文章编号：1000-582X(2012)06-063-09

污泥龄对活性污泥处理微量磺胺类药物的影响

杨程[1]，郭劲松[1]，Belinda S. M. Sturm[2]，Rachael F. Lane[2]，
Craig D. Adams[2]，Ray E. Carter[2]

(1. 重庆大学 城市建设与环境工程学院，重庆 400045；
2. 美国堪萨斯大学 土木建筑与环境工程学院，美国堪萨斯州 劳伦斯 66045)

摘　要：为了研究污泥龄对活性污泥系统处理微量磺胺类药物(5 μg/L)的影响，共运行了 4 个试验室规模(3L)的序批式活性污泥反应器(SBR)，其污泥龄分别为 2、8、14、20 d。批次摇瓶试验通过设置 3 个工况(正常运行，加入生物抑制剂，无微生物)来讨论在 1 个运行周期(8 h)中对浓度为 5 μg/L磺胺甲恶唑的吸附作用、生物降解作用和挥发损失。试验结果显示对磺胺甲恶唑的总去除量为 2.14 ± 0.60 μg/g SS，吸附作用占总去除量的 63%；磺胺嘧啶为 1.14 ± 0.63 μg/g SS，83%；磺胺间二甲氧为 2.33± 0.67 μg/g SS，35%；磺胺甲基嘧啶为 2.45 ± 0.85 μg/g SS，55%；磺胺类药物的去除效果与污泥的污泥龄有着非常显著的关系($p<0.02$)。通过运行加入磺胺甲恶唑(进水 5 μg/L)的反应器 60 d，4 个反应器对磺胺甲恶唑的平均去除率分别为 10%、41%、51%、58%，处理效果随着污泥龄的增加而变好，同时单位污泥去除率随着污泥龄的增加而降低，SRT＝2 d 的反应器由于存在大量的丝状菌，使得单位污泥对磺胺甲恶唑去除率大大高于其他 3 个反应器。通过分子生物学分析，发现微生物群落结构的变化不大，从而说明了影响磺胺类药物处理效果的主要因素在于更强的吸附能力，更高的污泥浓度。

关键词：DGGE 活性污泥系统；磺胺类抗生素；磺胺甲恶唑；污泥龄；生物降解；生物吸附

中图分类号：X703　　**文献标志码**：A

Impact of sludge residence time on the relative biodegradation and biosorption of sulfonamide antibiotics in activated sludge

YANG Cheng[1]，*GUO Jin-song*[1]，*Belinda S. M. Sturm*[2]，
Rachael F. Lane[2]，*Craig D. Adams*[2]，*Ray E. Carter*[2]

(1. Department of Civil and Environmental Engineering, Chongqing University, Chongqing 400045, P. R. China; 2. Department of Civil, Environmental, and Architectural Engineering, University of Kansas, Lawrence, KS, USA 66045)

Abstract: Four sequencing batch reactors (SBR) are operated with sludge residence time (SRT) of 2, 8, 14, and 20 days to analyze the impact of SRT on removal of sulfanomide (5 μg/L). In batch experiments, three treatments (active biomass, inhibited biomass, and controls of no biomass) are performed in 100 mL batch reactors in triplicate that simulated one SBR cycle, and are investigated to distinguish biodegradation, biosorption, and volatilization losses, respectively. The results show that biomass removed an average 2.14

收稿日期：2012-01-08

基金项目：国家水专项资助项目(2009ZX07104-002；2009ZX07104-003)

作者简介：杨程(1982-) 男，重庆大学博士研究生，主要研究方向为水环境安全与污染控制。

郭劲松(联系人)，重庆大学教授，博士生导师，(E-mail)guo0768@vip.sohu.com。

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

±0.60 μg/g SS of sulfamethoxazole, 1.14±0.63 μg/g SS of sulfadiazine, 2.33±0.67 μg/g SS of sulfadimethoxine, 2.45±0.85 μg/gSS of sulfamerazine, with 63%, 83%, 35%, 55% of the removal respectively due to sorption. When SBRs (3 L total volume) are spiked continuously with 5 μg/L sulfamethoxazole for 60 days, 10%, 41%, 51%, 58% is removed with SRTs of 2d, 8d, 14d, 20d, respectively. Removal increased significantly with SRT, but the normalized mass removed per gram of biomass decreases. Growth of filamentous organisms with a 2-d SRT increases the sorption capacity of this sludge, although biodegradation is the dominant mechanism for removal. Higher biomass concentrations established by longer SRTs are more significant for biodegradation than species diversity, which do not vary with SRT. As wastewater treatment plants implement longer SRTs for nutrient removal, they will also achieve improved removal of some pharmaceuticals.

