

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2023.10.004

我国污水处理厂中典型抗生素的分布及处理研究

刘玉学^{1,2}, 李 彭², 王 拯¹

(1. 兰州交通大学 环境与市政工程学院, 甘肃 兰州 730070; 2. 上海交通大学 环境科学与工程学院, 上海 200240)

摘 要: 根据我国已有的研究结果,综述了几类主要的抗生素在我国污水厂中的分布及去除途径,综合评价了污水处理厂中使用较为广泛的几种处理工艺在去除抗生素方面的差异。结果表明,经济发达地区对同一抗生素的去除效果要好于发展相对落后的地区,我国污水厂中氟喹诺酮类和磺胺类抗生素的检出率和检测浓度都很高,不同地区同一生物处理工艺对氟喹诺酮类抗生素都表现出较好的去除效果。污水处理厂的常规工艺对抗生素的去除率较低,单纯地采用某一种工艺很难对有机污染物进行降解,对于含有多种抗生素的污水处理厂来说,抗生素的存在降低了污水处理效果。生物处理工艺与膜处理法、高级氧化法联用是一种可行的抗生素处理方法,可以使抗生素去除率超过80%。

关键词: 污水处理厂; 抗生素分布; 去除途径

中图分类号: TU992 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2023)10-0023-08

Study on the Distribution and Treatment of Typical Antibiotics in Wastewater Treatment Plants in China

LIU Yu-xue^{1,2}, LI Peng², WANG Zheng¹

(1. School of Environmental and Municipal Engineering, Lanzhou Jiaotong University, Lanzhou 730070, China; 2. School of Environmental Science and Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: According to the existing research results, the distribution and removal paths of several main antibiotics in wastewater treatment plants in China were summarized, and several treatment processes widely used in wastewater treatment plants for antibiotic removal were comprehensively evaluated. The results showed that the removal effect of the same antibiotics in economically developed areas was better than that in relatively backward developed areas. The detection rate and the detected concentration of fluoroquinolones and sulfonamides in wastewater treatment plants in China are very high, and the same biological treatment process of the wastewater treatment plants in different areas shows good removal of fluoroquinolones. The removal rate of antibiotics by conventional treatment process in wastewater treatment plants is low, and it is difficult to degrade organic pollutants simply by a certain process. For wastewater containing various types of antibiotics, the presence of antibiotics reduces the removal effect of organic pollutants in wastewater treatment plants. The combination of biological

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51708344); 国家重点研发计划项目(2019YFD1100202)

通信作者: 李彭 E-mail: lipeng2016@sjtu.edu.cn

treatment, membrane treatment and advanced oxidation is a feasible strategy for antibiotics treatment, which can make the removal rate of antibiotics more than 80%.

Key words: wastewater treatment plant; antibiotics distribution; removal pathway

抗生素在治疗人类疾病、畜牧业、养殖业等方面被大量使用,但抗生素可被人体和动物吸收利用的量有限,大部分以排泄物的形式排出体外,最终进入环境,导致环境中抗生素大量积累。虽然抗生素半衰期短,但由于抗生素使用量的增加,生物可利用率低,使得抗生素污染环境的风险也随之增加^[1]。由于跟水环境中的其他污染物不同,抗生素可直接作用于微生物,导致污水处理厂生物处理效率降低,不仅影响环境中污染物的含量,导致严重的环境污染事件发生,而且大量的抗生素排入水体诱导耐药菌的生成,严重时会对人体及动物健康产生危害。

污水处理厂是抗生素类污染物进入环境的主要源头,同时也是控制这类污染物进入环境的重要途径。现代的污水处理厂可以有效完成碳、氮的去除和微生物指标的控制,然而,由于污水处理厂通常接收含有大量不同微量污染物的废水,传统的处

理技术无法对这些污染物进行完全去除。因此,有必要了解我国典型抗生素的分布现状及现行污水处理工艺在去除抗生素类污染物方面的可行性,以期污水处理厂去除抗生素类污染物、研究可行的污水处理工艺提供更好的支持。

1 我国污水厂中典型抗生素的分布现状

不同污水处理厂中抗生素的浓度因所处的环境及地理区域不同,抗生素的含量也会有所不同,发达地区、制药厂及医院附近的污水中抗生素的含量可能会高于其他地区,而经济发展较落后的偏远地区,污水中抗生素的含量相对来说会比较低。

