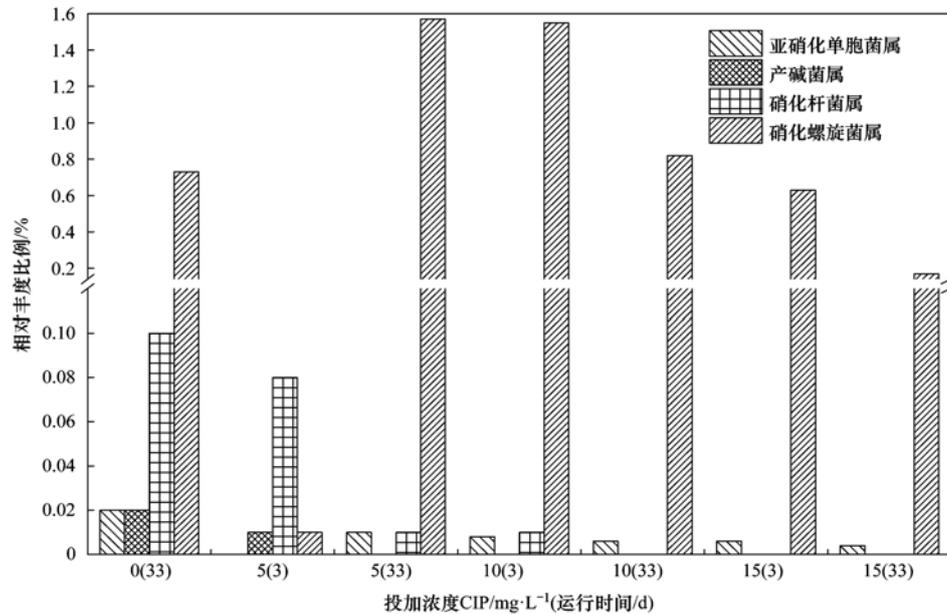


图7 CIP投加浓度对硝化菌属的影响

Fig. 7 Influence of CIP concentration on nitrifying microorganism community

(33 d) 的 96.67% 降低至 15 mg·L<sup>-1</sup> (33 d) 的 66.52%。虽然硝化微生物对低浓度 CIP (μg·L<sup>-1</sup>) 可能具有一定的抵抗性和适应性<sup>[33]</sup>, 但在高浓度 CIP 环境中硝化微生物却很难成为优势菌群, 导致氨氮的去除效率降低。

## 2.2 CIP 对抗性基因 (CIP-ARGs) 的影响

由图 3~5 可知, 在 CIP 投加浓度为 5 mg·L<sup>-1</sup> 的阶段, MBR 中微生物在门、科和属水平上的优势群落结构分布均存在显著性差异。因此选取该阶段为研究对象, 考察 CIP-ARGs 平均相对丰度随时间的变化情况, 判断 ARGs 水平是否存在类似现象, 结果如表 3 所示。本研究选取的抗性基因包括 DNA 促旋酶 A 亚单位 (*gyrA*) 与 B 亚单位 (*gyrB*) 和拓扑异构酶 IV 的 C 亚单位 (*parC*) 与 E 亚单位 (*parE*)。为了减少分析检测过程中产生的误差, 采用 CIP-ARGs 的相对丰度 (目标基因拷贝数 /

16S rRNA 拷贝数) 进行分析<sup>[34]</sup>。表 3 显示, CIP 的加入对 MBR 微生物产生了较为显著的影响, 其中内参基因 16S rRNA 的绝对丰度随 CIP 暴露时间的增加总体上呈降低趋势, 由 3.45 × 10<sup>7</sup> copies·g<sup>-1</sup> 降至 33 d 的 1.68 × 10<sup>7</sup> copies·g<sup>-1</sup>; 4 种 CIP-ARGs 在运行 3 d 时, 相对丰度均呈现不同程度的降低, 以 *gyrA* 基因降低幅度最大, 原因可能是携带这 4 种抗性基因的部分菌种对高浓度 CIP 敏感而被杀死。之后随着运行时间的增加, 这 4 种 CIP-ARGs 的相对丰度呈波动状态, 但相较于 CIP 投加初期均有所增加 (*parE* 基因除外), 原因可能在于细菌长期暴露在 CIP 环境中, 其 DNA 旋转酶和拓扑异构酶 IV 基因的抗性决定区发生基因突变导致细菌对 CIP 出现抗性作用, 抗药性细菌可能会逐渐被选择成为优势菌群<sup>[29]</sup>, 这与微生物群落结构分布结果相一致。