Key words: activated sludge process; biodegradation; biosorption; DGGE; sulfonamide; sulfamethoxazole; SRT

近几年来,药物尤其是抗生素在环境中的积累及其潜在危害越来越得到国内外广大学者的关注[1]。人体的排泄物含有大量未降解的抗生素[2],另外部分保管不善的抗生素也通过下水道进入污水处理厂。污水处理厂在抗生素环境循环中具有重要意义,一方面污水处理厂是抗生素污染的受纳体,另一方面污水处理厂对抗生素的处理效果不好[3-4],造成大量残余抗生素进入自然水体,从而引发潜在危害。中国是抗生素的生产和使用大国,抗生素滥用现象非常严重,所以对于这一方面的研究迫在眉睫。目前国内外对其的研究主要集中在抗生素的污染现状[5-7],污水厂各个处理设备的处理效果上[8-10],而且研究表明污水处理厂并不能完全去除抗生素类药物[11-12],而如何优化工艺以提高处理效果的相关报道还相对较少。

针对目前国内外最常用的磺胺类广谱抗生素,探寻活性污泥系统优化方向,研究吸附作用、生物降解作用、微生物群落结构的变化对不同污泥龄的活性污泥处理磺胺类抗生素所起到的作用。

1 材料与方法

1.1 反应器运行

试验共构筑4个污泥龄(SRT)分别运行在2、8、14、20 d的序批式活性污泥反应器(SBR),反应器共运行了470 d。装置使用长宽比为0.5的有机玻璃制成。污泥体积为3 L;每个运行周期为8 h,分别为进水和厌氧阶段1 h(使用磁力搅拌器搅拌),好氧阶段6 h(空气流量3 L/min),沉淀50 min,排水10 min;体积交换比为0.5,故水力停留时间为16 h。反应器的运行由可编程式定时器控制(XT Table Top, ChronTrol Corp., San Diego, CA),使用蠕动泵(Masterflex, Cole-Parmer, Vernon Hills, IL)进行进水、排水和排泥。进水COD为420±60 mg/L,C∶N∶P质量比控制在100∶5∶1[13]。

活性污泥取自试验室当地污水处理场(劳伦斯,堪萨斯州,美国),污泥取回后放入反应器中使用人工配水进行驯化,经过1周的时间,将4个反应器的污泥混合后再重新分配,驯化期结束,开始正式培养。培养开始后33~410 d,污泥龄分别运行在8、14、20 d的3个SBR反应器运行稳定,污泥龄2 d的反应器部分丝状菌膨胀。反应器运行指标见表1。

1.2 批次试验设计

为了研究活性污泥系统在处理磺胺类药物(见表2)中生物吸附和生物降解分别起到的作用,同时不影响反应器的运行,批次试验将分别收集不同反应器的污泥,并置入烧瓶内模拟反应器的运行。每个烧瓶内反应体积共100 mL,50 mL污泥和50 mL人工配水。收集足够一次试验使用的5种污泥(SRT=2 d,8 d,14 d,20 d和当地污水处理厂的污泥SRT=5 d),分别稀释到MLSS为2 g/L的浓度,并同时测试MLSS,确保正确的污泥浓度。试验共分3个工况,1)模拟加入药品后的常规活性污泥处理过程,50 mL污泥、50 mL人工配水和加入一定量的磺胺类药物(最终浓度达到浓度5 μg/L)。2)加入50 μm/L生物抑制剂羰基氰化物间氯苯腙(CCCP)的活性污泥处理过程,CCCP是一种ATP抑制剂,其作用机理是使电子载体在电子传递链的正常活动下形成的质子浓度梯度解耦联化,这种化学物质实质上是降低了细胞新陈代谢的能力。为了验证CCCP对细胞新陈代谢的抑制作用,进行了不同CCCP浓度下活性污泥的耗氧速率(OUR)的试验。如图1所示,随着浓度的增加CCCP能明显抑制细胞新陈代谢的能力,在50 μm/L的浓度下能基本抑制细胞的新陈代谢。3)空白样,污泥中只加入

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

去离子水和一定浓度的药物，用于研究药物的挥发损失。整个批次试验完整模拟反应器的 1 个周期，包括 1 h 的缺氧混合阶段，6 h 的好氧阶段，50 min 的沉淀阶段，时间从污泥加入 50 mL 配水和相关药物后开始计时，样品将在分别注入药物时和沉淀结束后取样，过滤后使用 LC/MS/MS 进行分析。

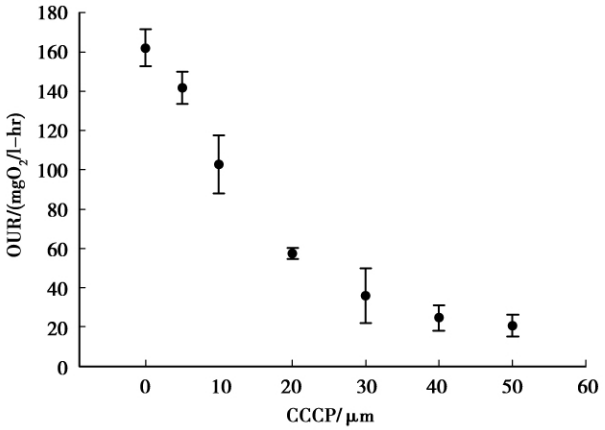


图 1　不同 CCCP 浓度下活性污泥的 OUR 变化

1.3　磺胺甲恶唑处理小试试验设计

批次试验揭示了活性污泥法在 1 个运行周期内去除微量磺胺类药物的能力，但是尚未知晓长期暴露在微量磺胺类药物下的活性污泥系统对其的去除效果，小试将有助于了解活性污泥系统是否能够适应微量磺胺类药物的长期存在，从而提高去除效果。经过前期饮用水源的监测和批次试验的筛选，决定选择磺胺甲恶唑(SMXL)进行深入研究。为了达到这一目的，配水将在维持原配方不变的情况下加入磺胺甲恶唑，使其浓度达到 5 μg/L。加入磺胺甲恶唑的反应器共运行 60 d，同时监测运行情况，生物群落的变化和磺胺甲恶唑的去除效果。通过对取样周期前一个周期的出水浓度，取样周期的出水浓度和进水浓度的监测和计算，从而得到准确的磺胺甲恶唑去除率。

