

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

长江经济带PM_{2.5}空间异质性和驱动因素的地理探测

王丽丽, 刘笑杰, 李丁, 孙颖琦



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年3月

第43卷 第3期
Vol.43 No.3

目次

2000~2020年天津PM _{2.5} 质量浓度演变及驱动因子分析	蔡子颖,郝国,韩素芹,唐颖潇,杨旭,樊文雁,姚青,邱晓滨(1129)
天津市PM _{2.5} -O ₃ 复合污染特征及来源分析	肖致美,徐虹,高璟,蔡子颖,毕温凯,李鹏,杨宁,邓小文,戴运峰(1140)
基于随机森林模型的武汉市城区大气PM _{2.5} 来源解析	张志豪,陈楠,祝波,陶卉婷,成海容(1151)
华北南部重污染城市周边区域二次气溶胶的化学特征及来源解析	任秀龙,胡伟,吴春苗,胡偲豪,高娜娜,张崇崇,岳亮,王金喜,樊景森,牛红亚(1159)
“大气十条”实施结束川南城市群秋季霾污染过程中水溶性离子特征	吴安南,黄小娟,何仁江,李金建,叶林麟,吴涛,肖智丹,刘子锐,王跃思,张小玲,张军科(1170)
郑州市典型污染过程PM ₁₀ 中重金属浓度、来源及健康风险评估	翟诗婷,王申博,张栋,赵孝因,杨洁茹,刘洋,陈红阳,张瑞芹(1180)
长江经济带PM _{2.5} 空间异质性和驱动因素的地理探测	王丽丽,刘笑杰,李丁,孙颖琦(1190)
长三角地区PM _{2.5} 浓度对土地利用/覆盖转换的空间异质性响应	周丽霞,吴涛,蒋国俊,张建珍,濮励杰,徐飞,解雪峰(1201)
“2+26”城市春节和元宵节期间污染特征、气象影响和预报回顾分析	朱媛媛,王晓斐,汪巍,刀语,王帅,陈善荣(1212)
基于小波变换的山西省PM _{2.5} 污染特征及影响因素	张可可,胡冬梅,闫雨龙,彭林,段小琳,尹浩,王凯,邓萌杰(1226)
中国地表臭氧浓度估算及健康影响评估	赵楠,卢毅敏(1235)
湖南省臭氧污染基本特征分析及长期趋势变化主控因素识别	刘妍妍,杨雷峰,谢丹平,泽仁央宗,黄志烟,杨俊,赵鹏,韩静磊,贾文超,袁自冰(1246)
山东半岛近地面O ₃ 浓度时空变化及潜在源区解析	李乐,刘旻霞,肖仕锐,王思远,米佳乐(1256)
COVID-19疫情期间雄安新区VOCs的变化特征、臭氧生成潜势及来源解析	刘新军,王淑娟,刘程,范莉茹,付翠轻,齐堃,宿文康(1268)
淄博市城区臭氧超标期间的VOCs污染特征与来源解析	王帅,王秀艳,杨文,王雨燕,白瑾丰,程颖(1277)
淄博市夏季城区与背景点VOCs污染特征比较	秦涛,徐勃,王信梧,李丽明,杨文,王晓丽,耿春梅(1286)
四川省餐饮源挥发性有机物组分特征和清单	钱骏,韩丽,陈军辉,王斌,姜涛,徐晨曦,李英杰,王成辉,王波(1296)
餐饮源气相与颗粒相多环芳烃排放特征	李源,吴爱华,童梦雪,栾胜基,李骞(1307)
堆肥厂不同工作区空气真菌的多样性与群落结构	于奥园,邢礼军,孙兴滨,仇天雷,王旭明,高敏(1315)
城市扬尘污染主要成因与精准治尘思路	李廷昆,冯银厂,毕晓辉,张裕芬,吴建会(1323)
黄河干流水质评价与时空变化分析	刘彦龙,郑易安(1332)
典型山地城市河流营养元素空间分布特征及影响因素分析:以重庆市清水溪为例	王超,叶秋,贾伯阳,何文战,党超军,黄焱,杜浪(1346)
三峡库区支流的河-湖两态及其对沉积物不同形态磷含量的影响	黄伟,张研,罗晓佼,张磊(1356)
派河及其支流溶解性有机质分子组成特征	詹亚,尹浩,冯景伟,冯艾荣,胡艳云,张刘,郑刘根(1365)
粤港澳大湾区典型潮间带环境多介质中Cd形态空间分布特征及其影响因素	崔新月,莫武秋,廖建波(1375)
骆马湖及主要入湖河流表层水体中抗生素的赋存特征及风险评价	龚润强,赵华璋,高占欣,胡冠九,卜元卿,张圣虎,邱慧(1384)
宁夏第三排水沟中抗生素的污染特征与生态风险评估	李富娟,高礼,李凌云,郑兰香,陶红,杨桂钦(1394)
百年以来北方湖泊沉积物PAHs的变化特征及其对人类活动的响应	龚雄虎,赵中华,丁琪琪,张路,姚书春,薛滨(1404)
长江流域河流和湖库的浮游细菌群落差异	胡愈忻,张静,黄杰,段春建,李天翠,刘威,王英才,胡圣(1414)
河套平原灌溉间隙期乌梁素海水体细菌群落结构特征	史玉娇,李文宝,张博尧,姚国旺,史小红(1424)
不同空间尺度的景观结构对袁河浮游细菌群落的影响	舒旺,王鹏,丁明军,张华,黄高翔,聂明华(1434)
鄱阳湖白鹤保护区微塑料表面微生物群落结构特征	刘淑丽,简敏菲,邹龙,胡启武(1447)
微塑料对变形杆菌生物膜生长发育的影响	陶辉,戚怡婷,于多,杨兰,顾颖,厉彦辉(1455)
乌梁素海低密度微塑料聚合物沉降规律	刘禹,史小红,张生,郝若男,孙标,赵胜男(1463)
老化前后微塑料对富里酸的吸附	宋亚丽,俞娅,郝磊,汪华,朱文芳(1472)
天津市滨海河流N、O ₃ 扩散通量及控制因子	汤梦瑶,胡晓康,王洪伟,王云仓,常素云,王松庆,钟继承(1481)
铁矿石和生物炭添加对潜流人工湿地污水处理效果和温室气体排放及微生物群落的影响	陈鑫童,郝庆菊,熊艳芳,胡剑,江长胜(1492)
降雨径流污染风险等级识别与优化方法	齐小天,张质明,赵鑫,胡文翰,刘迪(1500)
基于贝叶斯网络的给水管网消毒副产物生成因素分析	江杉杉,王臻宇,高权,杨愿愿,高方舟,胡佩,应光国(1512)
聚硫代酰胺修饰活性炭对Au(Ⅲ)的选择性吸附效果与机制	赵文金,张顺,安晓强,兰华春,刘会娟,曲久辉(1521)
F/M对活性污泥微生物生态网络的影响	张冰,孙展翔,文湘华(1529)
城乡融合区土壤元素地球化学特征与源解析:以天府新区青龙片区为例	刘书准,王德伟,施泽明,唐亮,章凤英,廖程,李晓雨,徐文斌(1535)
基于总量与形态的矿区周边土壤重金属生态风险与健康风险评估	王蕊,陈楠,张二喜(1546)
湖南锡矿山周边土壤-农作物系统镉迁移转化特征及污染评价	张龙,宋波,黄凤艳,肖乃川,顿梦杰(1558)
生物炭负载氧化石墨烯对离子型稀土土壤中重金属的阻控效应	杨士,刘祖文,龙培,毕永顺,林苑,左华伟(1567)
溶解性有机质强化棉花修复镉污染土壤	闵涛,罗彤,陈丽丽,茹思博,李俊华(1577)
铁锰氧化物-微生物负载生物炭材料对镉和砷的吸附机制	连斌,吴骥子,赵科理,叶正钱,袁峰(1584)
不同冬小麦品种镉富集转运及离子组特征差异	刘畅,徐应明,黄青青,陶雪莹,王林,孙约兵,赵立杰(1596)
镉胁迫下不同小麦品种对镉的积累特性	任超,任成仲,王浩,朱利文,李竞天,杜倩倩,李萍(1606)
嘉陵江滨岸带不同土地利用类型对土壤细菌群落多样性的影响	刘坤和,薛玉琴,竹兰萍,徐飞,朱志豪,张拓,张富斌(1620)
蚯蚓/钾锰改性生物炭对As污染红壤中细菌多样性和群落结构的影响	苏倩倩,李莲芳,朱昌雄,叶婧,刘雪,耿兵,田云龙,黄晓雅(1630)
DA-6和EDDS施用对龙葵生长、Cd吸收和土壤细菌群落结构的影响	罗洋,孙丽,刘方,任军,郭金梅,闫修民(1641)
地膜覆盖对农田土壤养分和生态酶计量学特征的影响	胡志娥,肖谋良,王双,童瑶瑶,鲁顺保,陈剑平,葛体达(1649)
增温和增雨对黄土丘陵区撂荒地土壤呼吸的影响	王兴,钟泽坤,朱玉帆,王佳懿,杨改河,任成杰,韩新辉(1657)
秸秆还田、地膜覆盖及施氮对冬小麦田N ₂ O和N ₂ 排放的影响	彭毅,李惠通,张少维,阳婷,王筱斐,周春菊,王林权(1668)
基于Meta分析的不同生产条件下秸秆还田对土壤氮挥发的影响	赵政鑫,王晓云,田雅洁,王锐,赵青,蔡焕杰(1678)
施肥对农田土壤抗生素抗性基因影响的整合分析	冉继伟,肖琼,黄敏,蔡岸冬,张文菊(1688)

