

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第4期

Vol.39 No.4

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

京津冀地区钢铁行业污染物排放清单及对PM _{2.5} 影响	段文娇, 郎建全, 程水源, 贾佳, 王晓琦 (1445)
京津冀内陆平原地区PM _{2.5} 浓度时空变化定量模拟	郝静, 孙成, 郭兴宇, 王卫, 刘方田, 党海燕 (1455)
成都市冬季相对湿度对颗粒物浓度和大气能见度的影响	刘凡, 谭钦文, 江霞, 蒋文举, 宋丹林 (1466)
华山地区PM _{2.5} 中无机离子垂直分布特征	曹聪, 王格慧, 吴灿, 李建军, 刘浪, 李瑾, 余兴 (1473)
烟花爆竹集中燃放的大气细颗粒物(PM _{2.5})成分图谱	谢瑞加, 侯红霞, 陈永山 (1484)
长三角地区中小燃煤锅炉PM _{2.5} 成分谱特征	徐健, 黄成, 李莉, 陈勇航, 楼晟荣, 乔利平, 王鸿宇 (1493)
民用燃煤排放分级颗粒物中重金属排放因子	严沁, 孔少飞, 刘海彪, 王伟, 吴剑, 郑明明, 郑淑容, 杨国威, 吴方琪 (1502)
冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的分布特征及影响因素	张帅, 石金辉, 姚小红, 高会旺 (1512)
青岛大气降水中微量元素的浓度及溶解度	李茜, 石金辉, 李鹏志, 姚小红, 高会旺 (1520)
辽东湾大气中多环芳烃的含量组成及气粒分配	张玉凤, 宋永刚, 田金, 赵海勃, 杨爽, 吴金浩 (1527)
典型地区大气新型卤代阻燃剂污染特征、来源分析及人体暴露	李琦路, 杨孔, 李军, 张干 (1537)
苏州工业园区室内外颗粒物中多溴联苯醚污染特征及人体暴露水平	王俊霞, 顾海东, 张占恩, 钱飞跃 (1544)
上海市大气污染对感冒疾病相对危险度的影响	杨丝絮, 马玉霞, 周建丁, 周骥 (1552)
城镇化河流溶解性有机质的荧光特性与水质相关性:以宁波市北仑区芦江为例	曹昌丽, 梁梦琦, 何桂英, 纵亚男, 唐剑锋 (1560)
艾比湖区域景观格局与河流水质关系探讨	曹灿, 张飞, 阿依尼格·亚力坤, 朱世丹, 郭苗, 阿丽米热·塔力甫江, Kung Hsiangte (1568)
三峡澎溪河水华期间水体CH ₄ 浓度及其通量变化特征初探	秦宇, 张渝阳, 李哲, 马健荣 (1578)
漓江段地表水体旱季硝酸盐动态变化特征及其来源	苗迎, 章程, 肖琼, 赵海娟, 李成习 (1589)
柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价	张清华, 韦永著, 曹建华, 于爽 (1598)
黄柏河流域梯级水库沉积物磷形态特征及磷释放通量分析	刘佳, 雷丹, 李琼, 王亮, 张平, 肖尚斌 (1608)
白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估	高秋生, 焦立新, 杨柳, 田自强, 杨苏文, 安月霞, 贾海斌, 崔志丹 (1616)
典型有机氯农药在珠三角地区多介质环境中的归趋模拟	高梓闻, 徐月, 亦如瀚 (1628)
河道水旁路处理中试工艺中PPCPs的去除效果及机制	李力, 朱楦, 白瑶, 赵健, 曹之淇, 郭泓利, 李凌云, 左剑思 (1637)
蔡普生在氯消毒过程中的去除、转化与风险评价	樊鑫鑫, 杜尔登, 李佳琦, 赵丽丽, 王聿琳, 彭明国 (1645)
真空紫外/氯处理饮用水典型致嗅物质	孙昕, 张焱, 史路肖, 陈笑涵, 唐晓 (1654)
热活化过硫酸盐降解三氯生	蒋梦迪, 张清越, 季跃飞, 陆鸢鹤 (1661)
水体模拟颗粒物对四环素的吸附特性及基本规律	徐龙凤, 魏群山, 吕强, 唐立朋, 刘亚男, 柳建设 (1668)
海水优化ANAMMOX包埋固定化及其处理含海水污水的脱氮性能	单晓静, 于德爽, 李津, 陈光辉, 冯莉, 吕廷廷, 邵青 (1677)
外源甜菜碱投加增强高盐废水厌氧氨氧化脱氮性能	于德爽, 吴国栋, 李津, 周同, 王晓静 (1688)
硝化污泥富集及其强化高氨氮冲击的中试研究	盛晓琳, 崔灿灿, 王家德, 刘锐, 徐峰, 陈吕军 (1697)
分段进水对改良A ² /O-BAF双污泥系统反硝化除磷脱氮的影响	南彦斌, 彭永臻, 曾立云, 赵智超, 刘宏, 李慧, 陈永志 (1704)
不同温度下应用比值控制实现连续流好氧颗粒污泥短程硝化	梁东博, 卞伟, 阚睿哲, 王文啸, 赵青, 孙艺齐, 李军 (1713)
智能化曝气控制A/O工艺活性污泥特性演化对内源反硝化脱氮的作用机制	徐旻昶, 胡湛波, 张穗生, 李昊航 (1720)
温度对一体式厌氧流化床膜生物反应器运行效能及微生物群落结构的影响	李玥, 胡奇, 高文 (1731)
污泥臭原位置量工艺中抗生素的去除	汪鲁, 黄伟伟, 李彦刚, 强志民 (1739)
零价铁对污泥厌氧消化过程中四环素抗性基因水平转移的作用影响	杨帆, 徐雯丽, 钱雅洁, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (1748)
环境因子对全自养脱氮颗粒污泥功能菌协同效应的影响	陈希, 钱飞跃, 王建芳, 高军军, 沈耀良, 贾珣 (1756)
后置固相反硝化滤池工艺沿程微生物特性	张千, 吉芳英, 徐璇 (1763)
复合菌株YH01+YH02强化SBR好氧反硝化脱氮及菌群结构分析	陈海升, 曹刚, 张迪, 黄郑郑, 莫测辉 (1773)
氮磷失衡下膨胀污泥性能及膨胀菌群落结构变化	贺雪濛, 丁丽丽, 张璐璐, 顾卓江, 任洪强 (1782)
1株铜绿假单胞菌对砷的降解特性及代谢途径	李想, 张雪英, 周俊, 宋军, 王建刚, 雍晓雨, 贾红华 (1794)
铜尾矿库坝面土壤微生物群落动态的驱动因子	李磊, 景炬辉, 刘晋仙, 柴宝峰 (1804)
垦殖对桂林会仙喀斯特湿地土壤养分与微生物活性的影响	黄科朝, 沈育伊, 徐广平, 黄玉清, 张德楠, 孙英杰, 李艳琼, 何文, 周龙武 (1813)
黄土丘陵区退耕还林还草对土壤细菌群落结构的影响	陈孟立, 曾全超, 黄懿梅, 倪银霞 (1824)
河岸带表层土壤的铁氨氧化(Feammox)脱氮机制的探究	丁帮琛, 李正魁, 朱鸿杰, 陈湜, 覃云斌, 杨建华, 胡优优 (1833)
藏猪扰动作用下的高寒草甸土壤退化特征及微生物群落结构变化	展鹏飞, 肖德荣, 闫鹏飞, 刘振亚, 马金成, 陈志明, 格茸, 田伟, 王行 (1840)
深圳湾典型红树植物根表铁膜及其重金属富集特征	沈小雪, 李瑞利, 柴民伟, 邱国玉 (1851)
香港周边海域野生鱼体内DDTs和PCBs的含量分布和食用风险评估	苏杨, 鲍恋君, 曾永平 (1861)
偏远高山湿地土壤中PAHs污染特征:以神农架大九湖为例	胡天鹏, 邢新丽, 柯艳萍, 毛瑶, 黎荧, 郑煌, 喻月, 张家泉, 祁士华 (1872)
西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征	孙涛, 马明, 王永敏, 安思危, 王定勇 (1880)
广西西江流域土壤镉含量特征及风险评估	宋波, 杨子杰, 张云霞, 王佛鹏, 周浪, 李黎, 钟雪梅 (1888)
长期施肥对旱地红壤及作物中砷累积的影响	张蓉, 余光辉, 李亚青 (1901)
三元土壤调理剂对田间水稻镉累积转运的影响	辜娇峰, 周航, 贾润语, 王倩倩, 李虹呈, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (1910)
稻田土壤性质与水稻镉含量的定量关系	王梦梦, 何梦媛, 苏德纯 (1918)
钙基膨润土辅助对堆肥及土壤Cu、Zn形态转化和白菜吸收的影响	赵军超, 王权, 任秀娜, 李荣华, Mukesh Kumar Awasthi, Altaf Hussain Lahori, 张增强 (1926)
外源碳和氮输入对降水变化下土壤呼吸的短期影响	贺云龙, 齐玉春, 彭琴, 董云社, 郭树芳, 闫钟清, 李兆林, 王丽芹 (1934)
模拟降水量减少对大豆-冬小麦轮作农田土壤呼吸的影响	王朝辉, 陈书涛, 孙鹭, 胡正华 (1943)
紫色土丘陵区农田源头沟渠一氧化氮排放的季节差异及影响因素	田琳琳, 任光前, 朱波 (1952)
季节非对称升温对喀斯特土壤CO ₂ 释放的影响	唐国勇, 张春华, 刘方炎, 李昆, 马艳 (1962)
《环境科学》征订启事 (1472) 《环境科学》征稿简则 (1511) 信息 (1755, 1839, 1925)	