1.4　测试方法

使用药品：磺胺类药物，磺胺甲恶唑(SMXL)、磺胺甲基嘧啶(SMRN)、磺胺嘧啶(SDZN)、磺胺间二甲氧(SDMX)、购自 Sigma Aldrich (St. Louis, MO)，内标物质磺胺甲恶唑－D4(SMXL-D4)购自 Toronto Research Chemicals (Ontario, Canada)，各种药物的储备液浓度为 1000 or 10 mg/L (SDZN)，并避光储存在－4 ℃环境中，储存时间不超过 1 个月。所有水样上机前均需 0.2 μm 尼龙滤膜过滤，根据预备试验结果显示，经过过滤，浓度损失不超过 30%，可以满足要求。在测试磺胺类药物时，内标物质磺胺甲恶唑－D4 将在过滤后上机前定量加入。

HPLC-MS-MS 条件：HPLC 为岛津产(Columbia, MD)，型号为 LC-20AB 和型号为 SIL-20A 的自动进样器，使用 Luna C18 (2) column, 150 mmx 3.0 mm, 3 － μm (Phenomenex, Torrance, CA)的色谱柱来进行磺胺类药物的组分分离。流动相：(A)0.1%甲酸的水溶液，(B)0.1%甲酸的乙腈溶液，流速 0.4 mL/min，进样量 25 μL。对于质谱的 ESI 正离子模式的梯度洗脱方法，保持 5%B 溶液 3 min，然后线性增加在 15 min 时到 100%。保持 1.5 min，最后线性递减在 18 min 时回到 5%。联用质谱为 SciEx Applied Biosystems 产型号为 API 4000Q(Foster City, CA)。ESI 源使用高纯氮气，MS 参数如表 1 所示。

表 1　进水中加入 5 μg/L 磺胺甲恶唑前后反应器运行情况变化

参　数	SRT 2-d		SRT 8 d		SRT 14 d		SRT 20-d	
	－SMXL	＋SMXL	－SMXL	＋SMXL	－SMXL	＋SMXL	－SMXL	＋SMXL
MLSS/(g·L^{-1})	0.36	0.37	1.15	1.52	1.61	1.80	1.93	3.08
	(0.14)	(0.14)	(0.31)	(0.19)	(0.20)	(0.27)	(0.39)	(1.22)
COD 去除率/%	87	92	88	92	88	92	87	92
	(7.4)	(2.6)	(7.5)	(3.6)	(7.9)	(3.9)	(7.9)	(3.5)
NH_4－N 去除率/%	91	83	95	99	96	99	97	99
	(10)	(11)	(7.6)	(0.3)	(7.9)	(0.7)	(6.0)	(0.8)
TN 去除率/%	66	63	58	62	55	57	58	55
	(12)	(10)	(17)	(8)	(19)	(8)	(17)	(10)

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

续表

参数	SRT 2-d		SRT 8 d		SRT 14 d		SRT 20-d	
	−SMXL	+SMXL	−SMXL	+SMXL	−SMXL	+SMXL	−SMXL	+SMXL
NO_2−N 出水浓度	4.9	3.5	3.0	1.9	3.0	1.9	2.7	1.9
/(mgN·L^{-1})	(2.2)	(2.2)	(1.7)	(0.3)	(1.9)	(0.3)	(1.5)	(0.2)
NO_3−N 出水浓度	1.1	0.8	5.5	5.2	6.0	6.2	6.1	6.5
(mgN·L^{-1})	(0.5)	(0.2)	(1.7)	(0.6)	(2.0)	(0.6)	(1.8)	(0.8)
PO_4−P 去除率/%	45	53	37	73	34	78	40	76
	(27)	(17)	(30)	(23)	(35)	(15)	(27)	(18)

注:括号内为标准偏差值

1.5 分子生物学测试

脱氧核糖核酸(DNA)提取:取2 mL污泥,以转速10 000 r/min离心,加入0.85% KCl震荡1 mL后离心,反复2次,保存在−20 ℃备用。DNA的提取使用DNA提取试剂盒MoBio UltraClean Soil (Carlsbad, CA),使用Nanodrop分光光度计ND-1000 (Thermal Scientific, San Diego, CA)测定DNA提取液的浓度。

聚合酶链式反应(PCR):选用对大多数细菌的16S rDNA基因区具有特异性的引物对:341F-GC and 518R引物[23]。扩增反应体系为50 μL,组成:定量的DNA模板使最后DNA浓度相等、0.2 μM每种引物、200 μM/LdNTP(每种10 mmol /L)、1× PCR buffer (without Mg2 +)、1.5 mM $MgCl_2$、1.25U Heatstart Taq酶,用适量无菌超纯水补足50 μL。采用降落式PCR扩增,可以提高样品的扩增特异性,降低DGGE分析的误差. 扩增条件如下:94 ℃预变性15 min;94 ℃变性60 s,55 ℃退火60 s,72 ℃延伸60 s,共29个循环,最后72 ℃延伸10 min. 扩增在梯度PCR仪(Eppendorf, Westbury, NY)上进行,PCR产物用1.7%琼脂糖凝胶电泳进行分析检测,