基于贝叶斯网络的给水管网消毒副产物生成因素分析

江杉杉^{1,2}, 王臻宇³, 高权^{1,2}, 杨愿愿^{1,2}, 高方舟^{1,2}, 华佩^{1,2*}, 应光国^{1,2}

(1. 华南师范大学环境学院, 广州 510006; 2. 华南师范大学广东省化学品污染与环境安全重点实验室 & 环境理论化学教育部重点实验室, 广州 510006; 3. 德累斯顿工业大学市政与环境工程学院, 德累斯顿 01069, 德国)

摘要: 给水管网消毒副产物 (disinfection byproducts, DBPs) 的生成受管网环境因素、微生物群落特征和水厂未完全去除的有机物等多指标共同影响。各指标间相互关联形成复杂的网络结构, 导致影响 DBPs 在管网内生成的主控因子较难确定。以广州某高校给水管网系统为研究对象, 于 2021 年 1~2 月开展终端水质调查, 利用吹扫捕集-气相色谱质谱法测定三卤甲烷赋存水平, 利用超高效液相色谱-串联三重四级杆质谱法测定抗生素及亚硝胺类 DBPs 质量浓度, 利用高通量测序确定微生物群落组成。基于实测数据, 构建贝叶斯网络模型, 定量分析各水质指标间的相互关联。结果表明, 管网中三卤甲烷和亚硝胺类 DBPs 质量浓度分别为 18.33~32.09 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 13.08~53.50 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。共检出 23 种抗生素, 质量浓度范围为 47.92~210.33 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。高通量测序发现 236 种细菌物种, 优势菌群为 Rhizobiales 和 Caulobacteriales。贝叶斯网络推理发现, 四环素类、磺胺类和四环素类抗生素为三卤甲烷前体物, 同时四环素也是亚硝胺类 DBP 前体物。Caulobacteriales 和 Corynebacteriales 丰度易受抗生素影响, 其胞外聚合物是 DBPs 生成重要前体物。结果可为 DBPs 的前体物研究和前端控制提供理论支持。

关键词: 抗生素; 贝叶斯网络; 消毒副产物; 给水管网; 微生物群落

中图分类号: X131.2 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)03-1512-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202106138

Factor Analysis of Disinfection Byproduct Formation in Drinking Water Distribution Systems Through the Bayesian Network

JIANG Shan-shan^{1,2}, WANG Zhen-yu³, GAO Quan^{1,2}, YANG Yuan-yuan^{1,2}, GAO Fang-zhou^{1,2}, HUA Pei^{1,2*}, YING Guang-guo^{1,2}

(1. School of Environment, South China Normal University, Guangzhou 510006, China; 2. Guangdong Provincial Key Laboratory of Chemical Pollution and Environmental Safety & Key Laboratory of Theoretical Chemistry of Environment, South China Normal University, Guangzhou 510006, China; 3. School of Civil and Environmental Engineering, Dresden University of Technology, Dresden 01069, Germany)

Abstract: Disinfection byproducts (DBPs) in drinking water distribution systems are affected by multi-factors, such as basic water quality parameters, microbial community structures, and residual organic pollutants that cannot be removed by the water treatment process. The relationship between the above-mentioned factors that forms a complicated network structure, which causes the dominating factor that affects DBPs formation unclear. This study investigated the water quality in regional tap water in January-February 2021. Trihalomethanes were determined using P&T-GC-MS, and antibiotics and nitrosamines were determined using UPLC-MS/MS. Microbial communities were determined using Illumina 16S rRNA gene sequencing. A Bayesian network was constructed to evaluate the intercorrelation between the factors. Three species of trihalomethanes, six species of nitrosamines, 23 types of antibiotics, and 236 OTUs were detected in the tap water. The mass concentrations of trihalomethanes, nitrosamines, and antibiotics were 18.33-32.09 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 13.08-53.50 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, and 47.92-210.33 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, respectively. The dominant microbial orders were Rhizobiales and Caulobacteriales. Based on the Bayesian-network inference, tetracycline, sulfonamides, and macrocyclic antibiotics were precursors of trihalomethanes, whereas tetracyclines were the nitrosamine precursor. The abundances of Caulobacteriales and Corynebacteriales were both affected by antibiotics and associated with DBPs formation. The extracellular polymeric substances of these bacteria were highly suspected to be important DBPs precursors. The results of the proposed project revealed the internal relationship between multi-water-quality parameters and DBPs formation, which could provide a theoretical support to guarantee the safety of drinking water.

Key words: antibiotics; Bayesian network; disinfection byproducts; drinking water distribution system; microbial community

饮用水消毒和传输过程中, 余氯会和水中的多种前体物反应生成具有遗传毒性、细胞毒性、潜在致突变性和致畸性的消毒副产物 (disinfection byproducts, DBPs)。目前已有 700 种 DBPs 被发现。其中, 三卤甲烷 (trihalomethanes, THMs) 为首次发现的含碳氯化消毒副产物, 已被列入受控清单; 亚硝胺是一类非卤代含氮 DBPs, 因其致癌风险高而备受关注^[1]。DBPs 前体物包括天然有机质、管壁生物膜分泌的胞外聚合物和水厂未完全去除的微污染物如抗生素等^[2~4]。因此, DBPs 生成潜能受控于前体物特征, 包括天然有机质性质、微生物群落结构和抗生素赋存水平^[5,6]。与此同时, DBPs 生成还受到

管网环境因素, 如 pH 和温度等影响^[7]。

近年来, 研究热点逐步从 DBPs 与单一水质指标或环境因素的相关性分析深入至与多水质指标的因果关系分析。以管网抗生素为例, 磺胺嘧啶和环丙沙星的加入使管网出水中总细菌和 *Mycobacterium avium* 增加, 造成具有抗药性的微生物分泌更多的

收稿日期: 2021-06-17; 修订日期: 2021-08-05

基金项目: 国家自然科学基金项目 (NSFC 22006041); 广东省基础与运用基础研究基金项目 (2020A151111128); 广州市科技计划项目 (202002030169)

作者简介: 江杉杉 (1997~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为给水管网消毒副产物生成与模拟, E-mail: shanshan.jiang@m.scnu.edu.cn

* 通信作者, E-mail: pei.hua@m.scnu.edu.cn

胞外聚合物^[8], 最终促进 DBPs 生成; 即通过微生物, 形成了抗生素与 DBPs 的因果链条. 抗生素浓度变化还可能导致生物膜群落结构发生变化, 使得具有较强抗生素耐药性的微生物成为主导菌种^[9], 进而改变胞外聚合物的组分并最终影响 DBPs 的生成种类. 有研究发现, *Pseudomonas putida* 和 *Pseudomonas aeruginosa* 的胞外聚合物主要成分分别为蛋白质和聚多糖^[10,11]. 由于蛋白质较多糖更易生成卤乙酸, 因此 *P. putida* 胞外聚合物的卤乙酸生成势高于 *P. aeruginosa*^[12]. 由此可见, 抗生素-微生物-DBPs 间不仅相互关联, 还可形成具有一定逻辑关系的网络结构. 由于实验研究难以厘清上述结构, 因此亟需更加灵活和精确的方法来描述 DBPs 与各水质指标的因果关系.

贝叶斯因果概率推理模型, 可以在复杂的关系网络中, 基于算法评估各输入因素的不确定性^[13], 推理出局部因素的相互关联和整体网络的层次关系^[14,15]; 可以快速有效地建立含有大量输入参数的复杂网络系统, 并将关系网络的逻辑性可视化^[16]. 目前已有研究将贝叶斯网络应用于环境科学研究^[17~19]. 尽管如此, Aguilera 等^[20]的研究认为贝叶斯网络在解决环境类问题上的应用还不够充分, 在给水管网水质分析中的应用潜力还有待开发. Li 等^[7]通过大量文献调研进一步指出, 给水管网中的环境因素、微生物指标和 DBPs 赋存水平间存在复杂关系网, 贝叶斯网络是适合梳理该网络中因果关系的模型工具. 综上, 本研究选择三卤甲烷和亚硝胺为目标 DBPs, 构建管网基本水质参数、抗生素浓度和微生物群落结构的 4 层贝叶斯网络, 依靠模型解析影响 DBPs 生成的主控因子, 以期给水管网的优化运行提供科学依据和理论支持, 对保障用户健康具有十分重要的现实意义.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究选取广州市大学城某高校的给水管网为研究对象, 依据均匀布点原则进行水样采集和检测. 研究区域内共设置 7 个采样点, 其中 4 个采样点位于教学区内, 3 个采样点位于生活区内. 教学区采样点为泵房、教学楼一栋(教一)、教学楼六栋(教六)和理学楼三栋(理三); 生活区采样点为北区超市(北超)、南区食堂(南食)和南宿舍八栋(南八). 校区总面积约 1 km² (约 1 500 亩), 教学区管网总长 7.5 km, 生活区管网总长 6.3 km.