污泥臭氧原位减量工艺中抗生素的去除

汪鲁^{1,2}, 贲伟伟¹, 李彦刚¹, 强志民^{1*}

(1. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085; 2. 中国水产科学研究院黄海水产研究所海洋渔业环境与生物修复实验室, 青岛 266071)

摘要: 建立了两套小试规模的序批式反应器, 一套作为污泥臭氧原位减量系统, 另一套作为控制系统. 通过两系统的长期运行(90 d)考察了污泥臭氧原位减量工艺对 9 种典型抗生素(四环素、土霉素、强力霉素、诺氟沙星、氧氟沙星、环丙沙星、洛美沙星、恩诺沙星和阿奇霉素)的去除效果. 结果表明, 进水中目标抗生素的存在(9 种抗生素各 $100 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)并未对活性污泥去除 COD、总氮、氨氮和总磷的效果产生显著影响. 污泥臭氧原位减量系统出水中目标抗生素浓度在运行期间保持相对稳定, 且与控制系统接近; 但污泥中目标抗生素浓度则显著低于控制系统. 质量衡算表明目标抗生素在两系统内的输入和输出逐渐达到平衡, 臭氧降解和剩余污泥排放分别为减量和控制系统中目标抗生素的主要去除途径. 污泥臭氧处理单元可以降解减量系统入水中 83% 的目标抗生素, 而控制系统入水中 82% 的目标抗生素则随剩余污泥排放. 因此, 污泥臭氧原位减量工艺可以明显削减活性污泥系统中抗生素的排放, 具有重要的实际意义.

关键词: 活性污泥工艺; 臭氧; 污泥原位减量; 磷回收; 抗生素

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)04-1739-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201708229

Removal of Antibiotics During In-situ Sludge Ozone-reduction Process

WANG Lu^{1,2}, BEN Wei-wei¹, LI Yan-gang¹, QIANG Zhi-min^{1*}

(1. Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 2. Marine Fishery Environment and Bioremediation Laboratory, Yellow Sea Fisheries Research Institute, Chinese Academy of Fishery Sciences, Qingdao 266071, China)

Abstract: Two sequencing batch reactors were established at bench-scale, with one used as an in-situ sludge ozone-reduction system and the other as a control system. Both systems were continuously operated for 90 days to comparatively investigate the elimination of nine typical antibiotics (i. e., tetracycline, oxytetracycline, doxytetracycline, norfloxacin, ofloxacin, ciprofloxacin, lomefloxacin, enrofloxacin, and azithromycin) during the in-situ sludge ozone-reduction process. Results indicated that the presence of target antibiotics in the influent ($100 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ each) had an insignificant influence on the removal of COD, total nitrogen, ammonia, and total phosphorus by the activated sludge. The antibiotic concentrations in the effluent of the reduction system remained fairly stable over the entire operation period, and were similar to those in the effluent of the control system; however, the antibiotic concentrations in the sludge of the reduction system were obviously lower than those in the control system sludge. Mass balance calculations revealed that the input and output of target antibiotics gradually approached balance in both the systems. Ozone degradation and excess sludge discharge were the main pathways for target antibiotic removal in the reduction and the control systems, respectively. The influent antibiotics could be degraded by 83% in the sludge ozonation module of the reduction system, while 82% of the influent antibiotics were discharged with excess sludge in the control system. Therefore, the in-situ sludge ozone-reduction process could greatly reduce the release of antibiotics from the activated sludge system, which is of great importance in practice.

Key words: activated sludge process; ozone; in-situ sludge reduction; phosphorus recovery; antibiotics

环境中残留的抗生素会对微生物产生选择性压力, 促进抗药菌和抗药基因的形成和传播, 进而威胁生态安全和人类健康^[1]. 污水是抗生素向环境释放的重要媒介, 污水处理厂成为污水中抗生素进入环境的关键屏障. 然而, 在常用的活性污泥处理工艺中, 很多种类的抗生素难以通过生物降解得到有效去除, 会有相当部分保留在出水中以及转移到污泥中^[2,3], 并随之进入水体、土壤等环境中^[4,5]. 目前, 出水中抗生素的残留已经受到了广泛关注, 国内外学者深入研究了氧化/高级氧化(如氯氧化、Fenton/光 Fenton、光解、电化学氧化)、吸附(如颗

粒活性炭)、膜处理(如反渗透膜、离子交换)等污水深度处理技术对抗生素的去除效果^[6,7].

与出水相比, 污泥中抗生素处理更加困难. 有研究者对常见污泥处理过程中(脱水、调理、厌氧/好氧消化和堆肥等)抗生素的迁移转化进行了探究^[8~10]. 由于许多种类的抗生素可生物降解性较差, 因此以生物处理为主的污泥处理工艺对抗生素

收稿日期: 2017-08-28; 修订日期: 2017-09-22

基金项目: 国家自然科学基金项目(21590814, 51525806)

作者简介: 汪鲁(1986~), 男, 博士, 主要研究方向为污水生物处理及污泥减量, E-mail: wangluling123@163.com

* 通信作者, E-mail: qiangz@rcees.ac.cn

的去除能力往往有限^[11,12]。此外,剩余污泥产量巨大且逐年上升,传统污泥处理技术正面临着严峻的挑战,越来越难以满足不断提高的污水处理标准及污泥处置要求。因此,污泥原位减量引起了人们的关注,国内外研究者基于不同机制(溶解-隐性生长、解偶联代谢、维持代谢和生物捕食等)对该技术进行了探索^[13,14]。其中,污泥臭氧原位减量是一项具有应用前景的污泥减量工艺。臭氧具有良好的溶胞效果,将臭氧处理后的污泥回流至生物处理系统,微生物可以利用溶胞过程中释放出来的内源基质进行隐性生长,从而可以实现剩余污泥的大幅减量^[15,16]。臭氧可以直接攻击污染物分子结构中电子云密度较大的部位(碳碳双键、苯环、胺基等),也可以分解产生 $\cdot\text{OH}$ 而发挥间接氧化作用,因而对水中很多种类的抗生素具有较好的去除效果^[17~21]。对于污泥中的抗生素而言,也有少量研究表明臭氧处理是一种有效的去除手段^[22],但是相关研究仍较为缺乏,针对污泥臭氧原位减量工艺中抗生素去除规律的研究更是十分有限。

因此,本研究选取在污水处理厂剩余污泥中检出率及浓度较高的9种抗生素作为目标物^[23,24],其中包括3种四环素类[强力霉素(DOX)、土霉素(OTC)、四环素(TCN)]、5种氟喹诺酮类[环丙沙星(CIP)、恩诺沙星(ENR)、洛美沙星(LOM)、诺氟沙星(NOR)、氧氟沙星(OFL)]和1种大环内酯类[阿奇霉素(AZN)],构建了两套小试规模的序批式反应器(SBR)。一套作为控制系统,另一套作为污泥臭氧原位减量系统(以下简称为减量系统),考察了它们的污水处理性能及对目标抗生素的去除效果,并对抗生素的输入输出进行了质量衡算,以期为污泥中

抗生素污染的控制提供理论和技术支持。

1 材料与方法

1.1 化学药品

AZN、DOX、LOM、OTC 和 TCN 标准品及四环素类抗生素的内标物地美环素(DMC)购自 Dr Ehrenstorfer GmbH(德国); NOR、OFL、CIP 及 ENR 的标准品购自 Sigma-Aldrich(美国); AZN 的内标物 AZN-D₃ 来自 Toronto research Chemicals Inc.(加拿大); 氟喹诺酮类抗生素的内标物 OFL-D₃ 来自 Witega(德国)。目标抗生素及其内标标准品的纯度均大于 98%。色谱纯甲醇和乙腈购自 Fisher Scientific(比利时),甲酸(纯度>99%)来自 Di kma Technologies, Inc.(美国)。葡萄糖、蛋白胨、NH₄Cl、KH₂PO₄、NaHCO₃ 等分析纯药品均来自国药集团化学试剂有限公司(北京)。目标抗生素的单标储备液均配制在 Milli-Q 水(Advantage A10, Millipore, 美国)中,其中 AZN 需要加入少量甲醇助溶, CIP、ENR、NOR 和 OFL 则需要加入少量 NaOH ($2\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$) 助溶。内标物的单标储备液(AZN-D₃: $100\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; DMC: $1\,000\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; OFL-D₃: $1\,000\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 配制在甲醇里。

