

DOI:10.19853/j.zgjsps.1000-4602.2024.19.005

生物滤料去除饮用水中消毒副产物和抗性基因对比

高靖雨, 蔡武, 梁昊, 史国贵, 陈友怡, 吕来, 邢学辞,
胡春

(广州大学大湾区环境研究院 珠江三角洲水质安全与保护教育部重点实验室,
广东 广州 510006)

摘要: 为强化对水中复合微污染物的去除,制备了改性椰壳活性炭(CAC)和催化剂滤料(HCLL-S8-M),考察了其对含氮消毒副产物生成势(N-DBPsFP)和抗性基因(ARGs)的去除效果和机制。结果表明,在相同复合微污染物条件下(甲基对硫磷和2,4-二氯苯氧乙酸均为1 μg/L),改性CAC和HCLL-S8-M出水中卤代乙腈和卤代硝基甲烷的总生成势分别为385.15、464.18 ng/L,较进水分别降低了212.74、133.71 ng/L;进水、改性CAC和HCLL-S8-M出水中的ARGs相对丰度分别为4.35%、1.91%和2.88%。改性CAC和HCLL-S8-M可以高效去除溶解性有机物(DOC)和复合微污染物。生物滤料上微生物分泌的胞外聚合物更少,并可富集能够降解有机物的菌群。改性CAC和HCLL-S8-M可通过减少DBPs前体物的产生和ARGs的增殖,控制微污染物胁迫效应造成的间接饮用水水质风险。

关键词: 饮用水深度处理; 生物滤料; 消毒副产物; 抗性基因; 胞外聚合物

中图分类号: TU991 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-4602(2024)19-0031-08

Removal of Disinfection Byproducts and Antibiotic Resistance Genes in Drinking Water by Biological Filter Media

GAO Jing-yu, CAI Wu, LIANG Hao, SHI Guo-gui, CHEN You-yi, LÜ Lai,
XING Xue-ci, HU Chun

(Key Laboratory for Water Quality and Conservation of the Pearl River Delta <Ministry of Education>, Institute of Environmental Research at Greater Bay, Guangzhou University, Guangzhou 510006, China)

Abstract: To enhance the removal of composite micro-pollutants in water, modified coconut shell activated carbon (CAC) and catalyst filler (HCLL-S8-M) were prepared, and their removal effects and mechanisms on nitrogenous disinfection byproducts formation potential (N-DBPsFP) and antibiotic resistance genes (ARGs) were investigated. The results showed that the total formation potential of haloacetonitriles and halonitromethanes in the modified CAC and HCLL-S8-M effluent were 385.15 ng/L and 464.18 ng/L, which were 212.74 ng/L and 133.71 ng/L lower than that in influent. The relative

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(52150056、51838005); 广东省“珠江人才计划”引进创新创业团队项目(2019ZT08L387); 广东省自然科学基金资助面上项目(2023A1515011509); 广州市科技计划市校联合资助项目(202201020177)

通信作者: 胡春 E-mail: huchun@gzhu.edu.cn; 邢学辞 E-mail: xcxing@gzhu.edu.cn

abundance of ARGs in the influent, modified CAC and HCLL-S8-M effluent were 4.35%, 1.91% and 2.88% under the same complex micro-pollutants conditions (1 $\mu\text{g/L}$ for parathion-methyl and 2, 4-dichlorophenoxyacetic acid). Modified CAC and HCLL-S8-M could remove DOC including complex micro-pollutants. Microorganisms secreted less EPS, and those capable of degrading organic matter became dominant in effluent. Modified CAC and HCLL-S8-M reduced the production of DBPs precursors and proliferation of ARGs and helped to control indirect drinking water quality risks due to the stressful effects of micro-pollutants.

Key words: drinking water advanced treatment; biological filter media; disinfection byproducts; antibiotic resistance genes; extracellular polymeric substance

近年来,在河流、地下水和湖泊中检测出了许多痕量有机污染物^[1],当痕量污染物长期存在于水体中时会对饮用水造成严重危害^[2]。甲基对硫磷(MP)和2,4-二氯苯氧乙酸(2,4-D)在农业生产过程中被广泛使用,同时这两种污染物又可以增加人类患癌风险,对人类健康造成潜在威胁^[3-4]。有研究显示,非抗生素类有机物对微生物的胁迫效应,会造成水体中抗性基因(ARGs)的增殖^[5-6]。此外,在农药与抗生素构成的复合微污染物条件下,微生物将产生更强的抗性^[7]。随着环境中ARGs的水平不断升高,产生的耐药细菌可能影响人类健康^[8]。因此,在饮用水处理过程中对复合微污染物应给予重视。在饮用水深度处理过程中,常使用活性炭与微生物结合来降解有机物^[9]。有研究发现,生物活性炭表面的高生物量会引发ARGs的水平转移^[10]。微生物通过胞外聚合物(EPS)抵抗环境胁迫^[11],EPS主要由蛋白质(PN)、多糖(PS)和核酸构成。在饮用水消毒过程中,蛋白质中丰富的有机氮更容易成为含氮消毒副产物(N-DBPs)前体物^[12-13]。