采样时间为 2021 年 1~2 月, 所有采样点均未配置终端净水装置. 采样前, 打开水阀 5 min 以上至

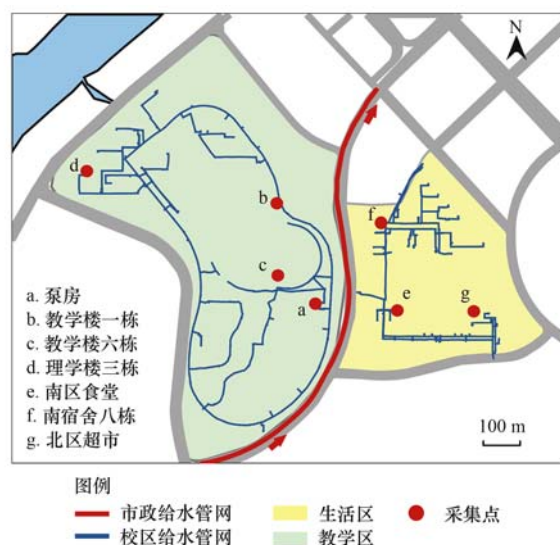


图 1 给水管网采样点分布示意

Fig. 1 Distribution map of sampling sites in the study area

水温恒定. 抗生素水样采集储存于 1 L 棕色玻璃瓶中, 并加入 50 mL 甲醇和 0.4 mL 4 mol·L⁻¹ 硫酸/水溶液. 亚硝胺水样采集储存于 2 L 棕色玻璃瓶中, 加入适量碳酸氢钠调节 pH = 8. 三卤甲烷水样采集储存于 40 mL 玻璃瓶中, 装流溢满, 加入 15 mg 无水硫代硫酸钠. 上述指标均设置 3 个平行和质控样. 采集 15 L 水样于 70% 乙醇消毒的聚丙烯塑料采样桶中, 用于微生物水样处理. 抗生素和 DBPs 水样于 4℃ 保存, 并在 48 h 内进行前处理. 微生物样品采集后送至实验室及时处理. 常规水质参数如溶解氧、电导率、水温和 pH 等通过便携式水质检测仪 (HACH HQ30D) 现场测定. 余氯和总氯使用便携式分光光度计 (HACH DR900) 现场检测.

1.2 化学试剂

抗生素内标磺胺甲噁唑-D₄、红霉素-¹³C-D₃、噻苯咪唑-D₄、环丙沙星-D₈、甲氧苄啶-D₃ 和林可霉素-D₃ 购自 Toronto Research Chemicals 公司 (加拿大), 磺胺甲基嘧啶-D₄ 购自 Dr. Ehrenstorfer 公司 (德国), 磺胺二甲嘧啶-¹³C₆ 购自 Cambridge Isotope Laboratories 公司 (美国), 甲氯环素购自 Sigma-Aldrich 公司 (美国); 亚硝胺替代物 *N*-亚硝基二甲胺-D₆ (NDMA-D₆, 1 000 μg·mL⁻¹) 和内标 *N*-亚硝基正丙胺-D₁₄ (NDPA-D₁₄, 1 000 μg·mL⁻¹) 购自 Accustandard 公司 (美国); 乙二胺四乙酸四钠 (AR, 纯度 > 99%) 和甲醇 (AR, 纯度 > 99.5%) 购自天津大茂试剂公司; 硫酸 (AR, 纯度 > 95%) 购自广州化学试剂公司; 无水硫代硫酸钠 (纯度 > 99%) 和碳酸氢钠 (ACS) 购自上海阿拉丁生化科技股份有限公司; 乙酸乙酯 (HPLC)、二氯甲烷 (HPLC)、甲酸 (HPLC) 和甲醇 (HPLC) 购自 Merck 公司 (德国);

正己烷(HPLC)购自 CNW 公司(德国);超纯水使用 MilliQ 超纯水系统生产(德国 Merck Millipore 公司). 甲醇(AR)仅用于样品采集,样品前处理和上机检测使用甲醇(HPLC).

1.3 测试方法

抗生素和亚硝胺检测均采用固相萃取法对样品进行前处理^[21]. 抗生素水样中加入 0.5 g 乙二胺四乙酸四钠和 100 μL $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 混合内标;依次通过 10 mL 甲醇和 10 mL 超纯水活化 Oasis HLB 小柱(6 mL, 200 mg);以 $5\sim 10\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ 流速加载水样;上样结束后,额外加入 2 次 25 mL 5% 甲醇/水溶液于样品瓶中润洗,并过柱;然后加入 10 mL 超纯水于小柱中,洗去残留的乙二胺四乙酸四钠;真空抽干小柱中残留水分;完成后向小柱内依次加入 3 mL 二氯甲烷,4 mL 乙酸乙酯和 5 mL 甲醇洗脱;氮气吹干洗脱液,并用 0.22 μm 聚醚砜滤膜以 1 mL 甲醇定容于棕色进样小瓶用于上机检测.

亚硝胺前处理方法参考 US EPA521 方法^[22]进行改进. 水样中加入 50 μL $200\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ NDMA- D_6 替代物;依次通过 10 mL 正己烷、10 mL 二氯甲烷、12 mL 甲醇和 12 mL 超纯水活化冲洗椰子壳活性炭小柱(CNWBOND Coconut Charcoal, 6 mL, 2 g, 80~120 目);以 $15\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ 流速加载水样;上样结束后加入 10 mL 二氯甲烷用于洗脱柱上富集的亚硝胺物质;洗脱液中加入 400 μL 超纯水混合;氮气洗脱液至 400 μL 后加入 100 μL 超纯水定容,过 0.22 μm 聚四氟乙烯滤膜后加入 25 μL $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 内标 NDPA- D_{14} ,最后保存于棕色进样小瓶.

抗生素和亚硝胺检测采用 ACQUITY 超高效液相色谱-串联三重四级杆质谱联用仪(ACQUITY UPLC I-Class-Xevo TQ-S micro, 美国 Waters 公司). 抗生素检测色谱柱选用 Waters ACQUITY UPLC BEH C18 柱(50 mm $\times$ 2.1 mm, 1.7 μm);流动相为 0.1% 甲酸水 A 和甲醇 B,流速为 $0.3\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$;梯度洗脱,即 0~0.5 min 为 80% A, 0.5~6 min 为 0% A, 6~6.5 min 为 80% A;柱温为 40 $^{\circ}\text{C}$;样品室温度为 10 $^{\circ}\text{C}$;进样量为 5 μL . 质谱采用电子轰击源负离子模式(ESI $^{-}$)进行检测,离子源温度为 150 $^{\circ}\text{C}$,脱溶剂温度为 400 $^{\circ}\text{C}$,脱溶剂气流速为 $800\text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$,毛细管电压为 3.5 kV,碰撞气体为高纯氦气.

亚硝胺检测色谱柱选用 Waters ACQUITY UPLC HSS T3 柱(100 mm $\times$ 2.1 mm, 1.8 μm);流动相为 0.1% 甲酸水 A 和甲醇 B,流速为 $0.4\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$;梯度洗脱,即 0~1 min 为 90% A, 1~3 min 为 88% A, 3~9 min 为 10% A, 9~11 min 为 95% A. 质谱

采用电子轰击源正离子模式(ESI $^{+}$)进行检测;其他条件与抗生素质谱条件相同.

三卤甲烷检测采用吹扫捕集-气相色谱质谱联用仪(P&T-GC 7890A-MS 7000, 美国 Agilent 公司). 吹扫流量为 $40\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$;吹扫温度为 20 $^{\circ}\text{C}$,吹扫 11 min;解析温度为 220 $^{\circ}\text{C}$,解析 2 min;烘烤温度为 260 $^{\circ}\text{C}$,烘烤 2 min. 色谱条件为毛细管色谱柱 HP-5UIms(30 m $\times$ 250 $\mu\text{m}\times$ 0.25 μm),进样口温度为 220 $^{\circ}\text{C}$,分流比为 20:1;程序升温设置为:35 $^{\circ}\text{C}$ 保持 5 min,然后以 $6\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 的速度升至 100 $^{\circ}\text{C}$,再以 $20\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 的速度升至 210 $^{\circ}\text{C}$ 保持 1 min. 质谱采用 EI 源,离子源温度为 230 $^{\circ}\text{C}$,传输线温度为 260 $^{\circ}\text{C}$,溶剂延迟 2 min.

1.4 微生物高通量测序

微生物水样富集于孔径为 0.22 μm 的水相滤膜,滤膜放置于 2 mL 无菌离心管中,避光保存于 -80°C ,送至上海美吉生物医药科技有限公司进行微生物 PCR 扩增和高通量测序. 扩增引物为:338F (5'-ACTCCTACGGGAGGCAGCAG-3') 和 806R (5'-GGACTACHVGGGTWTCTAAT-3'),扩增区间为 V3~V4 可变区. PCR 扩增产物在 Illumina-MiSeq 平台进行测序.

1.5 贝叶斯网络

利用贝叶斯网络对多水质指标相关性建立有向层次网络结构. 贝叶斯网络是一种用于因果概率推理的有向概率图模型,模型通过有向无环图定性和条件概率分布定量. 有向图由含有随机变量的节点和表示节点间的概率相依性的有向边组成. 有向边的尾部定义为父节点,而头部为子节点. 每个子节点 X_i 使用条件概率分布来列出其相对于父节点 $X_1^1, \dots, X_i^{n_i}$ 的所有可能的条件概率. 对于离散变量使用条件概率表来表示条件概率分布,而连续变量子节点则使用线性高斯模型函数计算见式(1).

$$(X_i | X_1^1, \dots, X_i^{n_i}) \sim N(b_0 + b_1 X_1^1 + \dots + b_{n_i} X_i^{n_i}, s^2) \quad (1)$$

式中, b_{n_i} 为 X_i 对第 n_i 个父节点的回归系数, s 为标准差. 贝叶斯网络定义了从全体节点的联合概率分布或全局概率分布到每个节点间的局部概率分布的因子化过程. 因子化由马尔科夫性质表示,即每个子节点的概率只依赖于父节点,关系式见式(2)和式(3):

$$P(X_1, X_2, \dots, X_n) = \prod_{i=1}^n P[X_i | \pi(X_i)] \quad (2)$$

$$\text{或 } f(X_1, X_2, \dots, X_n) = \prod_{i=1}^n f[X_i | \pi(X_i)] \quad (3)$$

式中, P 和 f 分别为离散变量和连续变量概率分布;

$\pi(X_i)$ 是节点 X_i 的父节点集合,若节点 X_i 没有父节点,则 $\pi(X_i) = P(X_i)$ 或 $f(X_i)$; $P[X_i | \pi(X_i)]$ 或 $f[X_i | \pi(X_i)]$ 是父子节点间的局部概率.