变性梯度凝胶电泳(DGGE):采用Bio-rad公司生产的DGGE变性检测系统对PCR产物进行电泳。聚丙烯酰胺变性梯度胶浓度为10%,变性梯度为35%~55%,上样量为20 μL的PCR产物加上20 μL的2X dye染料。其运行条件是:温度62 ℃,电压为100 V,1×TAE buffer中电泳16 h,电泳完成后,用SYBR Green 1核酸染色液染色45 min,用去离子水漂洗2次,立即在紫外照相仪上观察并照相。所得图像用软件GelCompar II software进行处理。

2 结果与讨论

2.1 批次试验

试验主要研究了运行在不同工况下的活性污泥系统对4种磺胺类药物的去除效果,通过稀释、富集等手段将批次试验中每个烧瓶内的生物量都控制在1 g/L左右,最后通过实际生物量浓度和去除数据可以算出不同工况下的活性污泥系统的单位生物量下的去除率,结果如图2所示,对于4种磺胺类药物来说,挥发作用基本可忽略不计,所以在以后的讨论中将不涉及挥发作用对处理效果的影响。结果显示,其中3种磺胺类药物在5种活性污泥中的处理效果基本相同,对于5种污泥来说,磺胺甲恶唑(SMXL)的总去除量为2.14 ± 0.60 μg/g SS、以吸附作用为机理的去除量为1.35 ± 0.69 μg/g SS,占总去除量的63%,以生物降解作用为机理的去除量为0.79 ± 0.65 μg/g SS;磺胺嘧啶(SDZN)的总去除量为1.14 ± 0.63 μg/g SS、以吸附作用为机理的去除量为0.95 ± 0.55 μg/g SS,占总去除量的83%,以生物降解作用为机理的去除量为0.19 ± 0.49 μg/g SS;磺胺间二甲氧(SDMX)的总去除量为2.33± 0.67 μg/g SS,以吸附作用为机理的去除量为0.82 ± 0.65 μg/g SS,占总去除量的35%,以生物降解作用为机理的去除量为1.51 ± 0.53 μg/g SS;磺胺甲基嘧啶(SMRN)的总去除量为2.45 ± 0.85 μg/g SS,以吸附作用为机理的去除量为1.35 ± 0.80 μg/g SS,占总去除量的55%,以生物降解作用为机理的去除量为1.11 ± 0.83 μg/g SS。以上数据可以很容易看出以吸附作用占主导地位有磺胺甲恶唑、磺胺嘧啶、磺胺甲基嘧啶,磺胺间二甲氧则是以生物降解起主要作用。通过表2单向方差分析(ANOVA)可以知道磺胺类药物的去除效果与污泥的污泥龄有着非常显著的关系($p<0.02$)。