对我国20个城市75座污水处理厂进水中抗生素浓度进行了统计^[2-15],重点研究污水厂中检出率和检出浓度较高的11种抗生素在各区域内的分布情况,从而评价我国污水厂中抗生素的赋存特征。

我国污水处理厂进水中典型抗生素分布如表1所示。

表1 我国污水处理厂进水中典型抗生素的浓度

Tab.1 Typical antibiotic concentrations in influent of wastewater treatment plants in China $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$

抗生素名称	华东地区	华南地区	华北地区	华中地区	西南地区	西北地区	东北地区
	无锡、上海、龙岩、漳州	广州、东莞、惠州、香港特别行政区	北京	长沙	重庆、贵阳、昆明	兰州、乌鲁木齐、石河子	哈尔滨、大连
头孢噻肟		<LOQ~46		220~520			ND~234
阿莫西林	3.05~16.23	<LOQ~1 550		350~1 600			
四环素	<LOQ~175	<LOQ~1 510	30.17~490.3	ND	ND~556.93	11~73	ND~462.7
土霉素	<LOQ~167	<LOQ~1 462.1	7.14~88.75	ND~81	ND~227.96	73~256	ND~1 163.8
脱水红霉素	4.99~6.9	243~21 058	362.19~1 280	38~150	53~339.6		99.7~564.8
罗红霉素	6.5~585	<LOQ~4 119.6	879~1 640	87~320	24.7~647.9		14.2~2 986
磺胺甲恶唑	5.41~267.8	28.83~478.8	70.01~1 020	61~110	50.1~3 263.01		2.1~850
磺胺二甲嘧啶	ND~259	<LOQ~35.09	ND~40.33	4.7~70	<LOQ~199.06	ND~1 490	ND~33.4
氧氟沙星	91.5~2 936.94	51.96~7 900	796~1 740.3	62~410	44.2~835.6	444~8 700	1.5~2 787
诺氟沙星	ND~174.13	<LOQ~3 700	99.8~910	16~69	27.9~279.1	203~1 330	1.5~2 168
环丙沙星	6~95.1	14.42~321.83	51.6~98.4	ND	421.89~557.17	21~290	21.5~330.4

注: ND为未检出, LOQ为检测限。

从表1可以看出,污水厂中抗生素的含量呈现区域差异,华南地区污水厂中的总抗生素浓度最高,长沙污水处理厂的总抗生素浓度明显低于其他区域的污水处理厂,这种差异跟污水厂所在区域、服务人口量及区域发展水平等因素有关。 β -内酰胺类

抗生素在各污水厂的检出率较低,可能是由于其分子结构不稳定,在环境中易水解所致。我国不同污水处理厂进、出水中四环素的浓度差别较大,在香港特别行政区污水处理厂进水中检出的四环素最高浓度为1 510 ng/L ^[6],而在上海地区检出的最

高浓度却小于检出限^[3]。氧氟沙星在各区域内污水厂的检出率和检出浓度都较高,其次为脱水红霉素、罗红霉素和磺胺甲恶唑。脱水红霉素、磺胺甲恶唑等在大多数污水处理厂中至少存在中等风险,大多数污水处理厂中的其余药物对水生生物的风险较低或没有明显的风险。尽管如此,药物的混合毒性以及长期接触对环境的影响和生态风险都需要进行进一步的研究评价,应认真考虑其可能对环境和人类健康的潜在风险。

2 污水处理厂中抗生素的去除途径

不同抗生素在污水处理厂的去除效率不同,可能是由于处理工艺的不同,也有可能是由于抗生素的化学结构和性质的不同,除特定化合物的化学性质外,它们的去除效率还受微生物和环境条件的影响。抗生素在污水处理厂中的去除途径主要有水解、光解、污泥吸附、生物降解等,总结发现抗生素在污水处理厂的去除主要分为生物去除和物理化学去除。