本研究首先通过相关性分析和文献信息确定贝叶斯网络基本结构,然后利用结构学习算法获得最优网络结构,并建立最终的贝叶斯网络结构. 结构学习算法选用的 tabu 搜索算法; 该算法是一种评分类亚启发式随机算法^[23],相较于其他算法,如约束类或评分-约束混合类算法,在贝叶斯网络结构建立的准确度和速度方面具有显著优势^[24].

1.6 数据处理

抗生素和亚硝胺数据利用 Masslynx 软件进行处理. 三卤甲烷质谱数据通过 MassHunter 软件进行处理. 采用 Excel 2010 和 Origin 2018 软件进行数据分析. ANOVA TEST ($\alpha = 0.05$) 通过 IBM SPSS Statistics 25 软件计算. 应用 Chao 指数、Shannon 指数和覆盖率进行微生物 α 多样性分析. 利用上海美吉生物医药科技有限公司信息平台,采用 Bray-

Curtis 距离算法,以样品平均层级聚类方法对微生物群落相对丰度进行聚类分析. 相关性分析和贝叶斯网络构建及分析使用 R-4.0.6 进行编译计算. 相关性分析利用 Pearson 相关系数衡量基本水质参数、抗生素、三卤甲烷和亚硝胺间相关性; 采用 Mantel 检验计算各微生物群落矩阵与各基本水质参数和微污染物之间的相关性.

2 结果与讨论

2.1 给水管网水质参数、抗生素和 DBPs 分布特征

给水管网水样为弱碱性 (pH 7.88 ~ 8.01), 各采样点水温稳定在 14.6 ~ 15.9℃ 之间, ρ (溶解氧) 范围为 9.82 ~ 10.01 mg·L⁻¹, 电导率范围 327 ~ 332 $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$. ρ (余氯) 和 ρ (总氯) 在泵房最高, 分别为 0.61 mg·L⁻¹ 和 0.72 mg·L⁻¹. 生活区管网 pH 略高于教学区, 其他基本水质参数在教学区和生活区未见明显差异 (ANOVA TEST, $P > 0.05$), 如表 1 所示.

表 1 给水管网各采样点基本水质参数

Table 1 Primary water quality parameters of the drinking water in each sampling site							
区域	地点	ρ (溶解氧) /mg·L ⁻¹	电导率 $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$	水温 /℃	pH	ρ (余氯) /mg·L ⁻¹	ρ (总氯) /mg·L ⁻¹
教学区	泵房	9.87	329	15.1	7.94	0.61	0.72
	教一	9.82	328	14.6	7.91	0.44	0.56
	教六	9.99	332	15.3	7.88	0.46	0.59
	理三	10.01	330	15.9	7.99	0.51	0.61
生活区	北超	9.96	331	15.2	7.90	0.58	0.70
	南食	9.90	327	15.4	7.99	0.56	0.68
	南八	9.83	329	14.8	8.01	0.54	0.65

饮用水样品中共检出 23 种抗生素. 由图 2 可见, 检出 ρ (抗生素) 为 47.92 ~ 210.33 ng·L⁻¹. 其中以氯四环素和甲烯土霉素为主的四环素类抗生素, 占总抗生素质量浓度的 68.6% ~ 85.6%. 氟喹诺酮类和磺胺类抗生素分别占 1.6% ~ 5.6% 和 0.1% ~ 12.6%. 检测出的氟喹诺酮类主要有培氟沙星和达诺沙星等, 而磺胺类抗生素主要为磺胺甲基嘧啶、磺胺二甲嘧啶和磺胺间甲氧嘧啶等. 以脱水红霉素和罗红霉素为主的大环内酯类占 1.0% ~ 12.8%. 除四环素类抗生素外, 其它各类抗生素质量浓度略低于国内饮用水抗生素水平^[25]. 抗生素在教学区和生活区间未发现显著性差异 ($P > 0.05$).

对饮用水中 4 种三卤甲烷和 9 种亚硝胺进行检测, 其中三卤甲烷类 DBPs 包括三氯甲烷 (trichloromethane, TCM)、二氯一溴甲烷 (bromodichloromethane, BDCM)、一氯二溴甲烷 (dibromochloromethane, DBCM) 和三溴甲烷 (tribromomethane, TBM); 亚硝胺包括 *N*-亚硝基甲基乙基胺 (*N*-nitrosomethylamine, NMEA)、*N*-亚硝基

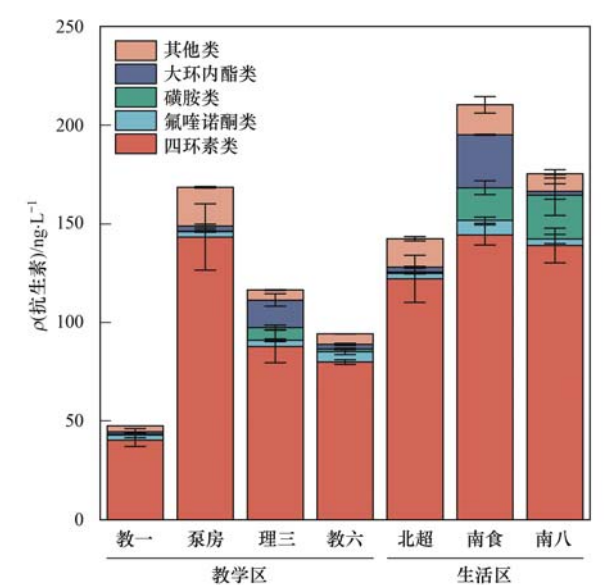


图 2 给水管网末端出水中抗生素的空间质量浓度分布

Fig. 2 Spatial distribution of the antibiotics mass concentrations in the drinking water distribution system

二甲胺 (*N*-nitrosodimethylamine, NDMA)、*N*-亚硝基吡咯烷 (*N*-nitrosopyrrolidine, NPYR)、*N*-亚硝基二乙

胺(*N*-nitrosodiethylamine, NDEA)、*N*-亚硝基二正丙胺(*N*-nitrosodi-*n*-propylamine, NDPA)、*N*-亚硝基哌啶(*N*-nitrosopiperidine, NPIP)、*N*-亚硝基二正丁胺(*N*-nitrosodi-*n*-butylamine, NDBA)、*N*-亚硝基吗啉(*N*-nitrosomorpholine, NMOR)和*N*-亚硝基二苯胺(*N*-nitrosodiphenylamine, NDPhA). 除 TBM、NDEA、NDPA 和 NDBA 外,其他物质均有检出.

如图 3 所示,三卤甲烷质量浓度高于亚硝胺质量浓度. $\rho(\text{TCM})$ 、 $\rho(\text{BDCM})$ 和 $\rho(\text{DBCM})$ 平均值分别为 (15.97 ± 3.40) 、 (6.71 ± 1.40) 和 $(1.96 \pm 0.36) \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,均未超过国家标准限值^[26]. 此外,亚

硝胺中 $\rho(\text{NDMA})$ 最高,为 $(22.20 \pm 13.24) \text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$,紧随之后的是 $\rho(\text{NMEA})$ [$(2.94 \pm 1.78) \text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$]、 $\rho(\text{NPIP})$ [$(0.98 \pm 0.60) \text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$]、 $\rho(\text{NMOR})$ [$(0.78 \pm 0.33) \text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$]和 $\rho(\text{NPYR})$ [$(0.50 \pm 0.17) \text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$]. 所有样品中 $\rho(\text{NDPhA})$ 均小于 $0.10 \text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$. 本研究区域亚硝胺平均质量浓度与我国某中部城市饮用水中实测亚硝胺浓度^[27]相当. 在空间分布上,教学区内三卤甲烷平均质量浓度较高,而亚硝胺相反,但空间差异性不显著(ANOVA TEST, $P > 0.05$). DBPs 在两区域内的浓度变化可能由生活区和教学区的用水量和水力停留时间差异造成^[28].

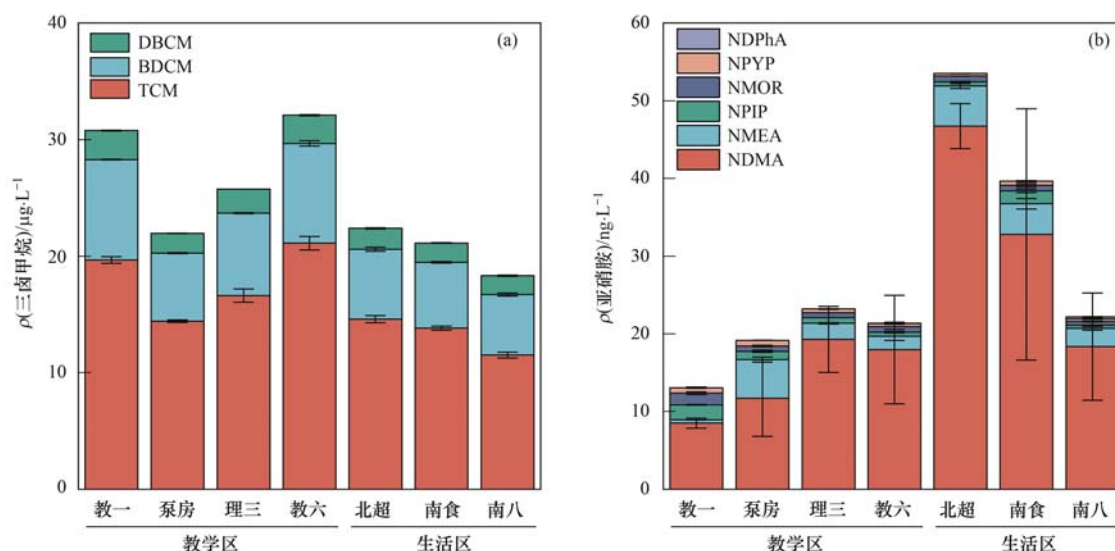


图 3 给水管网末端出水中三卤甲烷和亚硝胺的空间质量浓度分布

Fig. 3 Spatial distribution of the trihalomethane and nitrosamine mass concentrations in the drinking water distribution system

2.2 微生物群落多样性和组成结构

根据给水管网微生物群落的 α 多样性分析(表 2),泵房的 Chao 和 Shannon 指数普遍很高,说明管网集中流动区域具有较高的微生物群落复杂度和群落稳定性. 空间分布上,教学区的 Shannon 指数基本高于生活区,反映教学区管网中微生物具有更高的群落多样性.