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

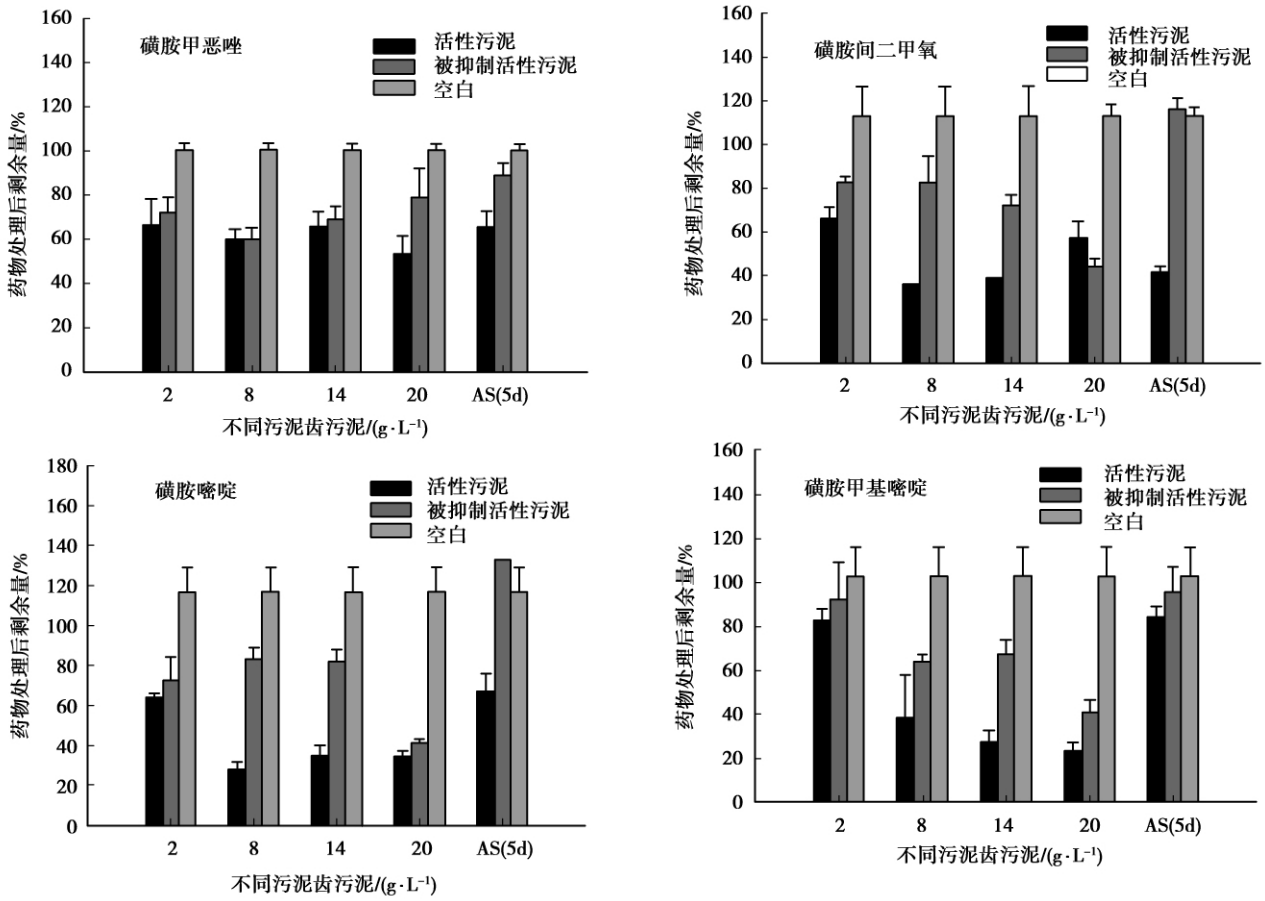


图 2　磺胺类药物在不同污泥龄污泥中处理效果变化

表 2　MS 运行参数表

药物名称	CAS＊号	MS 极性	保留时间/min	离子变化/(m·z⁻¹) 第一 → 第二	裂解能	碰撞能	碰撞碎片溢出能	检出限/(μg·L⁻¹)
磺胺甲恶唑	723－46－6	＋	11.61	254→156	63.0	30.0	11.4	0.28
（SMXL）				254→108	63.0	30.0	11.4	
磺胺甲恶唑－d4		＋	11.61	258→160	67.2	24.0	9.4	0.42
（SMXL-D4）				258→96	67.2	39.7	4.4	
磺胺嘧啶	127－79－7	＋	9.81	265→156	50.1	24.3	10.2	0.37
（SDZN）				265→92	50.1	40.9	4.1	
磺胺间二甲氧	122－11－2	＋	12.06	311→156	71.8	32.0	9.3	0.19
（SMRN）				311→108	71.8	42.7	19.7	
磺胺甲基嘧啶	68－35－9	＋	9.18	251→156	65.0	22.6	10.0	1.43
（SMZN）				251→92	65.0	38.2	4.1	

从试验结果可以看出，吸附作用平均占到了去除总量的 60％左右。磺胺类药物的亲水性比较强，所以不容易被吸附[24]，有研究报道磺胺甲恶唑的 K_d 从 5～256 L/kg[24-26]，与试验的到得的结果类似。所以可以认为影响磺胺类药物处理效果随着污泥龄的增加而增加的关键因素在于污泥的絮体结构（吸附作用）和污泥的微生物群落结果（生物降解）

与此同时，城市污水厂存在着长期曝露在微量药物下的可能，这有助于提高其对各种药物的适应和处理能力，但是试验结果表明，对于 4 种磺胺类药物来说城市污水场的污泥并没有表现出较好的处理效果，其处理效果与 SRT＝2 d 的污泥在统计学意义上类似。究其原因，通过抑制生物活性试验可以看出城市污水厂污泥吸附磺胺类药物能力与其他反应器相比，明显不够，推测是因为细菌絮体和表面积与其他反应器不同，从而说明了污泥对微量磺胺类

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

药物的吸附能力是影响处理效果的瓶颈。

2.2 小试试验

由表3可知加入磺胺甲恶唑前后反应器的运行状况。加入药品之前，表征反应器生物量的指标MLSS如同经典理论所预测的一样，生物量随着SRT的增加而递增；加入药品之后，这一规律并未得到改变。加入药物前，4个反应器COD的去除率平均在(92±3)%，氨氮的去除率平均在(95±9)%，总氮的去除率平均在(59±10)%；加入药品后，各项营养指标的去除效果均未受到抑制，都保持在较好的水平上，4个反应器COD的去除率平均在(88±8)%，氨氮的去除率平均在(95±8)%，总氮的去除率平均在(59±17)%。因此可以知道污水中微量的磺胺甲恶唑的存在并不会对现有污水处理系统的运行造成影响。

表3 磺胺类药物的去除效果与污泥龄的单向方差分析结果

名称	SRT/d			
	SMXL	SMRN	SDZN	SDMX
活性污泥	0.013	<0.001	<0.001	<0.001
被抑制活性污泥	0.020	<0.001	<0.001	<0.001

由图3可以看出，4个反应器磺胺甲恶唑的去除效果分别为(11±6)%，(41±7)%，(51±7)%，(58±10)%，并且随着时间的增加，磺胺甲恶唑的去除效果并没有明显的上升趋势，说明在微量磺胺甲恶唑的存在下，增加污泥的驯化时间并不能有效的提高处理效果，必须从其他方面来进行优化，来达到提高处理效果的目的。其中SRT对处理效果有着明显的效果，由图3可以很清楚的看见，随着污泥龄的增加，磺胺甲恶唑的去除效果也随之而提高($p<0.05$)。根据经典理论，对磺胺甲恶唑的去除主要是吸附和生物降解的协同作用，在前面批次试验中，可以知道磺胺甲恶唑的去除过程中主要是吸附作用占主导因素，而污泥龄的增加，使得反应器内生物量的增加，形成更多的吸附点位，进一步加强吸附作用，从而得到了污泥龄的增加，磺胺甲恶唑的去除效果也随之而提高的效果。