表3 CIP-ARGs 在 MBR 运行中的波动变化 (CIP = 5 mg·L<sup>-1</sup>)Table 3 Fluctuation of CIP-ARGs during the operation of MBR (CIP = 5 mg·L<sup>-1</sup>)

运行时间 /d	16S rRNA 绝对丰度 × 10 <sup>7</sup> /copies·g <sup>-1</sup>	<i>gyrA</i> 相对丰度 × 10 <sup>-4</sup>	<i>gyrB</i> 相对丰度 × 10 <sup>-3</sup>	<i>parC</i> 相对丰度 × 10 <sup>-5</sup>	<i>parE</i> 相对丰度 × 10 <sup>-4</sup>
0(未投加 CIP)	3.45	27.12	3.92	8.07	20.76
3	3.41	0.17	1.14	4.00	14.15
11	2.22	5.45	2.06	10.8	2.94
22	2.36	15.13	19.58	9.4	15.56
33	1.68	5.02	14.63	4.47	9.94

## 3 结论

(1) 通过考察不同 CIP 投加浓度下 MBR 污泥

中微生物群落结构变化发现, 随着 CIP 投加浓度和运行时间的增加, 工况 4 末, 门水平上 Proteobacteria 和 Bacteroidetes 仍然为 MBR 中的优势

菌群, 科水平上 Rhodocyclaceae、Chitinophagaceae 和 Comamonadaceae 被选择成为优势菌科, 属水平上 *Methyloversatilis*、*Ferruginibacter*、*Zoogloea* 和 *Comamonas* 被选择成为优势菌属。Chao1、ACE、Shannon 指数降低和 Simpson 指数升高表明 MBR 中微生物丰富度和多样性均降低。高浓度 CIP 对硝化微生物 *Nitrosomonas*、*Nitrospira*、*Alcaligenes* 和 *Nitrobacter* 的活性具有抑制作用, 导致氨氮去除效果下降。

(2) CIP-ARGs 分析表明高浓度 CIP 的长期胁迫使得 MBR 中的 *gyrA*、*gyrB* 和 *parC* 基因增加。

(3) 本研究仅为 CIP 对 MBR 中微生物群落结构特征和抗性基因的影响提供数据支撑, 由于实验规模较小, 未对如何提高耐药菌与抗性基因的削减效果进行探讨, 今后有必要在这一方面, 优化工艺参数与运行条件, 开展放大规模的连续实验, 从技术和经济上进行综合评估。