1.2 实验系统组成

本研究构建了两套小试规模的活性污泥系统(图1)。一套作为控制系统;另一套作为减量系统,由生物反应器、污泥臭氧处理单元和磷回收单元组成。两套系统的生物反应器由有机玻璃制成,有效容积为 15 L,机械搅拌,以空气泵(Hailea, 广东)作为气源,采用砂芯曝气方式为活性污泥供氧。此外,生物反应器内设置温控装置(Jebo, 广东),保

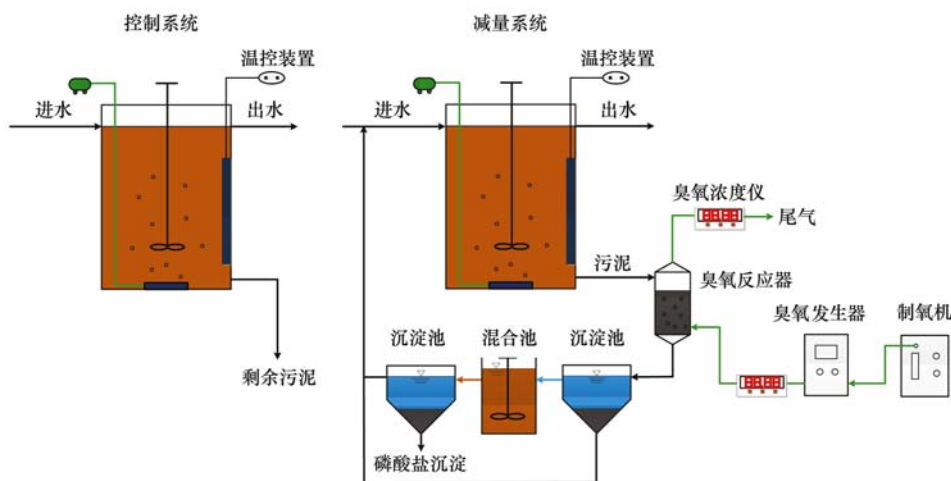


图1 控制和减量系统示意

Fig. 1 Schematic diagram of the control and reduction systems

持反应器内温度恒定(22℃). 污泥臭氧处理单元由臭氧发生器、臭氧反应器、臭氧浓度检测装置构成. 臭氧发生器(同林, 北京)以纯氧作为气源. 臭氧反应器为有效容积为 1 L 的玻璃反应器, 污泥序批式加入, 臭氧气体则连续通入. 进气和出气中臭氧浓度均通过臭氧浓度检测仪(Ideal, 淄博)实时监测. 磷回收单元主要由沉淀池和混合池构成, 选用 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 作为除磷剂, 钙磷摩尔比控制在 10 左右.

控制和减量系统均采用人工模拟污水作为进水, 由葡萄糖、蛋白胨、 NH_4Cl 、 KH_2PO_4 、 NaHCO_3 以及一些微量元素配制而成, 其基本水质指标为: 化学需氧量(COD) = $(407 \pm 13) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 总氮(TN) = $(41.0 \pm 1.4) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 氨氮($\text{NH}_4^+ - \text{N}$) = $(31.2 \pm 0.9) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 总磷(TP) = $(4.99 \pm 0.15) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 碱度(以 NaHCO_3 计) = $150 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 以某小试规模 SBR^[25] 的剩余污泥作为种泥, 利用人工模拟污水对其进行培养和驯化, 系统对各项水质指标的去除性能达到稳定状态后, 进入正式实验阶段.

1.3 实验系统运行

控制和减量系统各自运行 90 d, 可以分为两个

阶段(表 1). 阶段 I 为 1 ~ 30 d, 两系统的生物反应器序批式运行, 每天两个周期, 每个周期包括进水、厌氧 2 h、好氧 5 h、缺氧 2 h、沉淀 2 h、排水、静置 1 h. 减量系统的污泥臭氧处理和磷回收单元不启动. 每个周期排水结束后, 从两系统的生物反应器中各排出 170 mL 污泥. 该阶段内两系统的进水中不含目标抗生素. 阶段 II 为 31 ~ 90 d, 控制系统按照与阶段 I 相同的方式运行, 减量系统的污泥臭氧处理和磷回收单元启动. 每个周期排水结束后, 从减量系统的生物反应器中抽出 510 mL 污泥用于臭氧处理, 臭氧投加量(以 O_3/MLSS 计)控制在 $100 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 左右, 污泥溶解率为 $31.3\% \pm 3.3\%$. 臭氧处理后的污泥进行固液分离, 上清液经过化学除磷后与污泥固相一并回流至减量系统的生物反应器中, 系统无剩余污泥排放. 在阶段 II 内, 向两系统的进水中投加目标抗生素储备液, 使得进水中各目标抗生素的浓度保持在 $100 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$. 控制和减量系统运行期间, 每 10 个周期测定一次进出水常规水质指标、活性污泥参数、出水及臭氧处理前后污泥中目标抗生素的浓度.

表 1 控制和减量系统运行参数
Table 1 Operation parameters of the control and reduction systems

参数	控制系统		减量系统	
	阶段 I (1 ~ 30 d)	阶段 II (31 ~ 90 d)	阶段 I (1 ~ 30 d)	阶段 II (31 ~ 90 d)
进水体积/ $\text{L} \cdot \text{cycle}^{-1}$	10	10	10	10
HRT/h	11	11	11	11
SRT/d	15	15	15	—
每种抗生素进水浓度/ $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$	0	100	0	100
臭氧投加量/ $\text{mg} \cdot \text{g}^{-1}$	0	0	0	100
污泥混合液悬浮固体(MLSS)/ $\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$	2.98 ± 0.09	3.00 ± 0.08	3.07 ± 0.06	3.06 ± 0.08

1.4 分析方法

MLSS 浓度通过重量法测定. 按照 Hach 水质分析方法, 采用 DRB200 消解仪和 DR6000 紫外-可见分光光度计(Hach, 上海)对进出水 COD(方法 8000)、TN(方法 10071 和 10072)、 $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ (方法 10023 和 10031)及 TP(方法 10127 和 8190)进行测定.

出水样品经 $0.45 \mu\text{m}$ 玻璃纤维滤膜过滤后, 加入一定量的内标储备液, 然后通过固相萃取(SPE)对样品进行富集(10 倍)和净化. SPE 采用 Oasis HLB(500 mg/6 mL)萃取柱(Waters, 美国), 以甲醇作为洗脱剂, 以体积比 40% 的甲醇水溶液作为复溶剂. 污泥样品在 $7\,000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 下离心 15 min 后, 对污泥固相依次进行冷冻干燥、研磨和过筛, 然后向干污泥中投加一定量的内标储备液. 以甲醇和 0.2

$\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的柠檬酸溶液(1:1, 体积比)作为萃取剂, 通过超声溶解萃取(USE)将污泥中的目标抗生素提取出来, 而后进行 SPE. 利用超高效液相色谱-质谱联用(UPLC-MS/MS)平台对预处理后样品中的目标抗生素进行测定. 目标抗生素的色谱分离通过安捷伦 1290 UPLC 系统(美国)完成, 色谱柱采用安捷伦 Zorbax SB-C18($100 \text{ mm} \times 2.1 \text{ mm}$, $1.8 \mu\text{m}$), 柱温 30°C , 进样体积 $10 \mu\text{L}$. 采用体积比 0.2% 的甲酸水溶液(A)和纯乙腈(B)作为流动相, 按以下程序梯度(min, B%)混合:(0, 5)、(1, 5)、(2, 13)、(5, 15)、(9, 20)、(12, 30)、(13, 50)、(14, 100)、(15, 100)、(15.1, 5)、(17, 5). 流动相流速为 $0.3 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$. 采用配备电喷雾离子源的安捷伦 6420 三重四级杆 LC/MS 系统, 在正离子多反应监测模式下对目标抗生素进行定性和定量. 污水和污

泥预处理的具体程序及相关质谱参数参见文献[23].