经过计算，可以得到单位生物量的去除量，图4中的折线显示了4个反应器的单位生物量去除量，分别为1.72 ± 1.01 μg SMXL/g^{M}LSS，0.82 ±0.94 μg SMXL/g^{M}LSS，0.93 ± 0.69 μg SMXL/g^{M}LSS，0.48 ± 0.18 μg SMXL/g^{M}LSS。与批次试验的结果进行对比，趋势基本吻合。

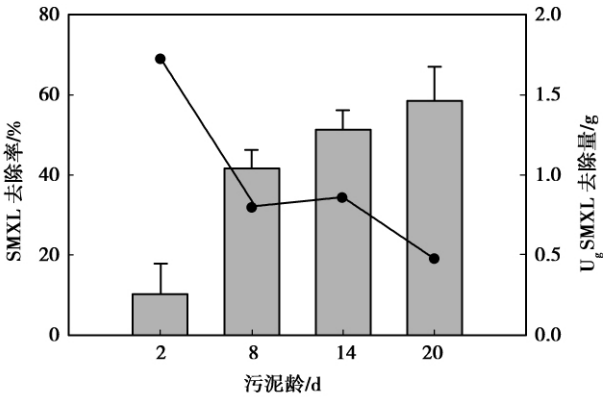
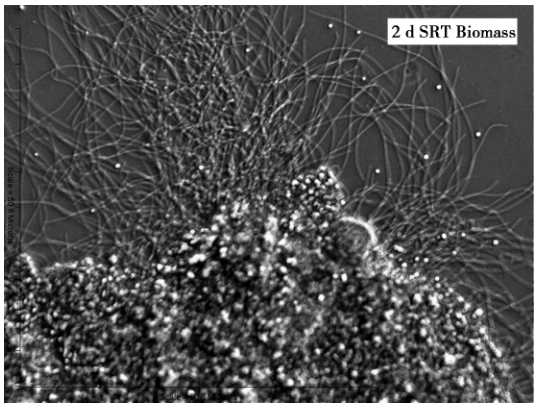


图3 不同污泥龄的SRT的磺胺甲恶唑的去除率和单位污泥去除量变化

在前面批次试验中，可以知道磺胺甲恶唑的去除过程中主要是吸附作用占主导因素，而影响吸附作用的主要因素为表面积的大小，吸附目标物质在各种介质中的溶解度。因为吸附目标物质唯一，各个反应器运行稳定，故表面积的大小起到了主导作用。由图4可以知道污泥龄2 d的反应器中丝状菌在细菌絮体表面上大量繁殖，形成松散、巨大的细菌絮体，与其他3个反应器内的细菌絮体形成鲜明对比。污泥龄2 d的反应器中松散、巨大的细菌絮体和表面存在的大量丝状菌，使得比其他3个反应器拥有更大的表面积，从而单位生物量的去除量也远大于其他3个反应器。虽然丝状菌的存在使得反应器拥有最好的单位生物量的去除量，但是丝状菌的增加会造成活性污泥沉淀性能的下降，降低二沉池泥水分离效果，造成活性污泥的大量流失，从而造成总处理效果的下降[15]。



© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

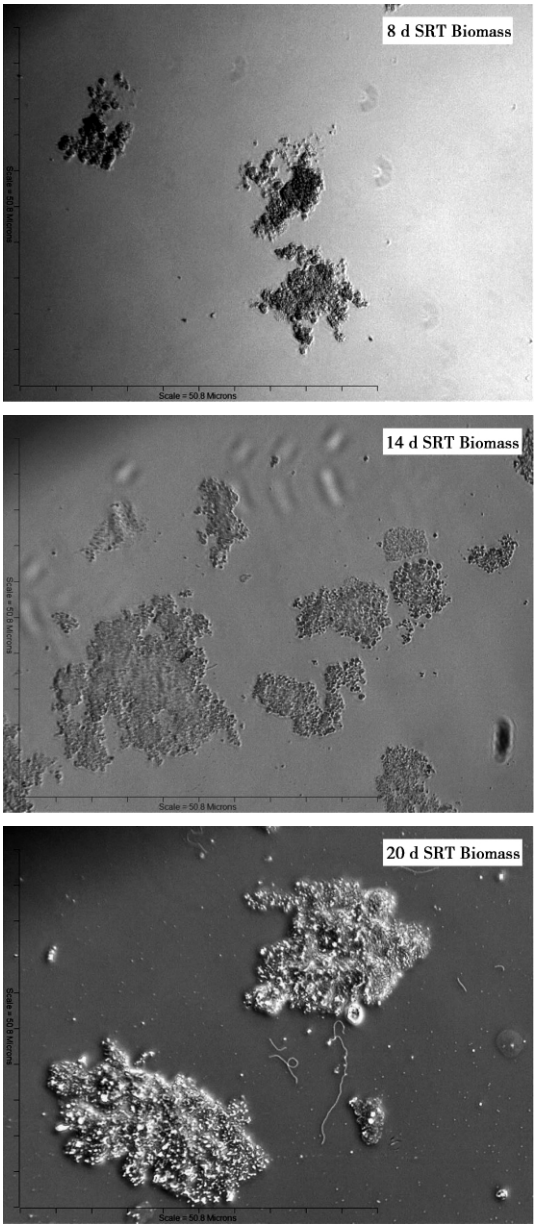


图 4　不同污泥龄的 SRT 反应器镜检图

DGGE 是一种测定微生物群落结构的分子生物学分析方法，文中运用此方法来了解微量磺胺甲恶唑的存在对不同污泥龄的活性污泥系统的微生物群落结构产生的影响。由 DGGE 试验结果图，可以进行物种丰富度和香农多样性指数分析，物种丰富度分析可以说明每个样品中的物种的数量，但是存在结果不准确的问题，因为其在分辨 DGGE 试验结果的微弱条带上存在困难[16]，香农多样性指数分析则因为同时考虑了条带的存在和强度使得成为更广泛的表征微生物群落结构的一个指标。如表 4 所示，在加入磺胺甲恶唑之前，物种丰富度和香农多样性指数均与污泥龄之间不存在统计学上的相关（F 检验，$p>0.05$），这说明试验所运行的 4 个反应器中污泥龄的变化并不是造成微生物群落结构的变化的原因。加入磺胺甲恶唑之后，香农多样性指数的变化不大，物种丰富度均有一定的增加，但考虑到加入药品前的 DGGE 样品数只有 1 个，可能存在一定的试验误差，所以可以认为物种丰富度变化也不大。有文献指出造成去除率随着污泥龄的增加而增加这一现象的一个很重要的原因是微生物群落结构的变化，与文中的试验结果有着不同的结论[17]。同时，由表 4 可以看到，污泥龄 2 d 的反应器在物种丰富度和香农多样性上均有所增加，因为污泥龄低的系统排泥数量大，使得相对于污泥龄高的系统，生物量不高，优势菌种不明显，同时生长率也比较高，生物活性强，微生物群落结构也容易受到外界的影响，所以为了适应磺胺甲恶唑的加入，微生物群落结构的改变也更加明显。

表 4　进水中加入 5 μg/L 磺胺甲恶唑前后反应器物种丰富度和香农多样性指数变化

参　数	SRT 2 d		SRT 8 d		SRT 14 d		SRT 20 d	
	−SMXL	+SMXL	−SMXL	+SMXL	−SMXL	+SMXL	−SMXL	+SMXL
物种丰富度	22 (11)	30 (4)	25 (9)	33 (4)	28 (7)	33 (4)	30 (6)	35 (2)
香农多样性指数	1.34 (0.04)	1.53 (0.02)	1.50 (0.07)	1.50 (0.05)	1.54 (0.04)	1.53 (0.05)	1.53 (0.09)	1.54 (0.02)

有研究认为药物去除率随着污泥龄的增加而增加，其原因在于污泥龄高的活性污泥系统存在更多的硝化细菌和异养菌，使得硝化反应得到加强，从而能够更好地去除药物[18-20]。试验中，每个系统均对

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

营养物质COD、氨氮的去除和反硝化作用有着类似的表现，从DGGE试验结果来看，不同的污泥龄有着不同微生物群落结构，也很难支持上述文献提出的关于特定微生物种群会改变磺胺甲恶唑处理效果的观点，还有待于后续的有针对性的试验来证明。

3 结 论

综上所述，污泥龄的增加会提高磺胺类药物的处理效果。根据批次试验可以知道，生物吸附和生物降解都对磺胺类药物的去除发挥了作用，其中吸附作用占到了主导地位。另外在长期处理含有磺胺甲恶唑的污水的条件下，丝状菌膨胀的污泥龄2 d的反应器单位生物量去除量远远高于其他3个反应器的去除量，说明吸附作用成为提高长期存在微量磺胺甲恶唑污水处理效果的瓶颈之一。与此同时，根据对微生物群落结构分子生物学分析，污泥龄的增加只是单纯地增加了生物量，增加了更多的吸附点位，并不能说明微生物群落结构的改变对处理效果会有作用。所以，今后关于如何提高磺胺类药物的处理效果的研究工作应当着眼于如何加强污泥对磺胺类药物的吸附。

参考文献：

[1] HEBERER T. Occurrence, fate, and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data[J]. Toxicology Letters, 2002, 131(1/2): 5-17.

[2] KOLPIN D W, FURLONG E T, MEYER M T, et al. Pharmaceuticals, hormones, and other organic wastewater contaminants in U. S. streams, 1999-2000: a national reconnaissance[J]. Environmental Science & Technology, 2002, 36(6): 1202-1211.

[3] GUARDABASSI L, LO FO WONG D M, DALSGAARD A. The effects of tertiary wastewater treatment on the prevalence of antimicrobial resistant bacteria[J]. Water Research, 2001, 36(8): 1955-1964.

[4] HIRSCH R, TERNES T, HABERER K, et al. Occurrence of antibiotics in the aquatic environment[J]. The Science of the Total Environment, 1999, 225(1/2): 109-118.

[5] YANG S, CARLSON K. Evolution of antibiotic occurrence in a river through pristine, urban and agricultural landscapes[J]. Water Research, 2003, 37(19): 4645-4656.