2.1 生物处理

污水处理厂对抗生素的去除能力有限,许多学者研究了生物处理工艺对抗生素的去除情况。活性污泥法对不同种类抗生素的去除效果差异较大,即使是同一种抗生素,对其去除效果的研究结果也不一定相同。杨程等^[16]在研究活性污泥法(CAS)对不同药物的去除情况时发现,磺胺类抗生素的去除率为20%~60%。Hou等^[17]研究表明,SBR对四环素类抗生素的去除率为28.2%~38.5%,MBR对四环素类抗生素的去除率为19%~22.5%。SBR允许水力停留时间和污泥停留时间的解耦,有利于生物量的保留,从而使抗生素生物降解率较高。与CAS技术相比,MBR技术将废水中的有机物生物降解与膜过滤相结合,对抗生素的去除效果更好。

考虑到处理成本,我国大多数污水处理厂仍采用传统的污水处理工艺。为了解污水处理工艺对抗生素处理效果的影响,总结了我国污水处理厂常用工艺对典型抗生素的去除效果^[12,18-22],结果如表2所示。

由表2可见,不同地区的污水厂处理工艺对抗生素的去除效果不同,即使是同一工艺,受进水抗生素浓度的差异影响,对抗生素的去除效果也不一定相同。 β -内酰胺类在所有工艺中的去除率均大

于80%,磺胺类抗生素的去除呈现区域差异,这与污水厂的服务区域、污水来源、污水量等因素有关。消毒对氟喹诺酮类抗生素的影响不大,其在污水厂的去除主要靠生物处理阶段。AO工艺对大环内酯类抗生素的去除率优于CAS和A²/O工艺。

表2 我国污水处理厂常用工艺对典型抗生素的去除效果

Tab.2 Removal effect of typical antibiotics by common treatment processes in WWTPs in China

%

处理工艺	抗生素类别	抗生素名称	去除率	地区
CAS+UV 消毒	β -内酰胺类	头孢噻肟	80.56	哈尔滨
	大环内酯类	罗红霉素	52.48	
	磺胺类	磺胺甲恶唑	14.08	
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	46.86	
AO+UV 消毒	β -内酰胺类	头孢噻肟	85.02	哈尔滨
	大环内酯类	罗红霉素	76.30	
	磺胺类	磺胺甲恶唑	19.56	
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	72.59	
A ² /O + UV 消毒	β -内酰胺类	头孢噻肟	82.47	哈尔滨
	大环内酯类	罗红霉素	34.24	
	磺胺类	磺胺甲恶唑	34.84	
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	57.62	
	磺胺类	磺胺甲恶唑	94.2	北京
		磺胺嘧啶	96.8	
	磺胺类	磺胺嘧啶	70	兰州
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	-64.65	
A ² /O	磺胺类	磺胺甲恶唑	36	上海
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	42	
A ² /O + Cl 消毒	大环内酯类	罗红霉素	8.44	重庆
		脱水红霉素	27.32	
	磺胺类	磺胺嘧啶	33.13	
		磺胺甲恶唑	52.28	
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	47.36	
		诺氟沙星	82.84	
	磺胺类	磺胺嘧啶	15.38	兰州
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	58.67	
CAS + Cl 消毒	大环内酯类	罗红霉素	64.70	广州
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	70.07	
氧化沟+UV 消毒	磺胺类	磺胺甲恶唑	33.90	广州
	氟喹诺酮类	氧氟沙星	61.84	

表2观察到氟喹诺酮类抗生素的去除还有负值的情况,考虑到氟喹诺酮类抗生素易于被污泥吸附,可能是因为在检测进水中抗生素的浓度时不包含粒径大于0.22 μm 或0.45 μm 的颗粒,这些抗生素在废水处理过程中会解吸并进入出水,因而导致

出水中检测到的抗生素浓度高于进水。目前对不同污水处理厂中抗生素浓度检测差异较大,也可能是由于检测方法还不够完善所致。

抗生素的生物降解除了受自身结构及处理工艺的影响外,还受污泥龄、水力停留时间、供氧状况等因素的影响。

① 污泥龄

污泥停留时间是污水处理工艺中的一个重要参数,不同处理工艺的污泥停留时间对抗生素去除效果的影响可能不同。低污泥龄会导致污泥浓度较低,使污泥去除污染物的性能较差,降低了污泥对抗生素的去除效果,污泥龄增加后,除了增加污泥浓度,使一些容易被污泥吸附的抗生素得到去除外,还会使一些生长缓慢的微生物有机会生长繁殖,增加微生物多样性,继而提高对抗生素的生物去除效率。对于一些主要通过污泥吸附去除的抗生素(如氟喹诺酮类、磺胺类)而言,污泥龄增加的同时还会增大此类抗生素的去除效率。膜生物反应器达到较高的污泥龄后可显著提高特定化合物如甲氧苄啶、克拉霉素等的去除率,但有些抗生素的去除可能与污泥停留时间无关。污泥吸附受环境的影响,对抗生素的去除效果并不稳定,且对抗生素的去除仅仅只是转移,并未做到最终去除。