2 结果与讨论

2.1 常规污染物处理效果

图2为控制和减量系统进出水中COD、TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和TP的浓度. 在阶段I内, 控制系统对COD、TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和TP的去除率分别为 $90.1\% \pm 0.6\%$ 、 $76.0\% \pm 3.6\%$ 、 $85.8\% \pm 2.7\%$ 和 $82.6\% \pm 1.9\%$; 减量系统对它们的去除率分别为 $89.9\% \pm 1.2\%$ 、 $75.1\% \pm 3.6\%$ 、 $86.6\% \pm 2.9\%$ 和 $82.4\% \pm 2.7\%$. 两系统有机物去除及脱氮除磷性能保持稳定而且去除效果接近. 在阶段II内, 控制系统对COD、TN、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 和TP的去除率分别为 $90.1\% \pm 1.4\%$ 、 $74.8\% \pm 3.1\%$ 、 $87.7\% \pm 3.1\%$ 和 $81.9\% \pm 2.2\%$, 与阶段I内的去除率比较接近, 表明进水中目标抗生素(各 $100 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)的存在并未对活性污泥系统的常规污染物去除性能造成显著影响, 污泥活性未受到明显抑制. Wang等^[25]和Li等^[26]的批次实验结果也表明进水中氟喹诺酮类、四环素类及大环内酯类抗生素(各 $100 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)的存在未对活性污泥的有机物降解能力产生不利影响. 这可能是由于: ① 活性污泥中微生物种类复杂, 抗生素的目标菌在其中所占比例较小^[27]; ② 由菌胶团构成的污泥絮体对内部微生物具有一定的保护作用, 降低了污泥微生物与抗生素接触的概率^[28].

阶段II内减量系统对COD、TN和 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 的去除率分别为 $90.2\% \pm 1.4\%$ 、 $75.3\% \pm 2.5\%$ 和 $88.1\% \pm 2.4\%$, 与控制系统相近, 表明臭氧处理后污泥回流及剩余污泥零排放并未对SBR的COD和N的去除性能造成影响. 然而, 减量系统的TP去除效果明显下降, 最后保持在 $58.7\% \pm 1.8\%$. 控制系统的除磷功能主要通过排放剩余污泥实现, 而减量系统在阶段II内无剩余污泥排放, 因此磷回收单元成为减量系统除磷的主要途径. 然而, 臭氧处理后污泥上清液除磷并不能完全弥补剩余污泥零排放所导致的除磷效能下降, 因此需要与其他除磷方式(如厌氧段污泥上清液磷回收)结合, 进一步提高除磷效率.

2.2 出水中目标抗生素浓度

在阶段I内, 控制和减量系统进水中均未投加目标抗生素, 因此两系统出水中均未检出目标抗生素. 图3为阶段II内两系统出水中目标抗生素浓度

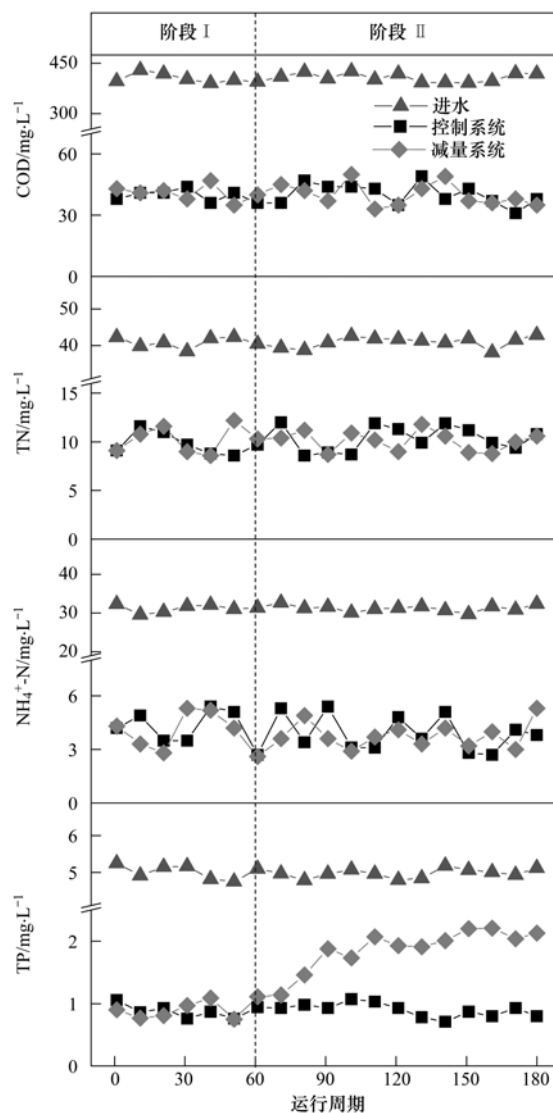


图2 控制和减量系统COD、N和P的去除

Fig. 2 Removal of COD, N, and P in the control and reduction systems

的变化. 随着运行周期的延长, 控制系统出水中目标抗生素浓度在一定范围内波动, 表明活性污泥对进水中目标抗生素的去除能力保持相对稳定. 以往研究表明, 活性污泥对目标抗生素具有很强的吸附能力, 吸附是目标抗生素在活性污泥工艺中的主要去除途径^[29-31]. 前期实验结果表明, 目标抗生素在污泥上的吸附6 h内可以达到平衡. 控制和减量系统的HRT均为11 h(其中完全混合时间为9 h), 因此在每个运行周期结束后, 可认为目标抗生素在生物反应器内已经达到了吸附平衡. 减量系统出水中目标抗生素浓度也在一定范围内波动, 且与控制系统相差不大, 可见减量系统对进水中目标抗生素的去除能力与控制系统无明显差距. 这主要是因为臭氧处理后污泥回流并未对生物反应器内污泥特征

造成显著影响^[16,32]，活性污泥保持了相对稳定的目标抗生素吸附能力。此外，污泥中的目标抗生素可以在臭氧处理过程中得到有效去除(去除率 72% ~ 97%)，而未被臭氧降解的抗生素主要以吸附态形式存在，因此污泥回流不会导致抗生素污泥负荷的明显增加。本研究中目标抗生素出水浓度的变化规律与 Nie 等^[33]报道的 4-壬基酚出水浓度的变化规

律类似，这可能是因为目标抗生素与 4-壬基酚在活性污泥中具有相似的行为(吸附能力强、生物降解性差)^[25,34,35]，而且都容易被臭氧降解^[36]。由表 2 可知，目标抗生素在控制和减量系统中的去除率十分接近；两系统对四环素类抗生素及 AZN 的去除率均在 90% 以上，而对氟喹诺酮类抗生素的去除效果相对较低(66% ~ 87%)。

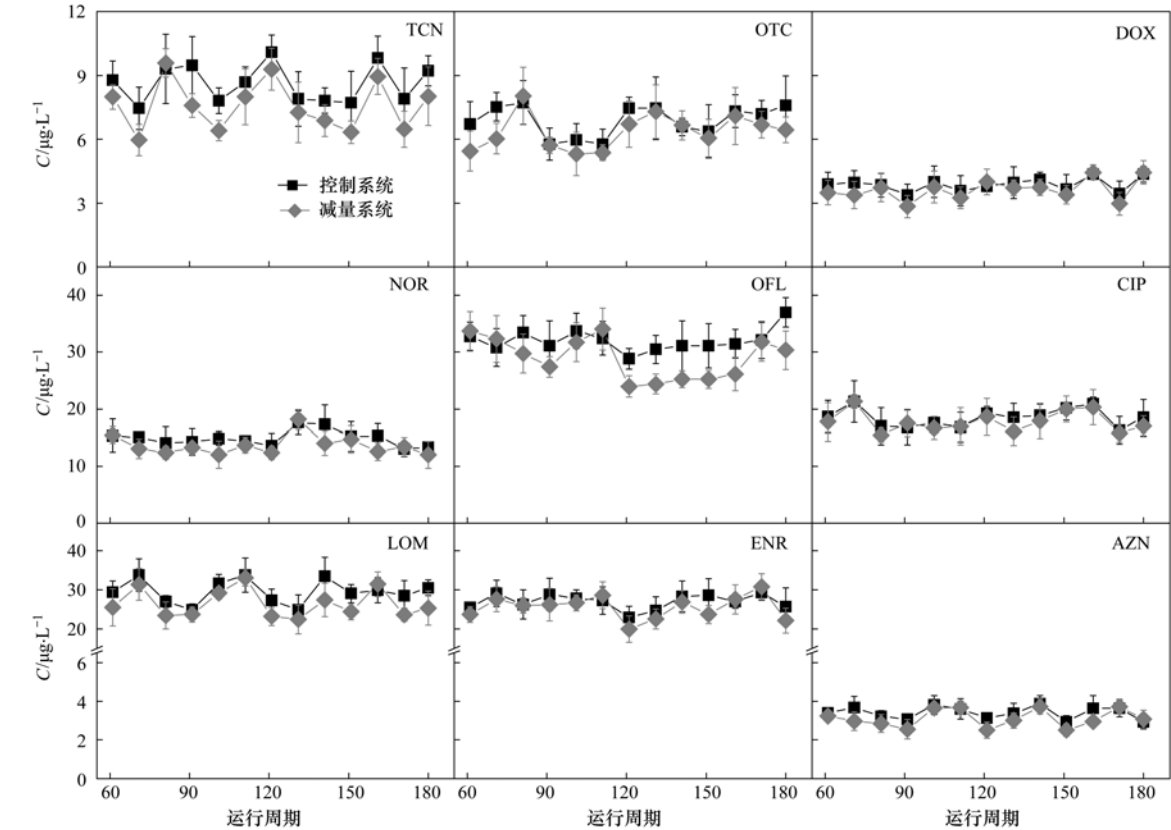


图 3 控制和污泥减量系统出水中目标抗生素浓度
Fig. 3 Target antibiotic concentrations in the effluent of the control and reduction systems