表 2 给水管网各采样点 α 多样性指数

Table 2 The α diversity index for the drinking water in each sampling point

区域	地点	Chao 指数	Shannon 指数	覆盖率
教学区	泵房	114.00 ± 26.57	1.33 ± 0.01	0.999 6
	教一	94.50 ± 9.88	1.17 ± 0.01	0.999 8
	教六	105.15 ± 4.42	0.85 ± 0.01	0.999 9
	理三	62.00 ± 8.57	1.07 ± 0.01	0.999 9
生活区	北超	81.06 ± 11.30	0.75 ± 0.01	0.999 7
	南食	79.00 ± 8.57	0.88 ± 0.01	0.999 9
	南八	123.33 ± 8.32	0.97 ± 0.01	0.999 8

调查区内共发现 236 种细菌物种(OTU),其中泵房、教学区和生活区共有 OTU 97 种,采样点间共

有 OTU 为 30 种. 如图 4(a)所示,在微生物的门分类水平上, Proteobacteria 为所有样品中最主要的菌门,占 86.6%~97.4%,这与已报道的给水管网微生物多样性研究结论相同^[8,29]. 此外,管网中含有较多的 Cyanobacteria (1.9%~12.6%)、Actinobacteriota (0.3%~3.9%)和 Firmicutes (0.1%~1.0%). 在 Proteobacteria 中 Rhizobiales、Caulobacteriales 和 Sphingomonadales 为优势菌目[图 4(b)],而 Cyanobacteria 的优势菌目为 Obscuribacteriales. 所有样品中, Rhizobiales 相对丰度最高(58.2%~85.3%),在空间分布上, Rhizobiales 在生活区的相对丰度要高于教学区. Caulobacteriales 发现在教学区的相对丰度为 9.5%~34.9%,高于生活区(2.2%~14.4%). 通过图 4(c)层级聚类分析结果可见,微生物群落相对丰度在教学区和生活区具有差异性,但整体微生物群落结构分布的差异性变化较小.

2.3 DBPs 生成因素的贝叶斯网络

构建贝叶斯网络需首先通过 Pearson 相关性分析和文献信息确定基础网络. 如图 5(a)所示,四环

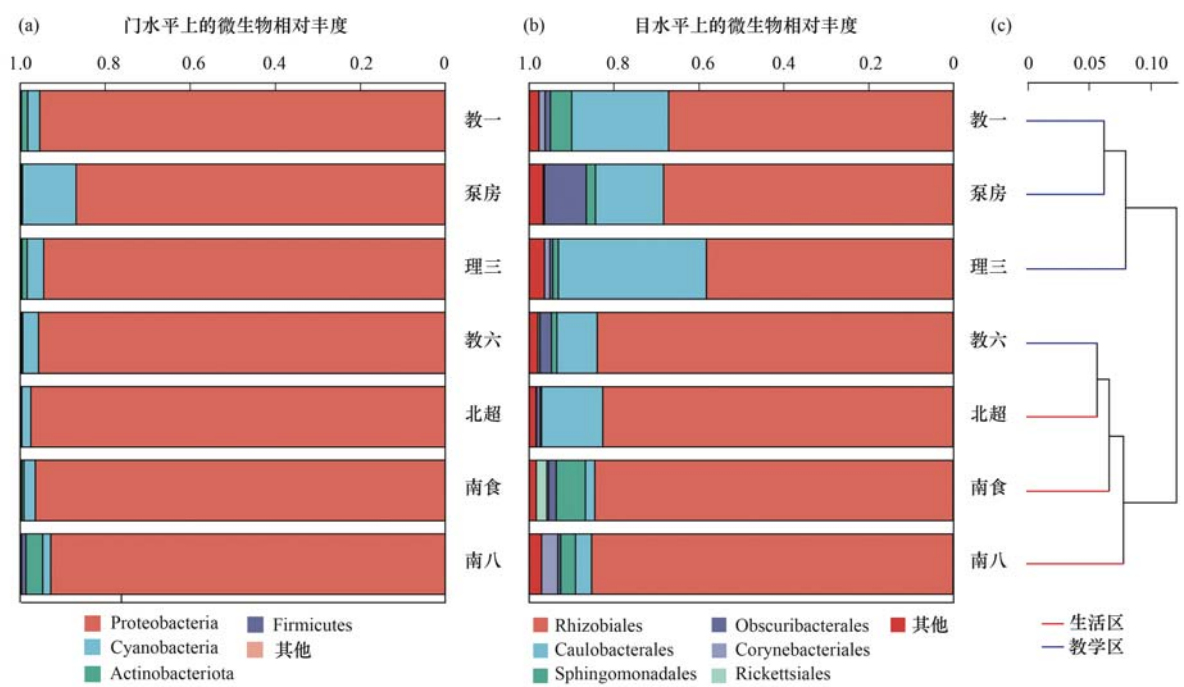


图 4 门和目水平上的微生物相对丰度和微生物群落的层级聚类分析

Fig. 4 Relative abundance of the microbial phyla and orders with Bray-Curtis distancing cluster analysis of microbial community in drinking water distribution systems of the study area

素类抗生素与余(总)氯正相关,与三卤甲烷显著负相关($P < 0.05$). 左下角连线图为微生物群落与抗生素、基本水质参数的距离矩阵 Mantel 相关性检验. 结果显示 *Caulobacterales* 与氟喹诺酮类和磺胺类抗生素有显著相关性($P < 0.05$). 基于 Pearson 相关性分析和 Mantel 检验,利用 tabu 网络结构学习算法寻找最优贝叶斯网络结构,完善多层关联性信息. 考虑到基本水质参数在样品间的差异性较小,除余(总)氯外,贝叶斯网络将忽略其他基本水质参数如 pH,水温等环境因素关联性. 图 5(b)显示了以 DBPs 作为目标的贝叶斯网络结构. 网络分成了 4 层,分别为实测余(总)氯质量浓度(第一层)、抗生素质量浓度(第二层)、微生物群落丰度(第三层)和 DBPs 质量浓度(第四层).

第一层贝叶斯网络提示,余氯与三卤甲烷和四环素类抗生素关联,与实验结论一致,即氯四环素容易发生氯化反应并生成三氯甲烷^[30,31]. 此外,余氯仅与三卤甲烷关联,与亚硝胺无关联,符合基于实验得出的亚硝胺与余氯投加量无相关性的结论^[32]. 第二层网络显示,磺胺类和大环内酯类抗生素均与三卤甲烷直接相关. 这一结果已得到多项实验研究证实,即大环内酯类和磺胺类等抗生素会与氯消毒剂发生氧化还原反应,产生大量 DBPs^[33,34]. 其中磺胺类抗生素含有靠近苯环的氧、氮类基团,具有较强的氯反应活性,因此更容易生成三卤甲烷等 DBPs^[35]. 贝叶斯网络还发现四环素类抗生素与亚硝

胺具有关联性. 前期调查发现,四环素在氯和氯胺化条件下是亚硝胺的潜在前体物^[3,36]. 需要指出的是,给水管网中抗生素的质量浓度较低(处于 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 水平),而且四环素类抗生素的亚硝胺转化率和磺胺类抗生素的三氯甲烷转化率分别约为 1% 和 6%^[3,5],这说明给水管网中抗生素氯化产生的 DBPs 质量浓度有限,仅是给水管网中 DBPs 生成的因素之一.

抗生素不仅是 DBPs 前体物,而且会选择性抑制微生物菌群,改变微生物群落在管网饮用水中的结构分布^[37]. 贝叶斯网络发现了抗生素与 *Caulobacterales* 和 *Corynebacteriales* 丰度间的关联性. 值得注意的是,采样点余氯变化波动小且并未发现与微生物丰度有关联,说明余氯在给水管网中的空间差异性对微生物群落组成的影响有限.