② 水力停留时间

在考察污水厂对抗生素类污染物的去除效果时,水力停留时间是一个重要的影响因素。较长的水力停留时间增加了污水中抗生素和细菌等微生物的接触反应时间,增强了生物降解作用,提高了某些抗生素的去除效率。研究^[23]发现,延长水力停留时间后,诺氟沙星和磺胺甲恶唑的去除率会升高。但这也涉及污泥龄等因素的影响,单一增加水力停留时间并不一定能提高抗生素的去除率。考虑到处理效率的问题,水力停留时间也不应太长。

③ 温度

生物废水处理过程中的温度变化可能是季节性变化或日变化(干旱、半干旱地区)引起的。微生物酶系统的工作需要一定的温度适应范围,温度对抗生素的处理效率也会产生影响。大多数微生物适宜生长的温度范围为15~35℃。在最佳温度范围内,微生物可以达到最大的生长速率和最佳的代谢效率,从而提高对抗生素的去除效率^[24]。然而,温度的影响无法准确确定,无论是CAS工艺还是

MBR工艺,针对温度变化对微污染物去除影响的系统研究很少。

④ pH

pH在抗生素的去除方面也发挥着重要作用。适宜微生物生长的pH为5~9,pH过高或过低都会影响菌体表面的蛋白质,影响其所带电荷稳定性,进而对抗生素的去除情况产生影响。四环素和氟喹诺酮类抗生素含有的部分功能基团在不同的pH下可以发生质子化和去质子化反应,使其带有正电荷或负电荷,甚至成为两性化合物,从而影响其与带有负电荷的颗粒污泥之间的吸附作用^[25]。此外,pH的变化可能会影响细菌的生存,严重时甚至导致细菌死亡。

⑤ 供氧状况

氧和微生物的存在能够影响抗生素的降解,抗生素在不同供氧状况下的降解情况与其种类有关。Liu等^[26]研究了环丙沙星在厌氧和缺氧条件下的降解情况,发现当抗生素浓度为80~100 mg/L时,环丙沙星的浓度在厌氧条件下无明显下降,在缺氧条件下能观察到较低程度的生物转化。

上述研究表明,区域差异对抗生素的去除影响很小,生物处理法去除抗生素的能力有限,且生物处理工艺对抗生素的去除具有选择性。考虑到污水厂的处理效率与处理结果,在保证环境因素不受影响的情况下,可选择性地调整污泥龄和水力停留时间,以提高难降解抗生素(如磺胺类和氟喹诺酮类)的去除效率。单纯地通过生物处理工艺很难得到理想的抗生素去除效果,如何提高生物处理工艺的去除效果仍需进一步的研究。

2.2 物理化学处理

2.2.1 水解

某些抗生素在水环境中容易发生水解而被去除。研究表明, β -内酰胺类、大环内酯类抗生素容易水解。pH和温度是影响水解的重要因素。此外,氧化物表面、离子强度、二价金属离子、黏性也会影响水解速率。一些四环素类抗生素在水中不稳定,如土霉素的水解速率随着pH偏离中性(pH=7)和温度的升高而增加,但磺胺类和氟喹诺酮类抗生素对水解则有抵抗力。

2.2.2 光解

在水环境中,光降解也是影响水中抗生素去除的重要因素。光化学降解改变了反应物的分子结

构,并且这种改变不可逆,真正实现了抗生素的降解。光降解可以分为直接光解和间接光解,抗生素分子直接吸收光子而发生的降解属于直接光解,受光照射作用诱发活性氧自由基的氧化作用而发生的降解为间接光降解^[27]。