#### 参考文献:

- [1] 孙勤寓, 彭逸生, 刘玉, 等. 抗生素环丙沙星(CIP)在两种红树林湿地中的残留及迁移特征[J]. 环境科学学报, 2017, **37**(3): 1057-1064.  
Sun Q Y, Peng Y S, Liu Y, *et al.* Residues and migration characteristics of antibiotics ciprofloxacin (CIP) in two mangrove wetlands[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2017, **37**(3): 1057-1064.
- [2] Zhang Q Q, Ying G G, Pan C G, *et al.* Comprehensive evaluation of antibiotics emission and fate in the river basins of China: source analysis, multimedia modeling, and linkage to bacterial resistance[J]. Environmental Science & Technology, 2015, **49**(11): 6772-6782.
- [3] Muñoz I, José G M, Molina-Díaz A, *et al.* Ranking potential impacts of priority and emerging pollutants in urban wastewater through life cycle impact assessment[J]. Chemosphere, 2008, **74**(1): 37-44.
- [4] Guney G, Sponza D T. Comparison of biological and advanced treatment processes for ciprofloxacin removal in a raw hospital wastewater[J]. Environmental Technology, 2016, **37**(24): 3151-3167.
- [5] 刘艳萍, 刘鸿雁, 吴龙华, 等. 贵阳市某蔬菜地养殖废水污灌土壤重金属、抗生素复合污染研究[J]. 环境科学学报, 2017, **37**(3): 1074-1082.  
Liu Y P, Liu H Y, Wu L H, *et al.* Co-contamination of heavy metals and antibiotics in soils under husbandry wastewater irrigation in Guiyang City[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2017, **37**(3): 1074-1082.
- [6] 刘畅, 李瑜. 环丙沙星在土壤中的吸附及降解研究进展[J]. 北京农业, 2016, (4): 195-199.
- [7] 郭睿, 王山军, 昌盛, 等. 嘉兴市饮用水源及城市河网抗生素分布特征[J]. 环境化学, 2016, **35**(9): 1842-1852.  
Guo R, Wang S J, Chang S, *et al.* The distribution characteristics of antibiotics in Jiaxing drinking water source and urban river[J]. Environmental Chemistry, 2016, **35**(9): 1842-1852.
- [8] Luo Y, Xu L, Rysz M, *et al.* Occurrence and transport of tetracycline, sulfonamide, quinolone, and macrolide antibiotics in the Haihe River basin, China[J]. Environmental Science & Technology, 2011, **45**(5): 1827-1833.
- [9] Zhou L J, Ying G G, Zhao J L, *et al.* Trends in the occurrence of human and veterinary antibiotics in the sediments of the Yellow River, Hai River and Liao River in northern China [J]. Environmental Pollution, 2011, **159**(7): 1877-1885.
- [10] Dorivalgarcía N, Zafra-Gómez A, Navalón A, *et al.* Removal of quinolone antibiotics from wastewaters by sorption and biological degradation in laboratory-scale membrane bioreactors [J]. Science of the Total Environment, 2013, **442**: 317-328.
- [11] Liu H, Zhang G P, Liu C Q, *et al.* The occurrence of chloramphenicol and tetracyclines in municipal sewage and the Nanming River, Guiyang City, China [J]. Journal of Environmental Monitoring, 2009, **11**(6): 1199-1205.
- [12] Veldman K, Cavaco L M, Mevius D, *et al.* International collaborative study on the occurrence of plasmid-mediated quinolone resistance in *Salmonella enterica* and *Escherichia coli* isolated from animals, humans, food and the environment in 13 European countries[J]. Journal of Antimicrobial Chemotherapy, 2011, **66**(6): 1278-1286.
- [13] 王小亮, 徐立蒲, 曹欢, 等. 鱼源病原菌对氟喹诺酮类药物的耐药性分析[J]. 中国畜牧兽医, 2013, **40**(3): 195-199.  
Wang X L, Xu L P, Cao H, *et al.* Analysis of the fluoroquinolone resistance of pathogens isolated from fish [J]. China Animal Husbandry & Veterinary Medicine, 2013, **40**(3): 195-199.
- [14] Aoike N, Saga T, Sakata R, *et al.* Molecular characterization of extraintestinal *Escherichia coli* isolates in Japan: relationship between sequence types and mutation patterns of quinolone resistance-determining regions analyzed by pyrosequencing [J]. Journal of Clinical Microbiology, 2013, **51**(6): 1692-1698.
- [15] 马驿, 彭金菊, 王芸, 等. 环丙沙星对土壤微生物量碳和土壤微生物群落碳代谢多样性的影响[J]. 生态学报, 2013, **33**(5): 1506-1512.  
Ma Y, Peng J J, Wang Y, *et al.* Effects of ciprofloxacin on microbial biomass carbon and carbon metabolism diversity of soil microbial communities [J]. Acta Ecologica Sinica, 2013, **33**(5): 1506-1512.
- [16] Wunder D B, Tan D T, Lapara T M, *et al.* The effects of antibiotic cocktails at environmentally relevant concentrations on the community composition and acetate biodegradation kinetics of bacterial biofilms [J]. Chemosphere, 2013, **90**(8): 2261-2266.
- [17] Li J, Wang T, Shao B, *et al.* Plasmid-mediated quinolone resistance genes and antibiotic residues in wastewater and soil adjacent to swine feedlots; potential transfer to agricultural lands [J]. Environmental Health Perspectives, 2012, **120**(8): 1144-1149.
- [18] Sapkota A R, Curriero F C, Gibson K E, *et al.* Antibiotic-resistant enterococci and fecal indicators in surface water and groundwater impacted by a concentrated Swine feeding operation [J]. Environmental Health Perspectives, 2007, **115**(7): 1040-1045.
- [19] Rodriguez-Mozaz S, Chamorro S, Marti E, *et al.* Occurrence of