一些研究发现,通过银纳米颗粒浸渍、磷酸活化和氧化铁负载等方法改性的活性炭可以强化对水体中有机污染物的降解^[14]。Xing等^[15]的研究显示, Fe_2O_3 改性活性炭可通过改变微生物群落和减少微生物分泌EPS来净化饮用水水质。Lyu等^[16-17]通过合成具有双反应中心(DRC)的新型材料实现了对有机污染物的高效降解。Cai等^[18]研究表明,有机污染物在催化剂贫电子区通过表面裂解给出电子,微生物在富电子区获得电子,这种协同作用削弱了污染物对微生物的胁迫效应。

笔者制备了负载 Fe_3O_4 的椰壳活性炭(改性CAC)和DRC催化剂(HCLL-S8-M)滤料,考察了两

者对饮用水水质的影响。通过实时荧光定量PCR和气相色谱检测ARGs和含氮消毒副产物生成势(N-DBPsFP),评价EPS的特性,并通过分析微生物群落结构变化,阐明生物滤料在饮用水处理过程中的增强机制,以期削弱复合微污染物对微生物的胁迫效应,降低水质恶化风险。

1 材料与方法

1.1 生物滤料制备

将10 g市售椰壳活性炭浸泡在800 mL超纯水中,加入9 g $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 和24.5 g $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$,搅拌20 min。加入氨水调节pH,随后在80 $^\circ\text{C}$ 下搅拌30 min,待冷却到室温后,使用2:1的乙醇和超纯水清洗。将样品在60 $^\circ\text{C}$ 下干燥24 h,然后继续在300 $^\circ\text{C}$ 下煅烧2 h,得到的样品即为改性CAC。

根据已报道的方法合成HCLL-S8-M^[19]:向3 mL超纯水中加入0.58 g $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 和0.55 g $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$,随后加入一定量的双氰胺,搅拌10 min;将混合物倒入装有10 g球形 Al_2O_3 颗粒(2 mm)的烧杯中,加入NaOH使溶液呈碱性,并在100 $^\circ\text{C}$ 下干燥12 h,得到的固体样品在500 $^\circ\text{C}$ 下煅烧1 h。

1.2 实验装置

生物过滤装置见图1。

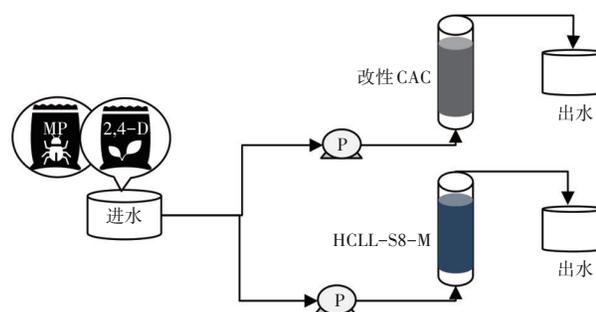


图1 生物过滤装置示意

Fig.1 Schematic of biofiltration system

分别以改性CAC和HCLL-S8-M为滤料制作两个反应器,模拟饮用水深度处理过程。进水为南方某饮用水厂的砂滤出水, COD_{Mn} 为 1.70 mg/L, UV_{254} 为 0.028 cm^{-1} , TOC 为 2.30 mg/L, 色度为 7 度, 浊度为 0.60 NTU。在进水中加入甲基对硫磷和 2,4-二氯苯氧乙酸各 1 $\mu\text{g/L}$ 。进水从底部泵入反应器,空床停留时间为 20 min,运行周期为 46 d。收集出水样品,进行化学和微生物分析。

1.3 溶解性有机物分析

采用总有机碳分析仪(TOC-L ASI-L,日本)测定溶解性有机碳(DOC)浓度,使用分光光度计(DR6000,美国)测量 UV_{254} 。根据 UV_{254} 和 DOC 值计算 SUVA。N-DBPsFP 根据已报道方法进行检测^[20]。采用荧光分光光度计(F-7000,日本)和液相色谱(1260 Infinity II,美国)分别测定三维荧光光谱(EEM)和高效排阻凝胶色谱(HPSEC)。