污水处理厂中的水环境是多种组分共存的复杂体系,各组分之间会出现相互影响,进而影响光降解抗生素的情况。研究^[28]表明,富营养化水体的溶解性有机物(DOM)是一种较好的光敏剂,可促进磺胺类抗生素的快速光转化。此外,温度、离子强度、pH、光照强度等环境因素也会影响污染物的光化学转化。除了环境因素的影响外,抗生素光降解也受到自身结构的影响,如喹诺酮类、四环素类、磺胺类抗生素对光敏感。需要注意的是,不完全的光转化和光降解可能会导致稳定性或毒性化合物的生成,这对于光照强度较低的污水处理厂来说是一个值得关注的问题。

2.2.3 高级氧化

废水中高浓度有机物和残留的抗生素,仅通过传统的生物处理法很难达到预期的处理结果。在抗生素废水处理方面,电化学氧化、光催化氧化、化学氧化及各种氧化法联合应用均有研究,且处理效果较好,表明高级氧化技术在处理抗生素废水方面具有良好的应用前景。

研究表明,Fenton法可有效降解喹诺酮类、四环素类、大环内酯类和磺胺类抗生素。李再兴等^[29]采用Fenton氧化法对青霉素和土霉素混合废水二级处理出水进行深度处理,在最佳反应条件下COD去除率在75%以上,急性毒性(HgCl_2 毒性当量)小于0.07 mg/L。Huber等^[30]的研究表明, O_3 对废水中大环内酯类和磺胺类抗生素的氧化率超过90%。电化学氧化法已被成功用于家禽、屠宰等废水的处理,对养殖废水中的四环素和喹诺酮类抗生素的去除效果较好。光催化氧化法对难降解的氟喹诺酮类和四环素类抗生素都有很好的处理效果^[31]。总的来说,高级氧化法对抗生素的处理效率较高,但在实际水体中应用时应考虑降低成本并优化改进技术。

2.2.4 膜过滤

常用的膜过滤包括微滤(MF)、超滤(UF)、纳滤(NF)、反渗透(RO)、渗析、电渗析等,在工业废水处理中常用的有MF、UF、NF和RO。RO和NF在处理

抗生素废水方面具有很好的去除效果,RO出水中可检测到的目标化合物较少,为出水安全提供了保障,但需要避免膜污染事件的发生,防止出现更难处理的生物污染。UF由于孔径较大,对分子质量较小的抗生素的去除效果并不理想。膜处理技术联用是处理抗生素废水和回收废液中抗生素的一种有效方法,Kosutic等^[32]研究了四种纳滤膜和反渗透膜对含四环素类和磺胺类抗生素废水的处理效果,发现抗生素的去除率超过98.5%。

2.2.5 污泥、活性炭吸附

在水环境中,污泥和沉积物是水中污染物发生迁移转化的重要载体,抗生素在污水厂中也会被污泥、活性炭等物质吸附。不同抗生素与污泥之间的吸附作用不同,抗生素在活性污泥上的吸附可以用固液分配系数 K_d 来表征, K_d 值越大,抗生素就越容易与污泥结合而被污泥吸附去除。总体而言,不同抗生素吸附强度为四环素类>大环内酯类>氟喹诺酮类>磺胺类^[25]。影响吸附的因素主要包括吸附剂的性质、阳离子、pH等。有研究认为,污泥中的二价阳离子(如 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cu^{2+})可以与某些抗生素结合,这些阳离子可以吸附颗粒并形成更稳定的三元络合物^[33]。

活性炭(AC)对四环素类、大环内酯类、磺胺类和喹诺酮类抗生素均表现出较好的吸附特性。Kovalova等^[34]采用活性炭法处理污水处理厂出水中56种微量污染物(包括磺胺类、喹诺酮类、大环内酯类抗生素),其中对抗生素的去除率超过86%。Zhang等^[35]研究了粉末活性炭(PAC)对水中四环素类、大环内酯类、磺胺类和喹诺酮类等28种抗生素的去除效果,结果表明PAC对所选抗生素均有良好的去除效果。但AC的吸附量有限,且很难从高浓度有机废水中选择性吸附抗生素,因此关于活性炭吸附抗生素类污染物在实际污水厂中的应用还需进一步研究。