- antibiotics and antibiotic resistance genes in hospital and urban wastewaters and their impact on the receiving river[J]. *Water Research*, 2015, **69**: 234-242.
- [20] 葛伟丽. 长期施用鸡粪农田土壤中典型抗生素耐药细菌及其抗性基因污染分析[D]. 济南: 山东农业大学, 2014.
- Ge W L. Typical antibiotic resistant bacteria and resistance gene in the farmland soil fertilized with chicken manure chronically [D]. Ji'nan: Shandong Agricultural University, 2014.
- [21] Sharma V K, Johnson N, Cizmas L, *et al.* A review of the influence of treatment strategies on antibiotic resistant bacteria and antibiotic resistance genes[J]. *Chemosphere*, 2016, **150**: 702-714.
- [22] Sui Q, Huang J, Deng S B, *et al.* Occurrence and removal of pharmaceuticals, caffeine and DEET in wastewater treatment plants of Beijing, China[J]. *Water Research*, 2010, **44**(2): 417-426.
- [23] Liao X B, Li B X, Zou R S, *et al.* Biodegradation of antibiotic ciprofloxacin; pathways, influential factors, and bacterial community structure [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(8): 7911-7918.
- [24] Gonzalez-Martinez A, Rodriguez-Sanchez A, Martinez-Toledo M V, *et al.* Effect of ciprofloxacin antibiotic on the partial-nitrification process and bacterial community structure of a submerged biofilter [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **476-477**: 276-287.
- [25] Cui H, Wang S P, Fu J, *et al.* Influence of ciprofloxacin on microbial community structure and function in soils[J]. *Biology and Fertility of Soils*, 2014, **50**(6): 939-947.
- [26] Xie Y W, Chen L J, Liu R. AOX contamination status and genotoxicity of AOX-bearing pharmaceutical wastewater [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2017, **52**: 170-177.
- [27] 戴琦, 刘锐, 舒小铭, 等. 环丙沙星对膜生物反应器运行效能的影响及其去除特性[J]. *环境科学*, 2018, **39**(1): 212-218.
- Dai Q, Liu R, Shu X M, *et al.* Removal and influence of ciprofloxacin in a membrane bioreactor [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(1): 212-218.
- [28] 魏铭聪. 甲烷渗漏环境中自生矿物形成条件的实验研究 [D]. 长春: 吉林大学, 2016.
- Wei M C. The formation of authigenic minerals during methane seeping in seafloor: insight from laboratory test [D]. Changchun: Jilin University, 2016.
- [29] Rubin J, Walker R D, Blickenstaff K, *et al.* Antimicrobial resistance and genetic characterization of fluoroquinolone resistance of *Pseudomonas aeruginosa* isolated from canine infections[J]. *Veterinary Microbiology*, 2008, **131**(1-2): 164-172.
- [30] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法 [M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002. 211-213, 277-281.
- [31] 何势. 曝气生物滤池中环丙沙星去除行为及其对降解菌群抗药性的诱导作用[D]. 上海: 东华大学, 2016.
- He S. Removal behavior of ciprofloxacin in the biological aerated filter and its effect on the resistance of bacteria [D]. Shanghai: Donghua University, 2016.
- [32] Jung C M, Heinze T M, Strakosha R, *et al.* Acetylation of fluoroquinolone antimicrobial agents by an *Escherichia coli* strain isolated from a municipal wastewater treatment plant [J]. *Journal of Applied Microbiology*, 2009, **106**(2): 564-571.
- [33] 何势, 顾超超, 魏欣, 等. 低浓度环丙沙星对曝气生物滤池生物膜硝化过程及硝化微生物的作用影响[J]. *环境科学*, 2016, **37**(4): 1485-1491.
- He S, Gu C C, Wei X, *et al.* Effect of low-concentration ciprofloxacin on the nitrification and nitrifying microorganisms of biofilms in biological aerated filter [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(4): 1485-1491.
- [34] Liu L, Liu C X, Zheng J Y, *et al.* Elimination of veterinary antibiotics and antibiotic resistance genes from swine wastewater in the vertical flow constructed wetlands [J]. *Chemosphere*, 2013, **91**(8): 1088-1093.