表 2 阶段 II 内控制和减量系统目标抗生素的去除率/%

Table 2 Removal efficiencies of the target antibiotics between the control and reduction systems in phase II/%									
抗生素	TCN	OTC	DOX	NOR	OFL	CIP	LOM	ENR	AZN
控制系统	90 ~ 93	92 ~ 94	96 ~ 97	82 ~ 87	63 ~ 71	79 ~ 84	66 ~ 75	71 ~ 77	96 ~ 97
减量系统	90 ~ 94	92 ~ 95	96 ~ 97	82 ~ 88	66 ~ 67	79 ~ 85	67 ~ 78	69 ~ 80	96 ~ 98

2.3 污泥中目标抗生素浓度

在阶段 I 内，控制和减量系统污泥中未检出目标抗生素。图 4 为阶段 II 内控制和减量系统污泥中目标抗生素浓度的变化。随着运行周期的延长，两系统污泥中目标抗生素浓度先快速上升，而后上升趋势减缓；减量系统污泥中目标抗生素浓度明显低于控制系统，而且可以较快达到相对稳定状态，表明污泥臭氧原位减量工艺可以显著降低活性污泥中目标抗生素的含量。对于常规的活性污泥工艺而

言，目标抗生素主要通过出水和剩余污泥释放到环境中；污泥臭氧原位减量工艺则可以在不增加目标抗生素出水释放量的同时，通过剩余污泥的零排放大幅减少活性污泥系统的抗生素排放总量。

2.4 目标抗生素质量衡算

以往研究表明在活性污泥工艺中，四环素类抗生素(TCN、OTC、DOX)和 AZN 难以进行生物降解，而氟喹诺酮类抗生素(NOR、OFL、CIP、LOM、ENR)可以发生缓慢的生物降解(半衰期均大于 100

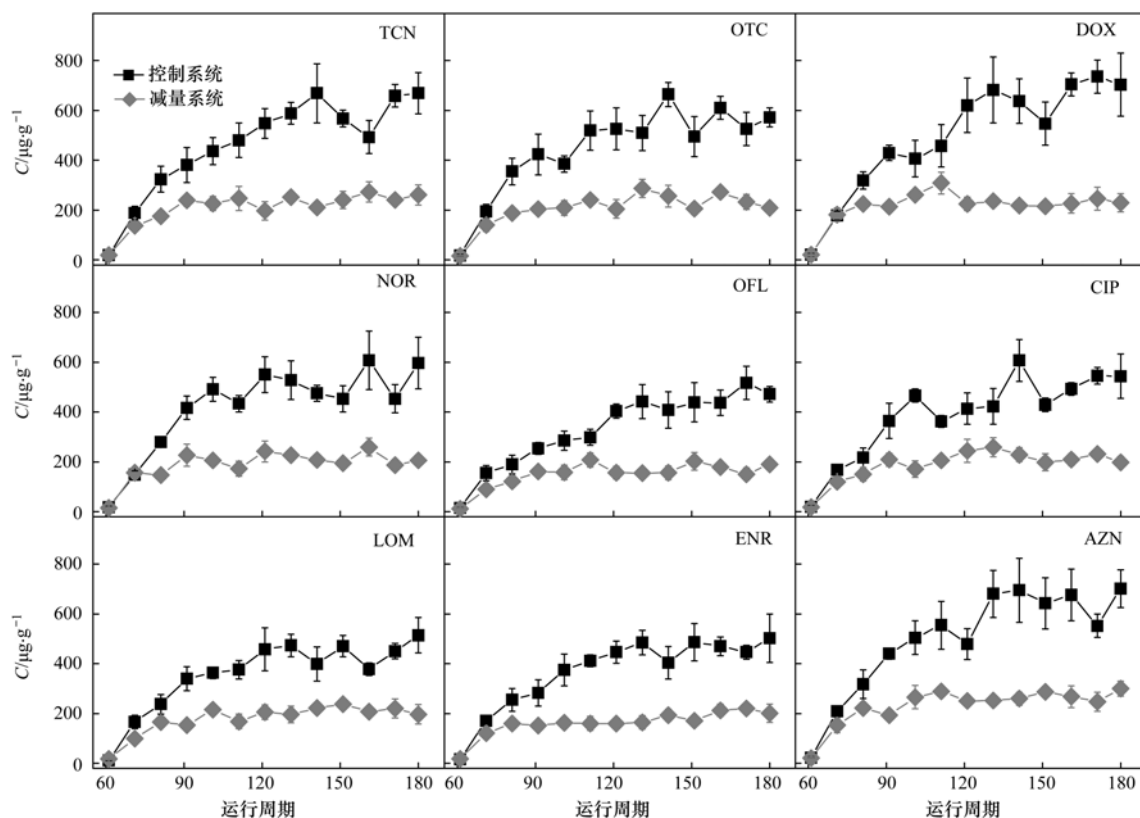


图4 控制和污泥减量系统污泥中目标抗生素浓度

Fig. 4 Target antibiotic concentrations in the sludge of the control and reduction systems

h)^[25]. 然而, 控制和减量系统的 HRT(11 h) 远小于氟喹诺酮类抗生素在活性污泥工艺中生物降解的半衰期, 这表明它们在两系统中的生物降解可以忽略. 因此, 在质量衡算中只考虑目标抗生素在污泥上的吸附及污泥臭氧处理过程中的降解. 控制系统的目标抗生素输出量为出水排放量和剩余污泥排放量之和; 由于减量系统不排放剩余污泥且臭氧处理后的污泥完全回流到生物反应器内, 因此其目标抗生素输出量可看作出水排放量和臭氧降解量之和. 输入量和输出量之差为生物反应器内目标抗生素的累积量.

图5为阶段Ⅱ内两系统中目标抗生素输入和输出量的变化. 可以看出, 两系统中目标抗生素的出水排放量保持相对稳定. 然而, 目标抗生素的剩余污泥排放量(控制系统)和臭氧降解量(减量系统)则先增加而后保持相对稳定. 这是因为, 在阶段Ⅱ初期, 目标抗生素在生物反应器内逐渐累积, 导致它们在污泥中的浓度逐渐上升; 运行一段时间后, 污泥中目标抗生素达到一定浓度, 使得输入和输出相对平衡, 生物反应器不再累积目标抗生素. 此外, 减量系统每个周期用于臭氧处理的污泥量是控制系统剩余污泥量的3倍, 而且污泥臭氧处理过程

中目标抗生素的去除率均超过72%, 这使得减量系统中目标抗生素可以较快达到输入输出平衡. 由图5还可以看出, 输入控制系统的目标抗生素主要随剩余污泥从系统中排出(68%~99%), 与污水处理厂现场调查的结论吻合^[11,24]; 而输入减量系统的目标抗生素主要被臭氧降解(65%~98%). 对9种目标抗生素的输入和输出进行总体分析, 结果表明: 控制系统中抗生素的剩余污泥排放量占其输入量的82%, 减量系统中抗生素的臭氧降解量占其输入量的83%.

3 结论

(1) 进水中目标抗生素的存在(各 $100 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$) 未对活性污泥系统的有机物去除及脱氮除磷性能造成显著影响. 与控制系统相比, 污泥臭氧原位减量系统保持了稳定的 COD 和氮去除效果, 但是除磷效果有所下降, 需要与其他除磷工艺结合进一步提高除磷效率.

(2) 污泥臭氧原位减量系统出水中目标抗生素浓度在运行期间保持相对稳定, 且与控制系统无显著差别, 而污泥中目标抗生素浓度显著低于控制系统.