总体来说,物理化学法对抗生素的去除率更高,更适于针对抗生素的去除,但考虑到处理效率和环境污染等问题,几种处理工艺联用是高效处理抗生素的可行处理方法。UV+Fenton法是一种不错的抗生素去除方法,紫外波长的光与Fenton试剂中 Fe^{2+} 具有协同作用,可以提高Fenton试剂的氧化能力,加快有机物的降解速率,且在Fenton反应中使用的铁元素没有毒性^[36],不论对环境还是微生物来

说都是一种很有发展前景的废水处理方法。

3 结语

我国污水厂处理系统能够去除常规有机物,但对抗生素类污染物的去除能力有限。开发一种高效且低成本的应用工艺是未来需要深入研究的方向,建议采用源头控制方案,以减少水循环中抗生素的种类和数量。

① 对于污水处理厂来说,现在首先需要解决的是污水中检出率和检测浓度较高的抗生素,氧氟沙星、脱水红霉素、罗红霉素、磺胺甲恶唑等具有中高等级的生态风险,且污水处理厂对这些抗生素的整体去除效果并不是很好,因此,这些药物在后期污水厂处理抗生素类污染物时可以列为重要的环境污染物进行优先处理。

② 考虑到各地区抗生素的使用量及使用抗生素的种类不同,以及各污水处理厂服务区域、污水来源等条件的差异,区域分布很难作为影响抗生素去除效果的因素进行具体分析。

③ 针对我国现阶段污水厂中抗生素的处理情况,在生物处理过程中,可以适当调整操作参数,如污泥停留时间、水力停留时间以提高抗生素的去除效率。

④ 生物处理技术与高级氧化、膜处理技术联用是一种可行的抗生素处理方法。鉴于不同的排放风险,对于一般污水处理厂中抗生素的处理,考虑到成本和处理效果,建议强化优化生物处理工艺,必要时可采用UV和Fenton法进行深度处理,这样既降低了成本,又提高了抗生素的去除效率,同时也降低了污染物的环境风险。对于水质要求较高的地区,可选择MBR+RO联合工艺对污水进行处理。

参考文献:

- [1] HUANG X F, FENG Y, HU C, *et al.* Mechanistic model for interpreting the toxic effects of sulfonamides on nitrification [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, 305: 123-129.
- [2] 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.
- [3] WU M H, QUE C J, XU G, *et al.* Occurrence, fate and interrelation of selected antibiotics in sewage treatment plants and their receiving surface water [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2016, 132: 132-139.
- [4] ZHANG H, DU M M, JIANG H Y, *et al.* Occurrence, seasonal variation and removal efficiency of antibiotics and their metabolites in wastewater treatment plants, Jiulongjiang River basin, south China [J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2015, 17(1): 225-234.
- [5] YANG Y Y, LIU W R, LIU Y S, *et al.* Suitability of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) and artificial sweeteners (ASs) as wastewater indicators in the Pearl River Delta, south China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 590/591: 611-619.
- [6] LEUNG H W, MINH T B, MURPHY M B, *et al.* Distribution, fate and risk assessment of antibiotics in sewage treatment plants in Hong Kong, south China [J]. *Environment International*, 2012, 42: 1-9.
- [7] LIU X H, ZHANG G D, LIU Y, *et al.* Occurrence and fate of antibiotics and antibiotic resistance genes in typical urban water of Beijing, China [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 246: 163-173.
- [8] LIN H, LI H P, CHEN L L, *et al.* Mass loading and emission of thirty-seven pharmaceuticals in a typical municipal wastewater treatment plant in Hunan Province, southern China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, 147: 530-536.
- [9] YAN Q, GAO X, CHEN Y P, *et al.* Occurrence, fate and ecotoxicological assessment of pharmaceutically active compounds in wastewater and sludge from wastewater treatment plants in Chongqing, the Three Gorges Reservoir Area [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 470/471: 618-630.
- [10] 杨钊, 李江, 张圣虎, 等. 贵阳市污水处理厂中典型抗生素的污染水平及生态风险 [J]. *环境科学*, 2019, 40(7): 3249-3256.
YANG Zhao, LI Jiang, ZHANG Shenghu, *et al.* Pollution level and ecological risk of typical antibiotics in Guiyang wastewater treatment plants [J]. *Environmental Science*, 2019, 40(7): 3249-3256 (in Chinese).
- [11] HUANG H W, ZENG S Y, DONG X, *et al.* Diverse and abundant antibiotics and antibiotic resistance genes