## CONTENTS

Characterization and Variation of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM <sub>2.5</sub> During the Winter in the Yangtze River Delta Region, China	KANG Hui, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i>	(961)
Important Effect of Secondary Inorganic Salt Extinction on Visibility Impairment in the Northern Suburb of Nanjing	YU Chao, YU Xing-na, ZHAO Tian-liang, <i>et al.</i>	(972)
Day-Night Differences and Source Apportionment of Inorganic Components of PM <sub>2.5</sub> During Summer-Winter in Changzhou City	LIU Jia-shu, GU Yuan, MA Shuai-shuai, <i>et al.</i>	(980)
Characteristics of Elements in PM <sub>2.5</sub> and PM <sub>10</sub> in Road Dust Fall During Spring in Tianjin	WANG Shi-bao, JI Ya-qin, LI Shu-li, <i>et al.</i>	(990)
Particle Size Distribution and Human Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particles from Beijing and Xixiang During Summer	ZHANG Xin, ZHAO Xiao-man, MENG Xue-jie, <i>et al.</i>	(997)
Ecological and Health Risks of Trace Heavy Metals in Atmospheric PM <sub>2.5</sub> Collected in Wuxiang Town, Shanxi Province	GUO Zhao-xia, GENG Hong, ZHANG Jin-hong, <i>et al.</i>	(1004)
Characteristics of Particulate and Inorganic Elements of Motor Vehicles Based on a Tunnel Environment	LI Feng-hua, ZHANG Yan-jie, ZHANG Jing, <i>et al.</i>	(1014)
A 2013-based Atmospheric Ammonia Emission Inventory and Its Characteristic of Spatial Distribution in Henan Province	WANG Chen, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i>	(1023)
Emission Characteristics of Wind Erosion Dust from Topsoil of Urban Roadside-Tree Pool	LI Bei-bei, QIN Jian-ping, QI Li-rong, <i>et al.</i>	(1031)
Particulate Component Emission Characteristic from a Diesel Bus with DOC and CDPF	LOU Di-ming, GENG Xiao-yu, SONG Bo, <i>et al.</i>	(1040)
Water Quality in the Henan Intake Area of the South-to-North Water Diversion Project	HUANG Piao-yi, XU Bin, GUO Dong-liang	(1046)
Spatio-Temporal Patterns and Environmental Risk of Endocrine Disrupting Chemicals in the Liuxi River	FAN Jing-jing, WANG Sai, TANG Jin-peng, <i>et al.</i>	(1053)
Fate and Origin of Major Ions in River Water in the Lhasa River Basin, Tibet	ZHANG Qing-hua, SUN Ping-an, HE Shi-yi, <i>et al.</i>	(1065)
Identification of Nitrate Sources and the Fate of Nitrate in Downstream Areas: A Case Study in the Taizi River Basin	LI Yan-li, YANG Zi-rui, YIN Xi-jie, <i>et al.</i>	(1076)
Sources, Distribution of Main Controlling Factors, and Potential Ecological Risk Assessment for Heavy Metals in the Surface Sediment of Hainan Island North Bay, South China	ZENG Wei-te, YANG Yong-peng, ZHANG Dong-qiang, <i>et al.</i>	(1085)
Characteristics of Heavy Metals Pollution of Farmland and the Leaching Effect of Rainfall in Tianjin	XU Meng-meng, LIU Ai-feng, SHI Rong-guang, <i>et al.</i>	(1095)
Seasonal Difference in Water Quality Between Lake and Inflow/Outflow Rivers of Lake Taihu, China	ZHA Hui-ming, ZHU Meng-yuan, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i>	(1102)
Characteristics of Nitrogen Release at the Sediment-Water Interface in the Typical Tributaries of the Three Gorges Reservoir During the Sensitive Period in Spring	LI Xin, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i>	(1113)