1.4 胞外聚合物分析

EPS 根据已报道方法进行提取,蛋白质和多糖分别采用改良 Lowry 法和苯酚-硫酸法测定^[20]。傅里叶变换红外光谱使用溴化钾粉末进行采集。

1.5 实时荧光定量PCR和宏基因组学分析

宏基因组学分析使用 Illumina NovaSeq/HiSeq Xten 测序平台,16S rRNA 和 ARGs 通过实时荧光定量 PCR(qPCR)进行检测。详细的 qPCR 流程、引物信息见文献^[20]。

2 结果与分析

2.1 对消毒副产物和抗性基因的去除

卤代乙腈(HANs)和卤代硝基甲烷(HNMs)的总生成势如图2所示。其中,前体物包括三氯乙腈(TCAN)、二氯乙腈(DCAN)、溴氯乙腈(BCAN)、二溴乙腈(DBAN)和三氯硝基甲烷(TCNM)。进水 N-DBPsFP 为 597.89 ng/L,经改性CAC和HCLL-S8-M过滤后,浓度分别降低至 385.15、464.18 ng/L。改性CAC和HCLL-S8-M对TCNM前体物的去除效果较好,相比进水(190.51 ng/L)分别下降了 92.10、75.41 ng/L。同样,DCAN前体物经过改性CAC和HCLL-S8-M过滤后,由 213.78 ng/L 分别下降到 124.30、153.46 ng/L,但其浓度仍最高。明显地,氯代N-DBPs浓度远高于溴代N-DBPs浓度,这是由于进水中溴离子含量很低。可见,在复合痕量农药存在下,两种滤料能够有效去除N-DBPs前体物。

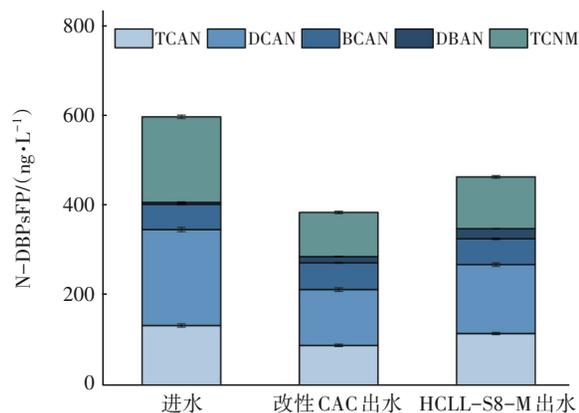


图2 进出水的 N-DBPsFP (n=3)

Fig.2 N-DBPsFP in raw and treated water samples (n=3)

进水中磺胺类抗性基因 *sul1*、*sul2* 和 *sul3* 的基因拷贝数分别为 $10^{5.11}$ 、 $10^{4.41}$ 和 $10^{2.68}$, 改性CAC和HCLL-S8-M出水的分别为 $10^{4.88}$ 、 $10^{4.46}$ 、 $10^{2.42}$ 和 $10^{4.86}$ 、 $10^{4.37}$ 、 $10^{1.78}$ 。以 ARGs/16S rRNA 表示相对丰度(进水及两种滤料出水 16S rRNA 基因拷贝数分别为 $10^{6.68}$ 、 $10^{6.84}$ 、 $10^{6.71}$), 相对于进水(3.22%), 改性CAC(1.48%)和HCLL-S8-M(1.89%)出水磺胺类 ARGs 的相对丰度分别下降了 54.05% 和 41.36%。因此,生物滤料对磺胺类抗性基因的增加有很好的抑制作用。此外,外排泵 *mexA* 基因拷贝数从 $10^{4.38}$ 分别下降到 $10^{4.00}$ (改性CAC) 和 $10^{3.69}$ (HCLL-S8-M), 相对丰度从 0.50% 下降到 0.14% 和 0.10%。因此,外排泵的降低,有利于抑制抗性基因的产生^[21]。整合子(*int1* 和 *int2*)基因拷贝数总和整体变化不大,进水、改性CAC和HCLL-S8-M出水分别为 $10^{5.30}$ 、 $10^{5.34}$ 和 $10^{5.55}$, 这可能是由于农药可以促进抗性基因水平转移,导致整合子丰度升高^[7]。以上结果表明,微生物在复合痕量农药胁迫下,两种生物滤料对 ARGs 增殖表现出优秀的抑制作用,使 ARGs 相对丰度由进水的 4.35% 分别降至 1.91% 和 2.88%。