- in an urban water system [J]. *Journal of Environmental Management*, 2019, 231:494–503.
- [12] 高俊红,王兆伟,张涵瑜,等. 兰州市污水处理厂中典型抗生素的污染特征研究 [J]. *环境科学学报*, 2016, 36(10): 3765–3773.
- GAO Junhong, WANG Zhaowei, ZHANG Hanyu, *et al.* Occurrence and the fate of typical antibiotics in sewage treatment plants in Lanzhou [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2016, 36(10): 3765–3773 (in Chinese).
- [13] LIU J, LU J J, TONG Y B, *et al.* Occurrence and elimination of antibiotics in three sewage treatment plants with different treatment technologies in Urumqi and Shihezi, Xinjiang [J]. *Water Science & Technology*, 2017, 75(6): 1474–1484.
- [14] WANG W H, ZHANG W F, LIANG H, *et al.* Occurrence and fate of typical antibiotics in wastewater treatment plants in Harbin, north-east China [J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2019, 13(3): 83–92.
- [15] ZHANG X, ZHAO H X, DU J, *et al.* Occurrence, removal, and risk assessment of antibiotics in 12 wastewater treatment plants from Dalian, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2017, 24(19): 16478–16487.
- [16] 杨程,郭劲松,STURM B S M,等. 不同污泥龄对活性污泥系统处理各种药物的影响 [J]. *中国给水排水*, 2012, 28(13): 99–102, 108.
- YANG Cheng, GUO Jinsong, STURM B S M, *et al.* Impact of sludge retention time on pharmaceuticals removal in activated sludge system [J]. *China Water & Wastewater*, 2012, 28(13): 99–102, 108 (in Chinese).
- [17] HOU J, WANG C, MAO D Q, *et al.* The occurrence and fate of tetracyclines in two pharmaceutical wastewater treatment plants of northern China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, 23(2): 1722–1731.
- [18] 王伟华. 松花江流域哈尔滨段典型抗生素的归趋及风险评价 [D]. 哈尔滨: 东北林业大学, 2018: 51–56.
- WANG Weihua. *The Distribution, Transformation and Risk Assessment of Typical Antibiotics in the Songhua River Basin of Harbin Section* [D]. Harbin: Northeast Forestry University, 2018: 51–56 (in Chinese).
- [19] 张新兵,吴琳琳,谷得明,等. 不同污水处理工艺对磺胺抗生素去除效果与生态风险评估 [J]. *给水排水*, 2020, 46(1): 39–44.
- ZHANG Xinbing, WU Linlin, GU Deming, *et al.* Removal efficiency and risk assessment of sulfonamide in wastewater treatment processes [J]. *Water & Wastewater Engineering*, 2020, 46 (1): 39–44 (in Chinese).
- [20] 柯润辉,蒋榆林,黄清辉,等. 上海某城市污水处理厂污水中药物类个人护理用品(PPCPs)的调查研究 [J]. *生态毒理学报*, 2014, 9(6): 1146–1155.
- KE Runhui, JIANG Yulin, HUANG Qinghui, *et al.* Investigative screening of pharmaceuticals in a municipal wastewater treatment plant in Shanghai [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2014, 9 (6): 1146–1155 (in Chinese).
- [21] 严清,张怡昕,高旭,等. 典型医药活性物质在污水处理厂中的归趋及其风险评估 [J]. *中国环境科学*, 2014, 34(3): 672–680.
- YAN Qing, ZHANG Yixin, GAO Xu, *et al.* Fate of pharmaceutically active compounds in a municipal wastewater treatment plant and risk assessment [J]. *China Environmental Science*, 2014, 34 (3): 672–680 (in Chinese).
- [22] XU W, ZHANG G, LI X, *et al.* Occurrence and elimination of antibiotics at four sewage treatment plants in the Pearl River Delta (PRD), south China [J]. *Water Research*, 2007, 41(19): 4526–4534.
- [23] ZHAO X, WANG X C, CHEN Z L, *et al.* Microbial community structure and pharmaceuticals and personal care products removal in a membrane bioreactor seeded with aerobic granular sludge [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2015, 99(1): 425–433.
- [24] 黄圣琳,何势,魏欣,等. 污水处理厂中四环素类抗生素残留及其抗性基因污染特征研究进展 [J]. *化工进展*, 2015, 34(6): 1779–1785.
- HUANG Shenglin, HE Shi, WEI Xin, *et al.* Pollution characteristics of tetracycline residues and tetracycline resistance genes in sewage treatment plants: a review [J]. *Chemical Industry and Engineering Progress*, 2015, 34 (6): 1779–1785 (in Chinese).
- [25] 高品. 典型抗生素和抗药性基因在污水处理系统中的归趋及迁移分布规律 [D]. 上海: 东华大学, 2011: 21–22.
- GAO Pin. *Fate, Transport and Distribution of Typical Antibiotics and Antibiotic Resistance Genes in a Sewage Treatment System* [D]. Shanghai: Donghua University, 2011: 21–22 (in Chinese).
- [26] LIU Z G, SUN P Z, PAVLOSTATHIS S G, *et al.*