Spatial Distributions of Transferable Nitrogen Forms and Influencing Factors in Sediments from Inflow Rivers in Different Lake Basins	ZHOU Rui, YUAN Xu-yin, Marip Ja Bawk, <i>et al.</i>	(1122)
Effects of Hydrological and Meteorological Conditions on Diatom Proliferation in Reservoirs	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i>	(1129)
Vertical Distribution of Fungal Community Composition and Water Quality During the Deep Reservoir Thermal Stratification	SHANG Pan-lu, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i>	(1141)
Community Structure and Influencing Factors of Bacterioplankton in Spring in Zhushan Bay, Lake Taihu	XUE Yin-gang, LIU Fei, SUN Meng, <i>et al.</i>	(1151)
Characteristics of Sediment Oxygen Demand in a Drinking Water Reservoir	SU Lu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i>	(1159)
Effects of Wastewater Nitrogen Concentrations and NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> /NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> on Nitrogen Removal Ability and the Nitrogen Component of <i>Myriophyllum aquaticum</i> (Vell.) Verde	MA Yong-fei, YANG Xiao-zhen, ZHAO Xiao-hu, <i>et al.</i>	(1167)
Effect of Nutrient Loadings on the Regulation of Water Nitrogen and Phosphorus by <i>Vallisneria spiralis</i> and Its Photosynthetic Fluorescence Characteristics	ZHOU Yi-wen, XU Xiao-guang, HAN Rui-ming, <i>et al.</i>	(1180)
Removal of Organic Matter from Water by Chemical Preoxidation Coupled with Biogenic Manganese Oxidation	JIAN Zhi-yu, CHANG Yang-yang, WANG Li-xin, <i>et al.</i>	(1188)
Treating Simulated Dye Wastewater by an <i>In Situ</i> Copper Ferrite Process	HAN Zhi-yong, HAN Kun, HAO Hao-tian, <i>et al.</i>	(1195)
Experiment to Enhance Catalytic Activity of $\alpha$ -FeOOH in Heterogeneous UV-Fenton System by Addition of Oxalate	MIAO Xiao-zeng, DAI Hui-wang, CHEN Jian-xin, <i>et al.</i>	(1202)
Fabrication of a Biomass-Based Hydrous Zirconium Oxide Nanocomposite for Advanced Phosphate Removal	QIU Hui, QIN Zhi-feng, LIU Feng-ling, <i>et al.</i>	(1212)
Characteristic of Nitrate Adsorption in Aqueous Solution by Iron and Manganese Oxide/Biochar Composites	ZHENG Xiao-qing, WEI An-lei, ZHANG Yi-xuan, <i>et al.</i>	(1220)
Preparation of PAAm/HACC Semi-Interpenetrate Network Hydrogel and Its Adsorption Properties for Humic Acid from Aqueous Solution	LIU Ze-jun, ZHOU Shao-qi, MA Fu-zhen	(1233)
Groundwater Arsenic and Silicate Adsorption on TiO <sub>2</sub> and the Regeneration of TiO <sub>2</sub>	MA Wen-jing, YAN Li, ZHANG Jian-feng	(1241)
Removal Efficiency and Mechanism of Removal by Humic Acid of the Integrated Flocculation-Ultrafiltration Process	LI Wen-jiang, YU Li-fang, MIAO Rui, <i>et al.</i>	(1248)
Emission Inventory of Greenhouse Gas from Urban Wastewater Treatment Plants and Its Temporal and Spatial Distribution in China	YAN Xu, QIU De-zhi, GUO Dong-li, <i>et al.</i>	(1256)
Start-up and Operation of Biofilter Coupled Nitrification and CANON for the Removal of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen	LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i>	(1264)
Analysis of CANON Process Start-up with Fiber Carrier	GU Cheng-wei, CHEN Fang-min, LI Xiang, <i>et al.</i>	(1272)
Characteristics of Biofilm During the Transition Process of Complete Nitrification and Partial Nitrification	ZHAO Qing, BIAN Wei, LI Jun, <i>et al.</i>	(1278)