[6] MIAO X S, BISHAY F, CHEN M, et al. Occurrence of antimicrobials in the final effluents of wastewater treatment plants in Canada[J]. Environmental Science & Technology, 2004, 38(13): 3533-3541.

[7] GOBEL A, THOMSEN A, MCARDELL C S, et al. Occurrence and sorption behavior of sulfonamides, macrolides, and trimethoprim in activated sludge treatment[J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(11): 3981-3989.

[8] 叶计朋，邹世春，张干，等. 典型抗生素类药物在珠江三角洲水体中的污染特征[J]. 生态环境，2007，16(2)：384-388.
YE JI-PENG, ZOU SHI-CHUN, ZHANG GAN, et al. Characteristics of selected antibiotics in the aquatic environment of the Pearl River Delta, south China[J]. Ecology and Environment, 2007, 16(2): 384-388.

[9] GOBEL A, MCARDELL C S, JOSS A, et al. Fate of sulfonamides, macrolides, and trimethoprim in different wastewater treatment technologies[J]. Science of Total Environment, 2007, 372(2/3): 361-371.

[10] LINDBERG R H, WENNBERG P, JOHANSSON M I, et al. Screening of human antibiotic substances and determination of weekly mass flows in five sewage treatment plants in Sweden[J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(10): 3421-3429.

[11] 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 WEI-HAI, ZHANG GAN, ZOU SHI-CHUN, et al. Occurrence, distribution and fate of antibiotics in sewage treatment plants[J]. Chinese Journal of Environment Science, 2007, 28(8): 1779-1783.

[12] 常红，胡建英，王乐征，等. 城市污水处理厂中磺胺类抗生素的调查研究[J]. 科学通报，2008，53(2)：159-164.
CHANG HONG, HU JIAN-YING, WANG LE-ZHENG, et al. Occurrence, distribution and fate of sulfanimide in sewage treatment plants[J]. Chinese Science Bulletin, 2008, 53(2): 159-164.

[13] ZENG R J, LEMAIRE R, YUAN Z, et al. Simultaneous nitrification, denitrification, and phosphorus removal in a lab scale sequencing batch reactor[J]. Biotechnology and Bioengineering, 2003, 84(2): 170-178.

[14] GOBEL A, THOMSEN A, MCARDELL C S, et al. Occurrence and sorption behavior of sulfonamides, macrolides, and trimethoprim in activated sludge treatment[J]. Environmental Science & Technology,

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

2005, 39 (11): 3981-3989.

[15] MARTINS A M P, PAGILLA K, HEIJNEN J J, et al. Filamentous bulking sludge - a critical review[J]. Water Research, 2004, 38 (4): 793-817.

[16] BLACKWOOD C B, HUDLESTON D, ZAK D R, et al. Interpreting ecological diversity indices applied to terminal restriction fragment length polymorphism data: insights from simulated microbial communities[J]. Applied and Environmental Microbiology, 2007, 73 (16): 5276-5283.

[17] CLARA M, KREUZINGER N, STRENN B, et al. The solids retention time-a suitable design parameter to evaluate the capacity of wastewater treatment plants to remove micropollutants[J]. Water Research, 2005, 39 (1): 97-106.

[18] KHUNJAR W O, MACKINTOSH S A, SKOTNICKA-PITAK J, et al. Elucidating the relative roles of ammonia oxidizing and heterotrophic bacteria during the biotransformation of 17α-ethinylestradiol and trimethoprim [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45(8): 3605-3612.

[19] GAULKE L S, STRAND S E, KALHORN T F, et al. 17alpha-ethinylestradiol transformation via abiotic nitration in the presence of ammonia oxidizing bacteria [J]. Environmental Science & Technology, 2008, 42 (20): 7622-7627.

[20] SUAREZ S, LEMA J M, OMIL F. Removal of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) under nitrifying and denitrifying conditions[J]. Water Research, 2010, 44(10): 3214-3224.

[21] BHANDARI A, SURAMPALLI R Y, ADAMS C D, et al. Contaminants of emerging environmental concern [M]. Reston, VA, USA: American Society of Civil Engineers, 2009.

[22] SUKUL P, LAMSHOFT M, ZUHLKE S, et al. Sorption and desorption of sulfadiazine in soil and soil-manure systems [J]. Chemosphere, 2008, 73 (8): 1344-1350.

[23] MUYZER G, DEWAAL E C, UITTERLINDEN A G. Profiling of complex microbial populations by denaturing gradient gel-electrophoresis analysis of polymerase chain reaction-amplified genes-coding for 16s Ribosomal-Rna [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1993, 59(3): 695-700.

[24] GOBEL A, THOMSEN A, MCARDELL C S, et al. Occurrence and sorption behavior of sulfonamides, macrolides, and trimethoprim in activated sludge treatment[J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(11): 3981-3989.

[25] SUAREZ S, CARBALLA M, OMIL F, et al. How are pharmaceutical and personal care products (PPCPs) removed from urban wastewaters? [J]. Reviews in Environmental Science and Biotechnology, 2008, 7(2): 125-138.

[26] CARBALLA M, FINK G, OMIL F, et al. Determination of the solid-water distribution coefficient (Kd) for pharmaceuticals, estrogens and musk fragrances in digested sludge [J]. Water Research, 2008, 42(1/2): 287-295.

(编辑　陈移峰)

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net