2.2 对溶解性有机物的强化去除

进水及两种滤料装置出水 DOC 浓度见图 3(a)。进水 DOC 为 1.17~1.51 mg/L, 经过改性CAC和HCLL-S8-M处理后平均值分别降到 0.63 和 0.83 mg/L, SUVA 由 1.89 L/(mg·m) 分别降至 1.31 和 1.60 L/(mg·m), 说明两种滤料可有效降解芳香结构有机物和 DBPs 前体物^[22]。由图 3(b)可知,生物滤料处理后出水中高分子质量部分(> 1 ku)明显下降,而这部分有机物也可贡献 DBPs 前体物^[23]。

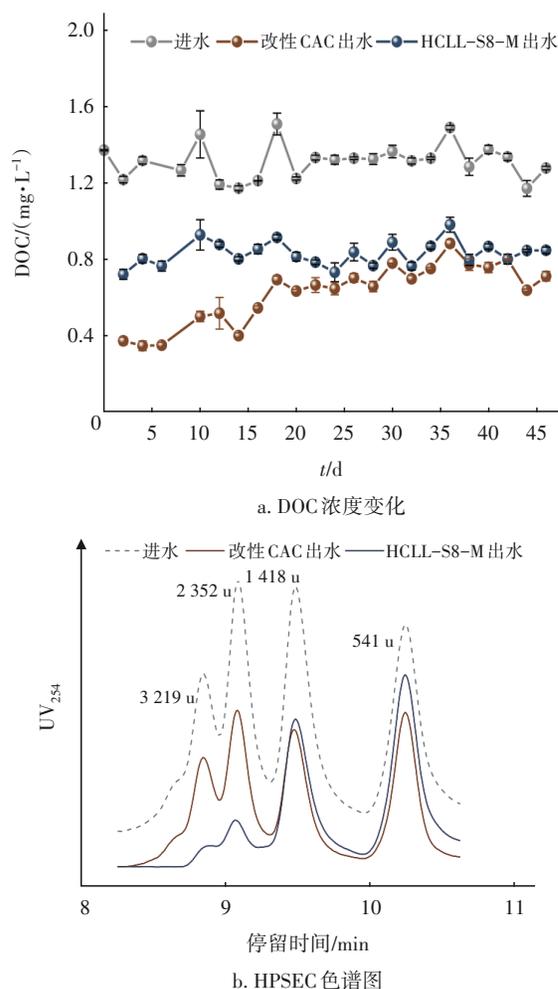


图 3 进出水 DOC 浓度和 HPSEC 色谱图
Fig.3 Changes of DOC and HPSEC in influent and effluent

图 4 为进水及不同滤料出水中有机物的 EEM。很明显,经过生物滤料过滤后,富里酸类物质(Peak B: $\lambda_{Ex}/\lambda_{Em}=200\sim250\text{ nm}/380\sim480\text{ nm}$)和腐殖酸类物质(Peak D: $\lambda_{Ex}/\lambda_{Em}=250\sim370\text{ nm}/380\sim480\text{ nm}$)下降明显,且两者均是 DBPs 前体物^[24]。此外,芳香蛋白质类物质(Peak A: $\lambda_{Ex}/\lambda_{Em}=220\sim250\text{ nm}/280\sim380\text{ nm}$)和溶解性微生物代谢产物(Peak C: $\lambda_{Ex}/\lambda_{Em}=250\sim340\text{ nm}/280\sim380\text{ nm}$)也是氯消毒过程中重要的 DBPs 前体物^[25]。有报道指出,生物膜不仅可以作为 DBPs 的前体物,还能促进微生物之间的水平基因转移,导致 ARGs 相对丰度增加^[26-27]。结果表明,两种滤料对 DOC 和 DBPs 前体物有很好的去除效果,包括水中的有机微污染物。进一步说明改性 CAC 和 HCLL-S8-M 可有效降低复合微污染物对微生物的胁迫效应,从而降低消毒副产物和抗性基因风险。