Effect of Intermediate-Setting Aeration on the CANON Granular Sludge Process in the AUSB Reactor	CHENG Shuo, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i>	(1286)
Effect of Organic Carbon Source on Start-up and Operation of the CANON Granular Sludge Process	LI Dong, WANG Yan-ju, LU Yu-feng, <i>et al.</i>	(1294)
Start-Up and Regional Characteristics of a Pilot-scale Integrated PN-ANAMMOX Reactor	ZHOU Zheng, WANG Fan, LIN Xing, <i>et al.</i>	(1301)
Effect of NO <sub>x</sub> <sup>-</sup> -N Recycling Ratio on Denitrifying Phosphorus Removal Efficiency in the ABR-MBR Combined Process	LÜ Liang, YOU Wen, ZHANG Min, <i>et al.</i>	(1309)
Effects of Magnetic Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> Nanoparticles on the Characteristics of Anaerobic Granular Sludge and Its Interior Microbial Community	SU Cheng-yuan, ZHENG Peng, LU Yu-xiang, <i>et al.</i>	(1316)
Characterization Composition of Soluble Microbial Products in an Aerobic Granular Sludge System	YANG Dan, LIU Dong-fang, DU Li-qiong, <i>et al.</i>	(1325)
Influence of Ciprofloxacin on the Microbial Community and Antibiotics Resistance Genes in a Membrane Bioreactor	DAI Qi, LIU Rui, LIANG Yu-ting, <i>et al.</i>	(1333)
Analysis of Low C/N Wastewater Treatment and Structure by the CEM-UF Combined Membrane-Nitrification/Denitrification System	XING Jin-liang, ZHANG Yan, CHEN Chang-ming, <i>et al.</i>	(1342)
Effects of Phosphorus on the Activity and Bacterial Community in Mixotrophic Denitrification Sludge	WANG Pei-qi, ZHOU Wei-li, HE Sheng-bing, <i>et al.</i>	(1350)
Acclimatization and Community Structure Analysis of the Microbial Consortium in Nitrate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation	XUE Song, ZHANG Meng-zhu, LI Lin, <i>et al.</i>	(1357)
Diffusion of Microorganism and Main Pathogenic Bacteria During Municipal Treated Wastewater Discharged into Sea	XU Ai-ling, NIU Cheng-jie, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i>	(1365)
Oxytetracycline Wastewater Treatment in Microbial Fuel Cells and the Analysis of Microbial Communities	YAN Wei-fu, XIAO Yong, WANG Shu-hua, <i>et al.</i>	(1379)
Spatial and Temporal Variability of Soil C-to-N Ratio of Yugan County and Its Influencing Factors in the Past 30 Years	JIANG Ye-feng, ZHONG Shan, LI Jie, <i>et al.</i>	(1386)
Spatial Heterogeneity of Soil Carbon and its Fractions in the Wolfberry Field of Zhongning County	WANG You-qi, ZHAO Yun-peng, BAI Yi-ru, <i>et al.</i>	(1396)
Response of Soil Enzyme Activities and Their Relationships with Physicochemical Properties to Different Aged Coastal Reclamation Areas, Eastern China	XIE Xue-feng, PU Li-jie, WANG Qi-qi, <i>et al.</i>	(1404)
Distribution, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils of the Central and Eastern Areas of the Qinghai-Tibetan Plateau	ZHOU Wen-wen, LI Jun, HU Jian, <i>et al.</i>	(1413)
Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Area Based on UNMIX Model	LU Xin, HU Wen-you, HUANG Biao, <i>et al.</i>	(1421)
Stabilization Effects of Fe-Mn Binary Oxide on Arsenic and Heavy Metal Co-contaminated Soils Under Different pH Conditions	FEI Yang, YAN Xiu-lan, LI Yong-hua	(1430)
Concentration and Distribution of Novel Brominated Flame Retardants in Human Serum from Three Chinese Cities	WANG Qing-hua, YUAN Hao-dong, JIN Jun, <i>et al.</i>	(1438)