除了抗生素以外,微生物有机质也是 DBPs 的重要前体物之一. 微生物胞外聚合物中的色氨酸类物质被发现与多种 DBPs 具有很显著的正相关性($R^2_{\min} \geq 0.76$, $P < 0.05$)^[38]. 微生物有机质会受到微生物群落结构影响,因此微生物群落丰度会间接与 DBPs 关联. 第三层贝叶斯网络发现 *Caulobacterales* 和 *Obscuribacterales* 与亚硝胺具有相关性; *Corynebacteriales* 与三卤甲烷显著相关. 有研究证实^[29,39],以 *Caulobacterales* 为代表的 *Proteobacteria* 和以 *Corynebacteriales* 为代表的 *Actinobacteria* 是建立管网生物膜结构并影响胞外聚合物的化学组分的

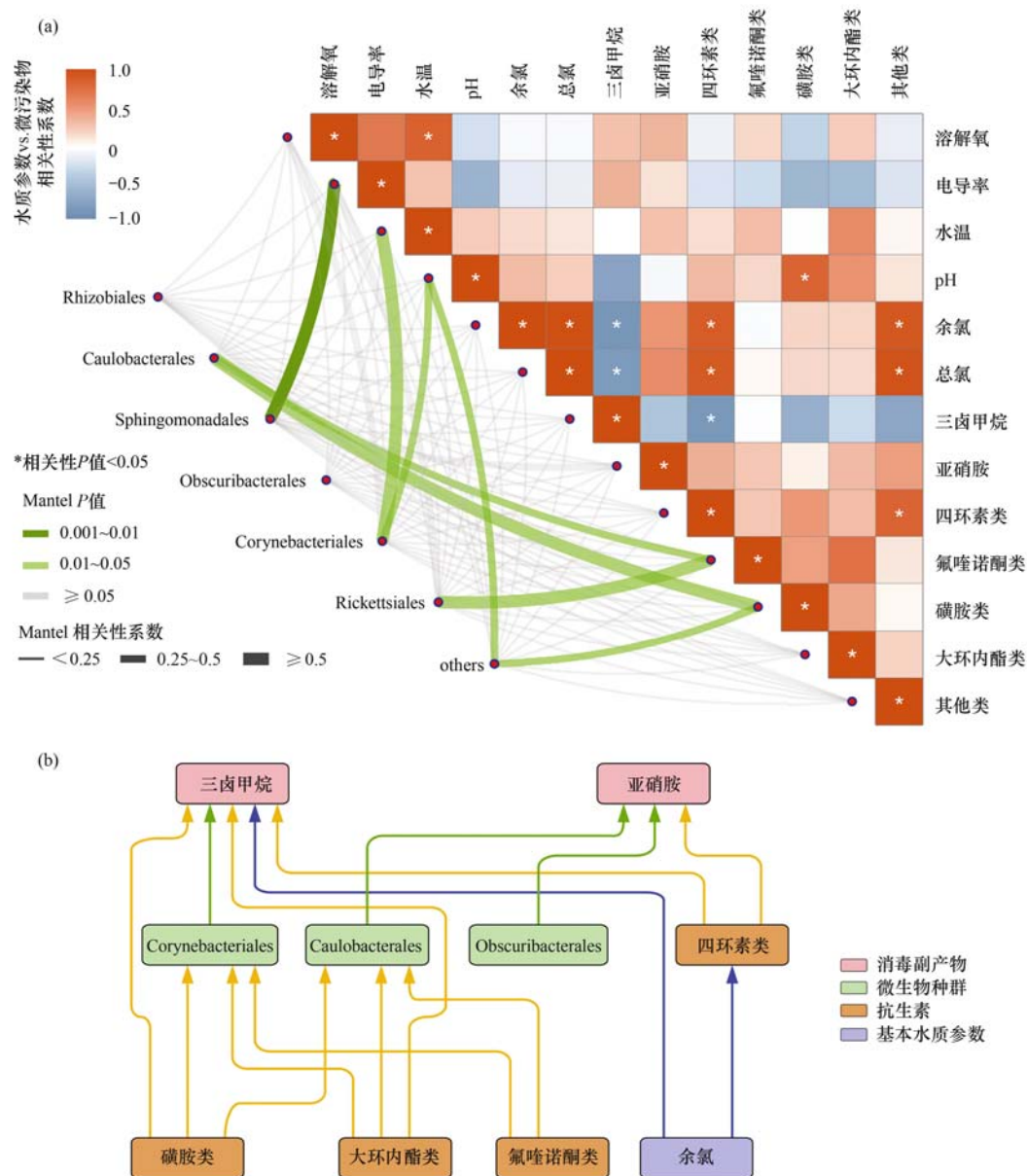


图5 给水管网目水平上的消毒副产物、微生物目水平丰度、抗生素和管网基本水质参数的相关性分析和贝叶斯网络

Fig. 5 Correlation analysis and Bayesian network structure corresponding to DBPs, abundance of the microbial orders, antibiotics, and basic water quality parameters

重要菌种. 其次, Obscuribacteriales 作为蓝藻菌门微生物, 会产生胞内和胞外藻类有机物, 是水环境中重要的 DBPs 前体物^[40]. 由于微生物结构组成复杂, 通过贝叶斯网络挖掘管壁生物膜中重点菌群, 可为进一步分析管网生物膜对 DBPs 生成贡献提供参考.

3 结论

(1) 给水管网中三卤甲烷、亚硝胺、抗生素质量浓度空间上未发现明显差异. ρ (三卤甲烷)、 ρ (亚硝胺) 和 ρ (抗生素) 分别为 $18.33 \sim 32.09 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $13.08 \sim 53.50 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $47.92 \sim 210.33 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$.

(2) Rhizobiales 和 Caulobacteriales 为调查区域

给水管网的优势菌目. 由于管网的水力条件变化, 微生物群落丰度具有空间分布差异性.

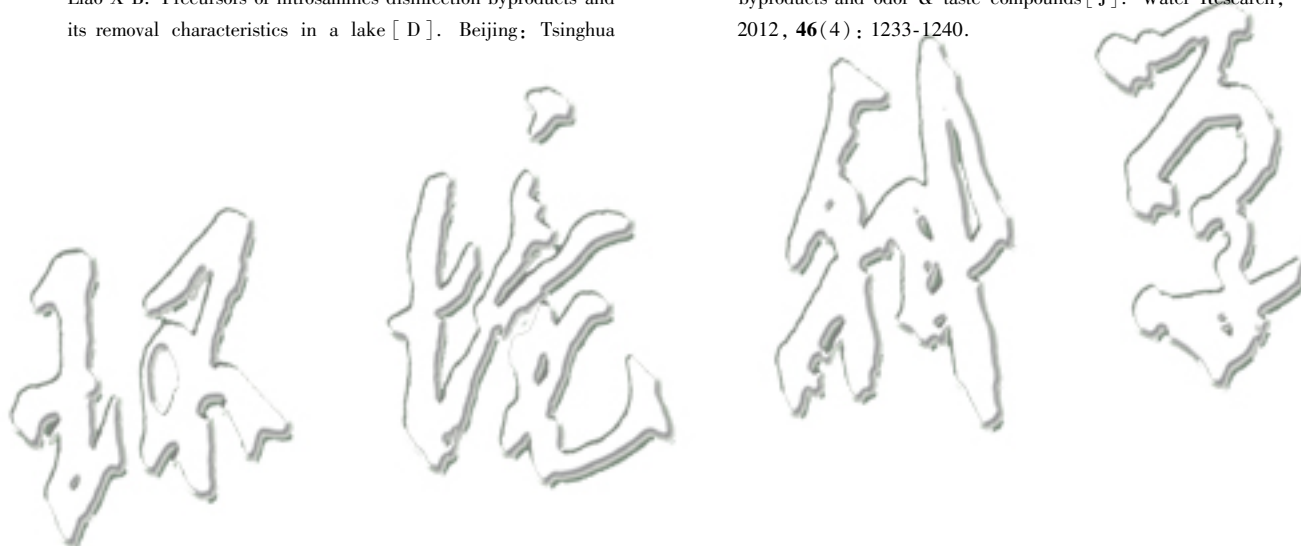
(3) 基本水质参数、抗生素质量浓度、微生物群落组成和 DBPs 质量浓度之间具有层次、有向性的网络结构. 四环素类、磺胺类和大环内酯类抗生素与三卤甲烷相关, 氟喹诺酮与亚硝胺相关. Caulobacteriales 和 Corynebacteriales 丰度均受抗生素赋存水平影响. 同时, Caulobacteriales 和 Obscuribacteriales 与亚硝胺生成相关, Corynebacteriales 与三卤甲烷生成显著相关.

参考文献:

[1] Diana M, Felipe-Sotelo M, Bond T. Disinfection byproducts potentially responsible for the association between chlorinated drinking water and bladder cancer: a review [J]. Water