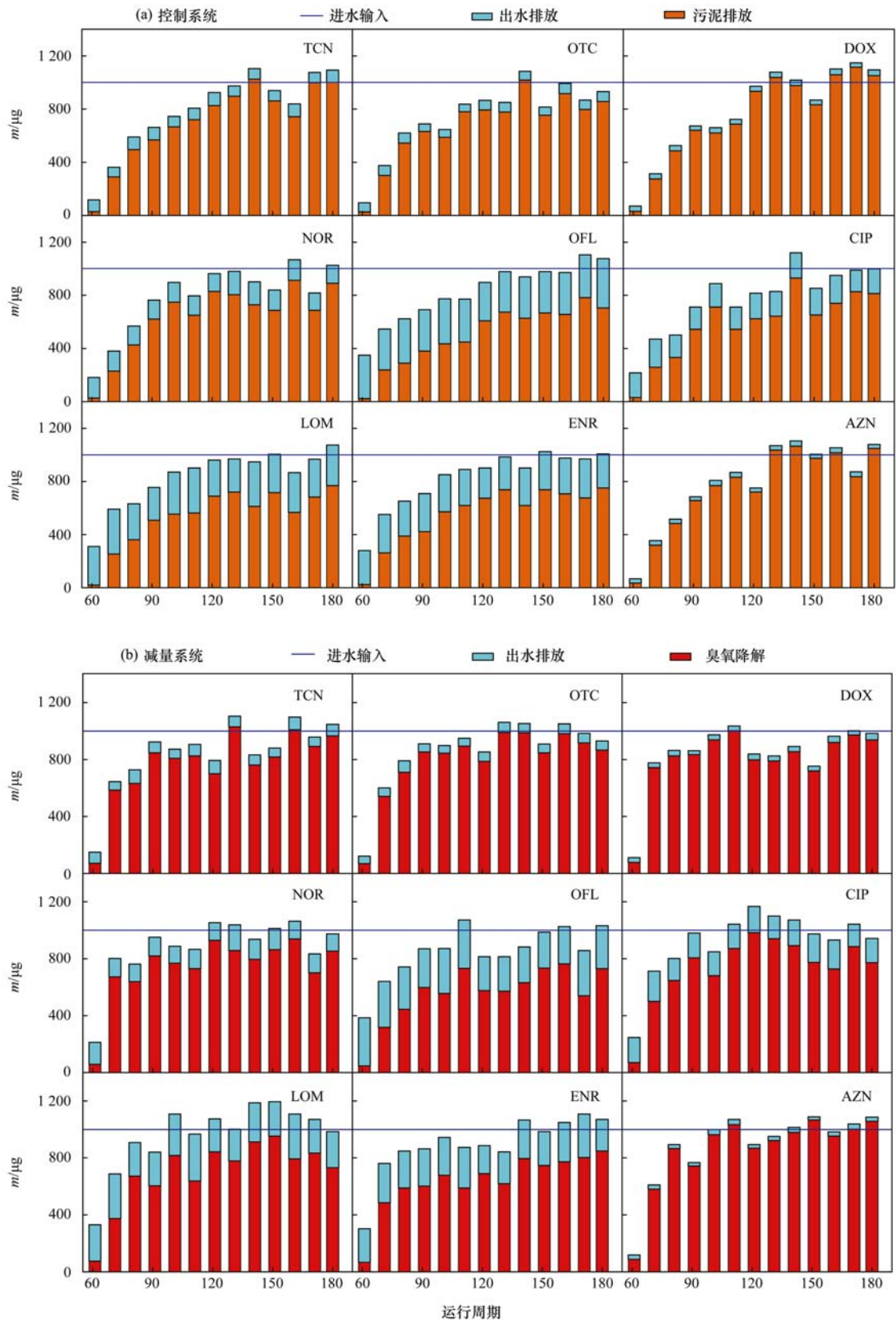


图5 控制和减量系统中目标抗生素质量衡算

Fig. 5 Mass balance of the target antibiotics in the control and reduction systems

(3)质量衡算表明目标抗生素在两系统内的变化是一个输入和输出渐趋平衡的过程. 输入输出达到平衡后, 目标抗生素的剩余污泥排放量和臭氧降解量分别占控制系统和减量系统输入量的 82% 和

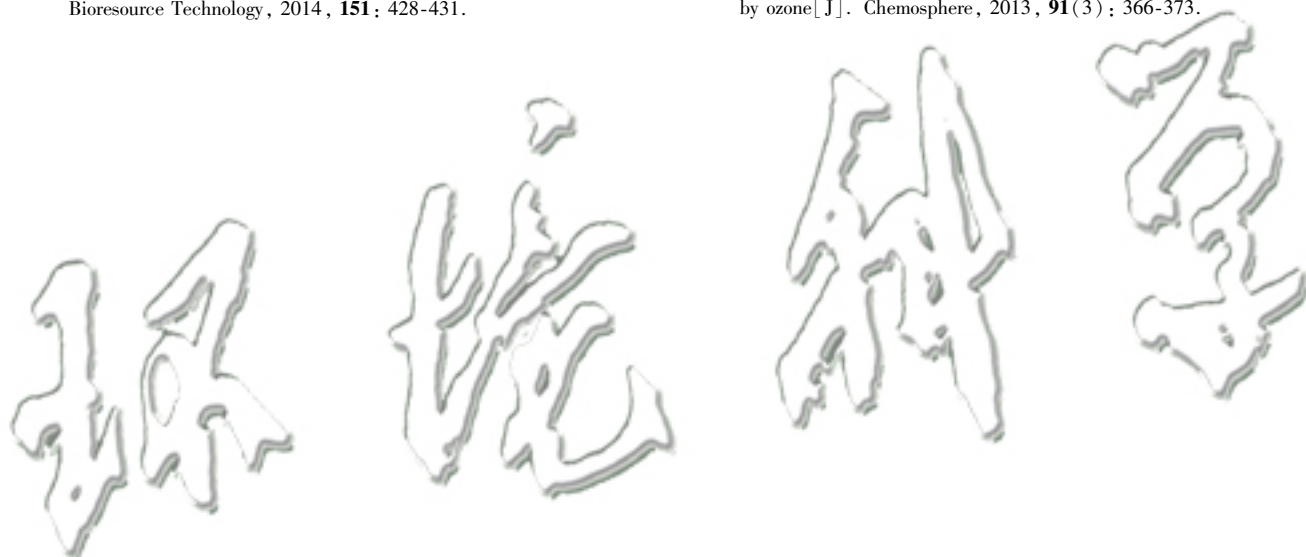
83%.

(4)污泥臭氧原位减量工艺可在不增加目标抗生素出水释放量的同时,通过剩余污泥的零排放明显削减活性污泥系统的抗生素排放总量.

参考文献:

- [1] 张俊, 杨晓洪, 葛峰, 等. 长期施用四环素残留猪粪对土壤中耐药菌及抗性基因形成的影响[J]. 环境科学, 2014, **35**(6): 2374-2380.
- Zhang J, Yang X H, Ge F, *et al.* Effects of long-term application of pig manure containing residual tetracycline on the formation of drug-resistant bacteria and resistance genes[J]. Environmental Science, 2014, **35**(6): 2374-2380.
- [2] 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.
- Xu W H, Zhang G, Zou S C, *et al.* Occurrence, distribution and fate of antibiotics in sewage treatment plants[J]. Environmental Science, 2007, **28**(8): 1779-1783.
- [3] Li W H, Shi Y L, Gao L H, *et al.* Occurrence, distribution and potential affecting factors of antibiotics in sewage sludge of wastewater treatment plants in China[J]. Science of the Total Environment, 2013, **445-446**: 306-313.
- [4] Gothwal R, Shashidhar T. Antibiotic pollution in the environment: a review[J]. Clean: Soil, Air, Water, 2015, **43**(4): 479-489.
- [5] 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.
- [6] Benítez F J, Acero J L, Real F J, *et al.* Comparison of different chemical oxidation treatments for the removal of selected pharmaceuticals in water matrices[J]. Chemical Engineering Journal, 2011, **168**(3): 1149-1156.
- [7] Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices—a review[J]. Journal of Environmental Management, 2011, **92**(10): 2304-2347.
- [8] Clarke B O, Smith S R. Review of ‘emerging’ organic contaminants in biosolids and assessment of international research priorities for the agricultural use of biosolids[J]. Environment International, 2011, **37**(1): 226-247.
- [9] Semblante G U, Hai F I, Huang X, *et al.* Trace organic contaminants in biosolids: impact of conventional wastewater and sludge processing technologies and emerging alternatives[J]. Journal of Hazardous Materials, 2015, **300**: 1-17.
- [10] Stasinakis A S. Review on the fate of emerging contaminants during sludge anaerobic digestion[J]. Bioresource Technology, 2012, **121**: 432-440.
- [11] Golet E M, Xifra I, Siegrist H, *et al.* Environmental exposure assessment of fluoroquinolone antibacterial agents from sewage to soil[J]. Environmental Science & Technology, 2003, **37**(15): 3243-3249.
- [12] Lindberg R H, Olofsson U, Rendahl P, *et al.* Behavior of fluoroquinolones and trimethoprim during mechanical, chemical, and active sludge treatment of sewage water and digestion of sludge[J]. Environmental Science & Technology, 2006, **40**(3): 1042-1048.
- [13] Guo W Q, Yang S S, Xiang W S, *et al.* Minimization of excess sludge production by in-situ activated sludge treatment processes—a comprehensive review[J]. Biotechnology Advances, 2013, **31**(8): 1386-1396.
- [14] Wei Y S, Van Houten R T, Borger A R, *et al.* Minimization of excess sludge production for biological wastewater treatment[J]. Water Research, 2003, **37**(18): 4453-4467.
- [15] Chu L B, Yan S T, Xing X H, *et al.* Progress and perspectives of sludge ozonation as a powerful pretreatment method for minimization of excess sludge production[J]. Water Research, 2009, **43**(7): 1811-1822.
- [16] Qiang Z M, Wang L, Dong H Y, *et al.* Operation performance of an A/A/O process coupled with excess sludge ozonation and phosphorus recovery: a pilot-scale study[J]. Chemical Engineering Journal, 2015, **268**: 162-169.
- [17] Ben W, Qiang Z, Pan X, *et al.* Degradation of veterinary antibiotics by ozone in swine wastewater pretreated with sequencing batch reactor[J]. Journal of Environmental Engineering, 2012, **138**(3): 272-277.
- [18] DeWitte B, Dewulf J, Demeestere K, *et al.* Ozonation of ciprofloxacin in water: HRMS identification of reaction products and pathways[J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(13): 4889-4895.
- [19] Dodd M C, Buffle M O, Von Gunten U. Oxidation of antibacterial molecules by aqueous ozone: moiety-specific reaction kinetics and application to ozone-based wastewater treatment[J]. Environmental Science & Technology, 2006, **40**(6): 1969-1977.
- [20] Khan M H, Bae H, Jung J Y. Tetracycline degradation by ozonation in the aqueous phase: proposed degradation intermediates and pathway[J]. Journal of Hazardous Materials, 2010, **181**(1-3): 659-665.
- [21] Lange F, Cornelissen S, Kubac D, *et al.* Degradation of macrolide antibiotics by ozone: a mechanistic case study with clarithromycin[J]. Chemosphere, 2006, **65**(1): 17-23.
- [22] Öncü N B, Balcioglu I A. Degradation of ciprofloxacin and oxytetracycline antibiotics in waste sewage sludge by ozonation[J]. Journal of Advanced Oxidation Technologies, 2013, **16**(1): 107-116.
- [23] Yuan X J, Qiang Z M, Ben W W, *et al.* Rapid detection of multiple class pharmaceuticals in both municipal wastewater and sludge with ultra high performance liquid chromatography tandem mass spectrometry[J]. Journal of Environmental Sciences, 2014, **26**(9): 1949-1959.
- [24] Yuan X J, Qiang Z M, Ben W W, *et al.* Distribution, mass load and environmental impact of multiple-class pharmaceuticals in conventional and upgraded municipal wastewater treatment plants in east china[J]. Environmental Science: Processes & Impacts, 2015, **17**(3): 596-605.
- [25] Wang L, Qiang Z M, Li Y G, *et al.* An insight into the removal of fluoroquinolones in activated sludge process: sorption and biodegradation characteristics[J]. Journal of Environmental Sciences, 2017, **56**: 263-271.
- [26] Li B, Zhang T. Biodegradation and adsorption of antibiotics in the activated sludge process[J]. Environmental Science &

- Technology, 2010, **44**(9): 3468-3473.
- [27] Kümmerer K, Al-Ahmad A, Mersch-Sundermann V. Biodegradability of some antibiotics, elimination of the genotoxicity and affection of wastewater bacteria in a simple test [J]. Chemosphere, 2000, **40**(7): 701-710.
- [28] Dorival-García N, Zafra-Gómez A, Navalón A, *et al.* Removal and degradation characteristics of quinolone antibiotics in laboratory-scale activated sludge reactors under aerobic, nitrifying and anoxic conditions [J]. Journal of Environmental Management, 2013, **120**: 75-83.
- [29] Prado N, Ochoa J, Amrane A. Biodegradation and biosorption of tetracycline and tylosin antibiotics in activated sludge system[J]. Process Biochemistry, 2009, **44**(11): 1302-1306.
- [30] Liu Z G, Sun P Z, Pavlostathis S G, *et al.* Adsorption, inhibition, and biotransformation of ciprofloxacin under aerobic conditions [J]. Bioresource Technology, 2013, **144**: 644-651.
- [31] Song X C, Liu D F, Zhang G W, *et al.* Adsorption mechanisms and the effect of oxytetracycline on activated sludge [J]. Bioresource Technology, 2014, **151**: 428-431.
- [32] 汪鲁, 强志民, 董慧峪, 等. 城市污水处理厂污泥臭氧减量技术研究[J]. 环境科学学报, 2014, **34**(2): 363-369.
Wang L, Qiang Z M, Dong H Y, *et al.* Sludge reduction by ozone in municipal wastewater treatment plants [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2014, **34**(2): 363-369.
- [33] Nie Y F, Qiang Z M, Ben W W, *et al.* Removal of endocrine-disrupting chemicals and conventional pollutants in a continuous-operating activated sludge process integrated with ozonation for excess sludge reduction [J]. Chemosphere, 2014, **105**: 133-138.
- [34] Hung N V, Tateda M, Ike M, *et al.* Sorption of biodegradation end products of nonylphenol polyethoxylates onto activated sludge [J]. Journal of Environmental Sciences, 2004, **16**(4): 564-569.
- [35] Chang B V, Chiang F, Yuan S Y. Biodegradation of nonylphenol in sewage sludge [J]. Chemosphere, 2005, **60**(11): 1652-1659.
- [36] Qiang Z M, Nie Y F, Ben W W, *et al.* Degradation of endocrine-disrupting chemicals during activated sludge reduction by ozone[J]. Chemosphere, 2013, **91**(3): 366-373.