- Inhibitory effects and biotransformation potential of ciprofloxacin under anoxic/anaerobic conditions [J]. *Bioresource Technology*, 2013, 150: 28–35.
- [27] 丁惠君. 鄱阳湖水环境抗生素污染特征及典型抗生素的吸附和降解研究 [D]. 武汉: 武汉大学, 2018: 9–10.
- DING Huijun. Study on the Characteristics of Antibiotics in Poyang Lake and the Adsorption and Degradation of Typical Antibiotics [D]. Wuhan: Wuhan University, 2018: 9–10 (in Chinese).
- [28] GUERARD J J, CHIN Y P, MASH H, *et al.* Photochemical fate of sulfadimethoxine in aquaculture waters [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43(22): 8587–8592.
- [29] 李再兴, 左剑恶, 剧盼盼, 等. Fenton氧化法深度处理抗生素废水二级出水 [J]. *环境工程学报*, 2013, 7(1): 132–136.
- LI Zaixing, ZUO Jian'e, JU Panpan, *et al.* Advanced treatment of secondary effluent of antibiotic wastewater using Fenton oxidation method [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2013, 7(1): 132–136 (in Chinese).
- [30] HUBER M M, GÖBEL A, JOSS A, *et al.* Oxidation of pharmaceuticals during ozonation of municipal wastewater effluents: a pilot study [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, 39(11): 4290–4299.
- [31] SOOD S, MEHTA S K, SINHA A S K, *et al.* Bi₂O₃/TiO₂ heterostructures: synthesis, characterization and their application in solar light mediated photocatalyzed degradation of an antibiotic, ofloxacin [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2016, 290: 45–52.
- [32] KOSUTIC K, DOLAR D, AŠPERGER D, *et al.* Removal of antibiotics from a model wastewater by RO/NF membranes [J]. *Separation and Purification Technology*, 2007, 53(3): 244–249.
- [33] PULICHARLA R, HEGDE K, BRAR S K, *et al.* Tetracyclines metal complexation: significance and fate of mutual existence in the environment [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 221: 1–14.
- [34] KOVALOVA L, SIEGRIST H, VON GUNTEN U, *et al.* Elimination of micropollutants during post-treatment of hospital wastewater with powdered activated carbon, ozone, and UV [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(14): 7899–7908.
- [35] ZHANG X B, GUO W S, NGO H H, *et al.* Performance evaluation of powdered activated carbon for removing 28 types of antibiotics from water [J]. *Journal of Environmental Management*, 2016, 172: 193–200.
- [36] 张玲, 王文文, 常红玉, 等. 抗生素废水处理方法的研究进展 [J]. *广州化工*, 2020, 48(5): 30–33.
- ZHANG Ling, WANG Wenwen, CHANG Hongyu, *et al.* Research progress on treatment of antibiotic wastewater [J]. *Guangzhou Chemical Industry*, 2020, 48(5): 30–33 (in Chinese).

作者简介: 刘玉学(1995–), 女, 甘肃敦煌人, 硕士研究生, 研究方向为水污染控制。

E-mail: 1939463885@qq.com

收稿日期: 2021-01-14

修回日期: 2021-02-22

(编辑: 丁彩娟)

深入实施乡村振兴战略, 促进人水和谐