- Research, 2019, **162**: 492-504.
- [2] Ding S K, Deng Y, Bond T, *et al.* Disinfection byproduct formation during drinking water treatment and distribution: a review of unintended effects of engineering agents and materials [J]. *Water Research*, 2019, **160**, 313-329.
- [3] Shen R Q, Andrews S A. Demonstration of 20 pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) as nitrosamine precursors during chloramine disinfection [J]. *Water Research*, 2011, **45** (2): 944-952.
- [4] Lemus Pérez M F, Rodríguez Susa M. Exopolymeric substances from drinking water biofilms: dynamics of production and relation with disinfection by products [J]. *Water Research*, 2017, **116**: 304-315.
- [5] 董飞龙. 供水管网残留磺胺类迁移转化及消毒副产物生成机理研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2020
Dong F L. Sulfonamides degradation and disinfection byproducts formation in a pilot-scale water distribution system [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2020.
- [6] 鲁金凤, 王斌, 廖洋, 等. 水环境中残留抗生素的消毒副产物问题最新研究进展[J]. *中国给水排水*, 2020, **36**(4): 6-12.
Lu J F, Wang B, Liao Y, *et al.* Latest research progress on the disinfection by-products of residual antibiotics in water environment [J]. *China Water & Wastewater*, 2020, **36**(4): 6-12.
- [7] Li R A, McDonald J A, Sathasivan A, *et al.* Disinfectant residual stability leading to disinfectant decay and by-product formation in drinking water distribution systems: a systematic review [J]. *Water Research*, 2019, **153**: 335-348.
- [8] 沈怡. 微污染物对饮用水管中微生物群落和条件致病菌的影响[D]. 苏州: 苏州科技大学, 2017.
Shen Y. Effects of micro-pollutants on microbial community and pathogenic bacteria in drinking water network [D]. Suzhou: Suzhou University of Science and Technology, 2017.
- [9] Khan S, Beattie T K, Knapp C W. Relationship between antibiotic-and disinfectant-resistance profiles in bacteria harvested from tap water [J]. *Chemosphere*, 2016, **152**: 132-141.
- [10] Wang Z K, Choi O, Seo Y. Relative contribution of biomolecules in bacterial extracellular polymeric substances to disinfection byproduct formation [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(17): 9764-9773.
- [11] Wang Z K, Hessler C M, Xue Z, *et al.* The role of extracellular polymeric substances on the sorption of natural organic matter [J]. *Water Research*, 2012, **46**(4): 1052-1060.
- [12] Simões L C, Simões M, Vieira M J. Intergeneric coaggregation among drinking water bacteria: evidence of a role for *Acinetobacter calcoaceticus* as a bridging bacterium [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2008, **74**(4): 1259-1263.
- [13] Liu A, Wijesiri B, Hong N, *et al.* Understanding re-distribution of road deposited particle-bound pollutants using a Bayesian Network (BN) approach [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2018, **355**: 56-64.
- [14] 王军, 周伟达. 贝叶斯网络的研究与进展[J]. *电子科技*, 1999, (15): 6-7.
- [15] Yu T, Man Q P, Wang Y W, *et al.* Evaluating different stakeholder impacts on the occurrence of quality defects in offsite construction projects: a Bayesian-network-based model [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, **241**, doi: 10.1016/j.jclepro.2019.118390.
- [16] Wijesiri B, Liu A, Deilami K, *et al.* Nutrients and metals interactions between water and sediment phases: an urban river case study [J]. *Environmental Pollution*, 2019, **251**: 354-362.
- [17] Wijesiri B, Liu A, He B, *et al.* Behaviour of metals in an urban river and the pollution of estuarine environment [J]. *Water Research*, 2019, **164**, doi: 10.1016/j.watres.2019.114911.
- [18] Miranda L S, Wijesiri B, Ayoko G A, *et al.* Water-sediment interactions and mobility of heavy metals in aquatic environments [J]. *Water Research*, 2021, **202**, doi: 10.1016/j.watres.2021.117386.
- [19] Li Y X, Jia Z L, Wijesiri B, *et al.* Influence of traffic on build-up of polycyclic aromatic hydrocarbons on urban road surfaces: a Bayesian network modelling approach [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **237**: 767-774.
- [20] Aguilera P A, Fernández A, Fernández R, *et al.* Bayesian networks in environmental modelling [J]. *Environmental Modelling & Software*, 2011, **26**(12): 1376-1388.
- [21] 魏晓东, 刘叶新, 周志洪, 等. 广州典型排放源废水中抗生素的污染特征和去除效果[J]. *华南师范大学学报(自然科学版)*, 2018, **50**(1): 11-20.
Wei X D, Liu Y X, Zhou Z H, *et al.* Occurrence and removal of antibiotics from wastewater of typical emission sources in Guangzhou, China [J]. *Journal of South China Normal University (Natural Science Edition)*, 2018, **50**(1): 11-20.
- [22] EPA/600/R-05/054, EPA Method 521 Determination of nitrosamines in drinking water by solid phase extraction and capillary column gas chromatography with large volume injection and chemical ionization tandem mass spectrometry (MS/MS) [S].
- [23] Glover F, Laguna M. Tabu search. In: Pardalos P, Du D Z, Graham R. *Handbook of Combinatorial Optimization* [M]. New York, NY: Springer, 2013.
- [24] Scutari M, Graafland C E, Gutiérrez J M. Who learns better Bayesian network structures: accuracy and speed of structure learning algorithms [J]. *International Journal of Approximate Reasoning*, 2019, **115**: 235-253.
- [25] Ben Y J, Hu M, Zhang X Y, *et al.* Efficient detection and assessment of human exposure to trace antibiotic residues in drinking water [J]. *Water Research*, 2020, **175**, doi: 10.1016/j.watres.2020.115699.
- [26] GB 5749-2006, 生活饮用水卫生标准[S].
- [27] Luo Q, Bei E, Liu C, *et al.* Spatial, temporal variability and carcinogenic health risk assessment of nitrosamines in a drinking water system in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **736**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.139695.
- [28] Guilherme S, Rodriguez M J. Short-term spatial and temporal variability of disinfection by-product occurrence in small drinking water systems [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **518-519**: 280-289.
- [29] Siedlecka A, Wolf-Baca M, Piekarska K. Microbial communities of biofilms developed in a chlorinated drinking water distribution system: a field study of antibiotic resistance and biodiversity [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **774**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.145113.
- [30] Ye Z X, Shao K L, Huang H, *et al.* Tetracycline antibiotics as precursors of dichloroacetamide and other disinfection byproducts during chlorination and chloramination [J]. *Chemosphere*, 2021, **270**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.128628.
- [31] Zhou S Q, Shao Y S, Gao N Y, *et al.* Chlorination and chloramination of tetracycline antibiotics: disinfection by-products formation and influential factors [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2014, **107**: 30-35.

- [32] Duan X C, Liao X B, Chen J F, *et al.* THMs, HAAs and NAs production from culturable microorganisms in pipeline network by ozonation, chlorination, chloramination and joint disinfection strategies[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **744**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140833.
- [33] Wang H L, Shi W Y, Ma D F, *et al.* Formation of DBPs during chlorination of antibiotics and control with permanganate/bisulfite pretreatment[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, **392**, doi: 10.1016/j.cej.2019.123701.
- [34] Chamberlain E, Adams C. Oxidation of sulfonamides, macrolides, and carbadox with free chlorine and monochloramine [J]. *Water Research*, 2006, **40**(13): 2517-2526.
- [35] Chu W H, Gao N Y, Krasner S W, *et al.* Formation of halogenated C-, N-DBPs from chlor(am)ination and UV irradiation of tyrosine in drinking water [J]. *Environmental Pollution*, 2012, **161**: 8-14.
- [36] 廖晓斌. 某湖泊水中亚硝胺类消毒副产物前体物及其去除特性研究[D]. 北京: 清华大学, 2014.
- Liao X B. Precursors of nitrosamines disinfection byproducts and its removal characteristics in a lake [D]. Beijing: Tsinghua University, 2014.
- [37] 赵晓菲. 饮用水中典型 PPCPs 的检测及其对细菌群落结构的影响[D]. 天津: 天津大学, 2018.
- Zhao X F. Detection of typical PPCPs in drinking water and its effect on bacterial community structure [D]. Tianjin: Tianjin University, 2018.
- [38] Li L, Jeon Y, Ryu H, *et al.* Assessing the chemical compositions and disinfection byproduct formation of biofilms: application of fluorescence excitation-emission spectroscopy coupled with parallel factor analysis [J]. *Chemosphere*, 2020, **246**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.125745.
- [39] Peng Y K, Li J, Lu J L, *et al.* Characteristics of microbial community involved in early biofilms formation under the influence of wastewater treatment plant effluent [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **66**: 113-124.
- [40] Li L, Gao N Y, Deng Y, *et al.* Characterization of intracellular & extracellular algae organic matters (AOM) of *Microcystis aeruginosa* and formation of AOM-associated disinfection byproducts and odor & taste compounds [J]. *Water Research*, 2012, **46**(4): 1233-1240.