CONTENTS

Air Pollutant Emission Inventory from Iron and Steel Industry in the Beijing-Tianjin-Hebei Region and Its Impact on PM _{2.5}	DUAN Wen-jiao, LANG Jian-lei, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (1445)
Simulation of the Spatio-temporally Resolved PM _{2.5} Aerosol Mass Concentration over the Inland Plain of the Beijing-Tianjin-Hebei Region	HAO Jing, SUN Cheng, GUO Xing-yu, <i>et al.</i> (1455)
Effect of Relative Humidity on Particulate Matter Concentration and Visibility During Winter in Chengdu	LIU Fan, TAN Qin-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1466)
Vertical Distributional Characteristics of Inorganic Ions of PM _{2.5} at Mt. Huashan, Inland China	CAO Cong, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (1473)
Analysis of the Composition of Atmospheric Fine Particles (PM _{2.5}) Produced by Burning Fireworks	XIE Rui-jia, HOU Hong-xia, CHEN Yong-shan (1484)
Chemical Composition Characteristics of PM _{2.5} Emitted by Medium and Small Capacity Coal-fired Boilers in the Yangtze River Delta Region	XU Jian, HUANG Cheng, LI Li, <i>et al.</i> (1493)
Emission Factors of Heavy Metals in Size-resolved Particles Emitted from Residential Coal Combustion	YAN Qin, KONG Shao-fei, LIU Hai-biao, <i>et al.</i> (1502)
Distribution of Oxalate in Atmospheric Aerosols and the Related Influencing Factors in Qingdao, During Winter and Spring	ZHANG Shuai, SHI Jin-hui, YAO Xiao-hong, <i>et al.</i> (1512)
Concentrations and Solubility of Trace Elements in Atmospheric Precipitation in Qingdao	LI Qian, SHI Jin-hui, LI Peng-zhi, <i>et al.</i> (1520)
Occurrence and Gas-particle Partitioning of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Air of Liaodong Bay	ZHANG Yu-feng, SONG Yong-gang, TIAN Jin, <i>et al.</i> (1527)
Analysis of Sources, Pollution Characteristics, and Human Exposure to Atmospheric New Halogenated Flame Retardants in Selected Areas	LI Qi-lu, YANG Kong, LI Jun, <i>et al.</i> (1537)
Contamination Characterization and Human Exposure Levels to Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor and Outdoor Air in Industrial Park of Suzhou City	WANG Jun-xia, GU Hai-dong, ZHANG Zhan-en, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Air Pollution on the Cold Disease in Shanghai	YANG Si-xu, MA Yu-xia, ZHOU Jian-ding, <i>et al.</i> (1552)
Fluorescent Dissolved Organic Matter and Its Correlation with Water Quality in a Urban River: A Case Study of the Lujiang River in Beilun, Ningbo	CAO Chang-li, LIANG Meng-qi, HE Gui-ying, <i>et al.</i> (1560)
Relationship Between Landscape Pattern and Water Quality in the Ebinur Lake Region	CAO Can, ZHANG Fei, Ayinge'er-Yalikun, <i>et al.</i> (1568)
CH ₄ Fluxes During the Algal Bloom in the Pengxi River	QIN Yu, ZHANG Yu-yang, LI Zhe, <i>et al.</i> (1578)
Dynamic Variations and Sources of Nitrate During Dry Season in the Lijiang River	MIAO Ying, ZHANG Cheng, XIAO Qiong, <i>et al.</i> (1589)
Heavy Metal Pollution of the Drinking Water Sources in the Lujiang River Basin, and Related Health Risk Assessments	ZHANG Qing-hua, WEI Yong-zhu, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (1598)
Characteristics of Phosphorus Fractions and Phosphate Diffusion Fluxes of Sediments in Cascade Reservoirs of the Huangbai River	LIU Jia, LEI Dan, LI Qiong, <i>et al.</i> (1608)
Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Baiyangdian Lake	GAO Qiu-sheng, JIAO Li-xin, YANG Liu, <i>et al.</i> (1616)
Simulating the Fate of Typical Organochlorine Pesticides in the Multimedia Environment of the Pearl River Delta	GAO Zi-wen, XU Yue, YI Ru-han (1628)
Mechanisms and Efficiencies of Removal of PPCPs by Pilot River Water Bypass Treatment Process	LI Li, ZHU Bing, BAI Yao, <i>et al.</i> (1637)
Chlorination of Naproxen: Removal, Transformation and Risk Assessment	FAN Xin-xin, DU Er-deng, LI Jia-qi, <i>et al.</i> (1645)
Removing Typical Odorants in Drinking Water by Vacuum Ultraviolet Combined with Chlorine	SUN Xin, ZHANG Yi, SHI Lu-xiao, <i>et al.</i> (1654)
Degradation of Triclosan by Heat Activated Persulfate Oxidation	JIANG Meng-di, ZHANG Qing-yue, JI Yue-fei, <i>et al.</i> (1661)
Adsorption of Tetracycline on Simulated Suspended Particles in Water	XU Long-feng, WEI Qun-shan, LÜ Qiang, <i>et al.</i> (1668)
Characteristics and Performance of Embedded ANAMMOX Bacteria in Treating Saline Wastewater	SHAN Xiao-jing, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (1677)
Enhanced Nitrogen Removal of ANAMMOX Treating Saline Wastewater With Betaine Addition	YU De-shuang, WU Guo-dong, LI Jin, <i>et al.</i> (1688)
Pilot-scale Experiment on Enrichment of Nitrifying Activated Sludge and Its Application in Enhancing a Wastewater Biological Treatment System Against Ammonia Shocking Loads	SHENG Xiao-lin, CUI Can-can, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (1697)
Effect of Step Feed on Denitrifying Phosphorus and Nitrate Removal in a Modification of the Two Sludge A ² /O-BAF System	NAN Yan-bin, PENG Yong-zhen, ZENG Li-yun, <i>et al.</i> (1704)
Achieving Partial Nitrification in a Continuous-flow Aerobic Granular Sludge Reactor at Different Temperatures Through Ratio Control	LIANG Dong-bo, BIAN Wei, KAN Rui-zhe, <i>et al.</i> (1713)
Mechanism of Action of Activated Sludge Properties in Nitrogen Removal by Endogenous Denitrification Through an Intelligent Aeration-controlled A/O Process	XU Min-yang, HU Zhan-bo, ZHANG Sui-sheng, <i>et al.</i> (1720)
Effect of Temperature on the Performance and Microbial Community Structure in an Integrated Anaerobic Fluidized-bed Membrane Bioreactor Treating Benzothiazole Wastewater	LI Yue, HU Qi, GAO Da-wen (1731)
Removal of Antibiotics During In-situ Sludge Ozone-reduction Process	WANG Lu, BEN Wei-wei, LI Yan-gang, <i>et al.</i> (1739)
Effect of Zero Valent Iron on the Horizontal Gene Transfer of Tetracycline Resistance Genes During Anaerobic Sludge Digestion Process	YANG Fan, XU Wen-li, QIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1748)
Effects of Environmental Factors on the Synergy of Functional Bacteria in Completely Autotrophic Granular Sludge	CHEN Xi, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (1756)
Microbiological Characteristics of a Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process	ZHANG Qian, JI Fang-ying, XU Xuan (1763)
Aerobic Denitrification and Microbial Community Shift in SBR Bioaugmented with Strains YH01 and YH02	CHEN Hai-sheng, CAO Gang, ZHANG Di, <i>et al.</i> (1773)
Performance, Sludge Characteristics, and the Microbial Community Dynamics of Bulking Sludge Under Different Nitrogen and Phosphorus Imbalances	HE Xue-meng, DING Li-li, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1782)
Degradation Characteristics and Metabolic Pathway of a Pyrene-Degrading <i>Pseudomonas aeruginosa</i> Strain	LI Xiang, ZHANG Xue-ying, ZHOU Jun, <i>et al.</i> (1794)
Driving Factors of the Dynamics of Microbial Community in a Dam of Copper Mine Tailings	LI Cui, JING Ju-hui, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (1804)
Effects of Reclamation on Soil Nutrients and Microbial Activities in the Huixian Karst Wetland in Guilin	HUANG Ke-chao, SHEN Yu-yi, XU Guang-ping, <i>et al.</i> (1813)
Effects of the Farmland-to-Forest/Grassland Conversion Program on the Soil Bacterial Community in the Loess Hilly Region	CHEN Meng-li, ZENG Quan-chao, HUANG Yi-mei, <i>et al.</i> (1824)
Insight into the Mechanism of Feammox in the Surface Soils of a Riparian Zone	DING Bang-jing, LI Zheng-kui, ZHU Hong-jie, <i>et al.</i> (1833)
Soil Degradation-Associated Microbial Community Structure Changes in an Alpine Meadow Under Tibetan Pig Herding	ZHAN Peng-fei, XIAO De-rong, YAN Peng-fei, <i>et al.</i> (1840)
Characteristics of Iron Plaque and Its Heavy Metal Enrichment in Typical Mangrove Plants in Shenzhen Bay, China	SHEN Xiao-xue, LI Rui-li, CHAI Min-wei, <i>et al.</i> (1851)
Spatial Distribution of DDTs and PCBs in Wild Fish from Hong Kong Coastal Areas and Potential Human Health Risk Assessment	SU Yang, BAO Lian-jun, ZENG Eddy Y (1861)
Pollution Characteristics of PAHs in Soil from a Remote Mountain Wetland-Dajihu Lake, Shengnongjia	HU Tian-peng, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1872)
Migration and Transformation of Mercury in Unsubmerged Soil and Sediment at One Typical Forest Reservoir in Southwest China	SUN Tao, MA Ming, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (1880)
Accumulation of Cd and Its Risks in the Soils of the Xijiang River Drainage Basin in Guangxi	SONG Bo, YANG Zi-jie, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (1888)
Effects of Long-term Fertilization Regimes on As Accumulation in Upland Red Earth and the Crops Growing on It	ZHANG Rong, YU Guang-hui, LI Ya-qing (1901)
Effects of a Tribasic Amendment on Cadmium and Arsenic Accumulation and Translocation in Rice in a Field Experiment	GU Jiao-feng, ZHOU Hang, JIA Run-yu, <i>et al.</i> (1910)
Quantitative Relationship Between Paddy Soil Properties and Cadmium Content in Rice Grains	WANG Meng-meng, HE Meng-yuan, SU De-chun (1918)
Effect of Ca-bentonite on Cu and Zn Forms in Compost and Soil, and Their Absorption by Chinese Cabbage	ZHAO Jun-chao, WANG Quan, REN Xiu-na, <i>et al.</i> (1926)
Effects of Short-term Exogenous Nitrogen and Carbon Input on Soil Respiration Under Changing Precipitation Pattern	HE Yun-long, QI Yu-chun, PENG Qin, <i>et al.</i> (1934)
Effects of Simulated Precipitation Reduction on Soil Respiration in a Soybean-Winter Wheat Rotation Cropland	WANG Zhao-hui, CHEN Shu-tao, SUN Lu, <i>et al.</i> (1943)
Seasonal Variation in Nitric Oxide Emission from an Agricultural Headwater Ditch in the Hilly Purple Soil Area and the Factors Influencing Emission	TIAN Lin-lin, REN Guang-qian, ZHU Bo (1952)
Effects of Seasonal Asymmetric Warming on Soil CO ₂ Release in Karst Region	TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i> (1962)