CONTENTS

Analysis of Change and Driving Factors of PM _{2.5} Mass Concentration in Tianjin from 2000 to 2020	CAI Zi-ying, HAO Jian, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (1129)
Characteristics and Sources of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Tianjin	XIAO Zhi-mei, XU Hong, GAO Jing-yun, <i>et al.</i> (1140)
Source Analysis of Ambient PM _{2.5} in Wuhan City Based on Random Forest Model	ZHANG Zhi-hao, CHEN Nan, ZHU Bo, <i>et al.</i> (1151)
Chemical Characteristics and Sources of Atmospheric Aerosols in the Surrounding District of a Heavily Polluted City in the Southern Part of North China	REN Xiu-long, HU Wei, WU Chun-miao, <i>et al.</i> (1159)
Characteristics of Water-soluble Ions in an Autumn Haze Process in the Southern Sichuan Urban Agglomeration After the Implementation of China's Air Pollution Prevention and Control Action Plan	WU An-nan, HUANG Xiao-juan, HE Ren-jiang, <i>et al.</i> (1170)
Concentration, Source, and Health Risk Assessment of PM ₁ Heavy Metals in Typical Pollution Processes in Zhengzhou	ZHAI Shi-ting, WANG Shen-bo, ZHANG Dong, <i>et al.</i> (1180)
Geographical Detection of Spatial Heterogeneity and Drivers of PM _{2.5} in the Yangtze River Economic Belt	WANG Li-li, LIU Xiao-jie, LI Ding, <i>et al.</i> (1190)
Spatial Heterogeneity of PM _{2.5} Concentration in Response to Land Use/Cover Conversion in the Yangtze River Delta Region	ZHOU Li-xia, WU Tao, JIANG Guo-jun, <i>et al.</i> (1201)
Analysis of Pollution Characteristics, Meteorological Impact, and Forecast Retrospective During the Spring Festival and the Lantern Festival in "2 + 26" Cities	ZHU Yuan-yuan, WANG Xiao-fei, WANG Wei, <i>et al.</i> (1212)
Pollution Characteristics and Influencing Factors of PM _{2.5} in Shanxi Province Based on Wavelet Transform	ZHANG Ke-ke, HU Dong-mei, YAN Yu-long, <i>et al.</i> (1226)
Estimation of Surface Ozone Concentration and Health Impact Assessment in China	ZHAO Nan, LU Yi-min (1235)
Analysis of Ozone Pollution Spatio-temporal Evolution Characteristics and Identification of Its Long-term Variation Driving Factor over Hunan Province	LIU Yan-yan, YANG Lei-feng, XIE Dan-ping, <i>et al.</i> (1246)
Temporal and Spatial Variation in O ₃ Concentration Near the Surface of Shandong Peninsula and Analysis of Potential Source Areas	LI Le, LIU Min-xia, XIAO Shi-ni, <i>et al.</i> (1256)
Characteristics, Ozone Formation Potential, and Source Apportionment of VOCs During the COVID-19 Epidemic in Xiong'an	LIU Xin-jun, WANG Shu-juan, LIU Cheng, <i>et al.</i> (1268)
Characteristics and Source Analysis of VOCs Pollution During the Period of Ozone Exceeding the Standard in Zibo City	WANG Shuai, WANG Xiu-yan, YANG Wen, <i>et al.</i> (1277)
Comparison of VOCs Pollution Characteristics Between an Urban Site and a Background Site in Summer in Zibo	QIN Tao, XU Bo, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (1286)
Emission Characteristics and Inventory of Volatile Organic Compounds from Cooking in Sichuan Province	QIAN Jun, HAN Li, CHEN Jun-hui, <i>et al.</i> (1296)
Emission Characteristics of Gas-and Particle-Phase Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from Cooking	LI Yuan-ju, WU Ai-hua, TONG Meng-xue, <i>et al.</i> (1307)
Diversity and Community Structure of Airborne Fungi in Different Working Areas of Composting Plants	YU Ao-yuan, XING Li-jun, SUN Xing-bin, <i>et al.</i> (1315)
Main Problems and Refined Solutions of Urban Fugitive Dust Pollution in China	LI Ting-kun, FENG Yin-chang, BI Xiao-hui, <i>et al.</i> (1323)
Water Quality Assessment and Spatial-temporal Variation Analysis in Yellow River Basin	LIU Yan-long, ZHENG Yi-an (1332)
Spatial Distribution and Influential Factors of Nutrients in Rivers of a Typical Mountainous City: A Case Study of the Qingshuixi River in Chongqing	WANG Chao, YE Qiu, JIA Bo-yang, <i>et al.</i> (1346)
River-Lake States in the Tributary of the Three Gorges Reservoir Area and Their Effects on the Phosphorus Content of Different Forms in the Sediment	HUANG Wei, ZHANG Xing, LUO Xiao-jiao, <i>et al.</i> (1356)
Molecular Signatures of Dissolved Organic Matter in the Paihe River and Its Tributaries	ZHAN Ya, YIN Hao, FENG Jing-wei, <i>et al.</i> (1365)
Multiphase Spatial Distribution Characteristics of Cd Morphology in Typical Intertidal Zones in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area and Its Influencing Factors	CUI Xin-yue, MO Wu-qiu, LIAO Jian-bo (1375)
Occurrence Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics in the Surface Water of Luoma Lake and Its Main Inflow Rivers	GONG Run-qiang, ZHAO Hua-jin, GAO Zhan-qi, <i>et al.</i> (1384)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Antibiotics in the Third Drain of Ningxia	LI Fu-juan, GAO Li, LI Ling-yun, <i>et al.</i> (1394)
Historical Changes and Responses to Human Activities of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Lake Sediments from Northern China During the Past 100 Years	GONG Xiong-hu, ZHAO Zhong-hua, DING Qi-qi, <i>et al.</i> (1404)
Characteristics of Bacterioplankton Community Between River and Lake/Reservoir in the Yangtze River Basin	HU Yu-xin, ZHANG Jing, HUANG Jie, <i>et al.</i> (1414)
Characteristics of Bacterial Community Structure in Wuliangs Lake During an Irrigation Interval in Hetao Plain	SHI Yu-jiao, LI Wen-bao, ZHANG Bo-yao, <i>et al.</i> (1424)
Effects of Landscape Structures on Bacterioplankton Communities at Multi-spatial Scales in the Yuanhe River	SHU Wang, WANG Peng, DING Ming-jun, <i>et al.</i> (1434)
Microbial Community Structure on Microplastic Surface in the <i>Grus leucogeranus</i> Reserve of Poyang Lake	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZOU Long, <i>et al.</i> (1447)
Influence of Microplastics on the Development of <i>Proteus</i> Biofilm	TAO Hui, QI Yi-ting, YU Duo, <i>et al.</i> (1455)
Deposition Law of Low-Density Microplastics Aggregation in Wuliangs Lake	LIU Yu, SHI Xiao-hong, ZHANG Sheng, <i>et al.</i> (1463)
Adsorption of Fulvic Acid on Virgin and Aging Microplastics	SONG Ya-li, YU Ya, ZHENG Lei, <i>et al.</i> (1472)
Diffusive Fluxes and Controls of N ₂ O from Coastal Rivers in Tianjin City	TANG Meng-yao, HU Xiao-kang, WANG Hong-wei, <i>et al.</i> (1481)
Effects of Hematite and Biochar Addition on Wastewater Treatment Efficiency, Greenhouse Gas Emission, and Microbial Community in Subsurface Flow Constructed Wetland	CHEN Xin-tong, HAO Qing-ju, XIONG Yan-fang, <i>et al.</i> (1492)
Identification and Optimization Method of Rainfall-Runoff Pollution Risk Level	QI Xiao-tian, ZHANG Zhi-ming, ZHAO Xin, <i>et al.</i> (1500)
Factor Analysis of Disinfection Byproduct Formation in Drinking Water Distribution Systems Through the Bayesian Network	JIANG Shan-shan, WANG Zhen-yu, GAO Quan, <i>et al.</i> (1512)
Selective Adsorption of Au(Ⅲ) by Activated Carbon Supported Polythioamides and Adsorption Mechanism	ZHAO Wen-jin, ZHANG Shun, AN Xiao-qi, <i>et al.</i> (1521)
Impacts of F/M Ratio on Microbial Networks in Activated Sludge	ZHANG Bing, SUN Chen-xiang, WEN Xiang-hua (1529)
Geochemical Characteristics and Source Apportionment of Soil Elements in an Urban-rural Integration Area: A Case Study in the Qinglong Area of Tianfu New District	LIU Shu-huai, WANG De-wei, SHI Ze-ming, <i>et al.</i> (1535)
Ecological and Health Risk Assessments Based on the Total Amount and Speciation of Heavy Metals in Soils Around Mining Areas	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi (1546)
Characteristics of Antimony Migration and Transformation and Pollution Evaluation in a Soil-Crop System Around a Tin Mine in Hunan Province	ZHANG Long, SONG Bo, HUANG Feng-yan, <i>et al.</i> (1558)
Effect of Controlling Heavy Metals in Soil of Rare Earth Mining Area by Biochar Supported Graphene Oxide	YANG Shi, LIU Zu-wen, LONG Bei, <i>et al.</i> (1567)
Enhanced Remediation of Cd Contaminated Soil by Cotton with DOM	MIN Tao, LUO Tong, CHEN Li-li, <i>et al.</i> (1577)
Novel Insight into the Adsorption Mechanism of Fe-Mn Oxide-Microbe Combined Biochar for Cd(Ⅱ) and As(Ⅲ)	LIAN Bin, WU Ji-zi, ZHAO Ke-li, <i>et al.</i> (1584)
Variations in Cadmium Accumulation and Transport and Ionic Traits Among Different Winter Wheat Varieties	LIU Chang, XU Ying-ming, HUANG Qing-qing, <i>et al.</i> (1596)
Cadmium Accumulation Characteristics of Different Heat Varieties Under Cadmium Stress	REN Chao, REN Yu-zhong, WANG Hao, <i>et al.</i> (1606)
Effect of Different Land Use Types on the Diversity of Soil Bacterial Community in the Coastal Zone of Jialing River	LIU Kun-he, XUE Yu-qin, ZHU Lan-ping, <i>et al.</i> (1620)
Effects of Earthworms/Biochar on Bacterial Diversity and Community in As-contaminated Red Soil	SU Qian-qian, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (1630)
Effects of DA-6 and EDDS on Growth and Cd Uptake by <i>Solanum nigrum</i> L. and on the Soil Bacterial Community Structure	LUO Yang, SUN Li, LIU Fang, <i>et al.</i> (1641)
Effects of Plastic Mulch Film on Soil Nutrients and Ecological Enzyme Stoichiometry in Farmland	HU Zhi-e, XIAO Mou-liang, WANG Shuang, <i>et al.</i> (1649)
Effects of Warming and Increased Precipitation on Soil Respiration of Abandoned Grassland in the Loess-Hilly Regions	WANG Xing, ZHONG Ze-kun, ZHU Yu-fan, <i>et al.</i> (1657)
Effect of Film Mulching, Straw Retention, and Nitrogen Fertilization on the N ₂ O and N ₂ Emission in a Winter Wheat Field	PENG Yi, LI Hui-tong, ZHANG Shao-wei, <i>et al.</i> (1668)
Effects of Straw Returning on Soil Ammonia Volatilization Under Different Production Conditions Based on Meta-analysis	ZHAO Zheng-xin, WANG Xiao-yun, TIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1678)
Impacts of Fertilization on Soil Antibiotic Resistance Genes Across Croplands: A Meta-Analysis	RAN Ji-wei, XIAO Qiong, HUANG Min, <i>et al.</i> (1688)