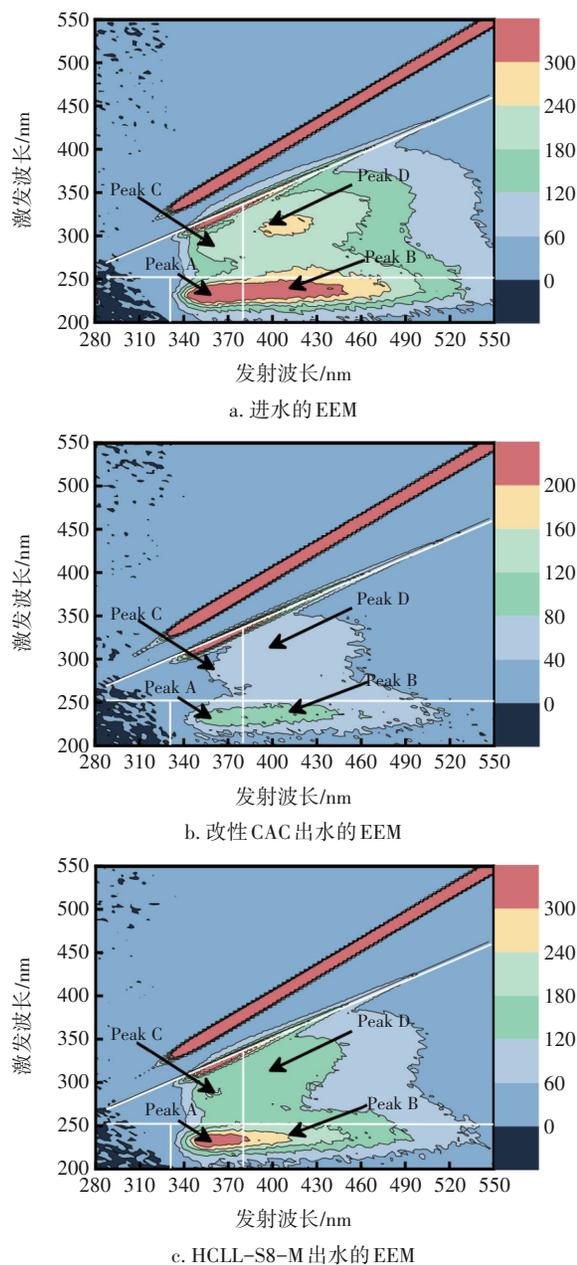


图 4 进水和出水三维荧光光谱的变化

Fig.4 Changes of EEM in influent and effluent

2.3 生物滤料微生物的响应

经测定,改性 CAC 和 HCLL-S8-M 出水中蛋白质含量分别为 1.45、1.71 mg/L,低于进水的 1.93 mg/L;同时,两种滤料出水多糖含量(0.91、0.97 mg/L)也低于进水(1.26 mg/L),这有利减少细菌细胞之间的链接位点^[28]。三维光谱显示,EPS 样品有 Peak A、Peak B、Peak C 和 Peak D 四个峰,分别代表芳香蛋白质类物质、富里酸类物质、溶解性微生物代谢产物和腐殖酸类物质,生物过滤后四个峰强度都显

著下降。出水中芳香蛋白质类物质和溶解性微生物代谢产物峰强度的下降与EPS中蛋白质和多糖含量的下降一致。因此,蛋白质可能在DBPs和ARGs的贡献中发挥了重要作用。丰富的蛋白质类物质(包括胺、氨基酸、氨基糖和硝基甲烷分子)可以作为消毒副产物前体物,经生物过滤后,N-DBPsFP低于其在进水中的浓度^[29]。EPS作为生物膜的重要组成部分,可以促进微生物生长以及对寡营养条件的抵抗和适应。由此证明微生物群落通过分泌EPS抵御环境胁迫^[30]。同时,改性CAC和HCLL-S8-M通过削弱复合微污染物对微生物的胁迫效应,减少EPS分泌,从而减弱微生物之间的ARGs水平转移。

此外,蛋白质含有丰富的表面官能团,相比多糖更能影响EPS的疏水性,当PN/PS升高时,说明其疏水性增强。进水、改性CAC和HCLL-S8-M出水的PN/PS分别为1.54、1.60、1.77,表明疏水性提高。表1为水中悬浮EPS酰胺I区蛋白质二级结构所占比例的拟合结果。其主要分为聚合链、 β -折叠、无规则卷曲、 α -螺旋、三向螺旋和反平行/ β -折叠,通常EPS疏水性的强弱与 α -螺旋和 β -折叠占比呈正相关^[31]。进水EPS中蛋白质二级结构的 α -螺旋和 β -折叠之和为31.41%,其在改性CAC和HCLL-S8-M出水中分别为40.57%和42.53%。与上述PN/PS分析结果一致。此外,水中悬浮EPS是由于滤料表面附着的EPS脱落,二者具有一致性。由此证明,生物滤料可以改变微生物群落,从而影响EPS的凝聚效率,较高的EPS凝聚性可以减少其脱落风险,从而控制消毒副产物前体物的生成。

表1 水体中EPS蛋白质二级结构占比

Tab.1 Percentage of protein secondary structures of EPS in water samples

项目	波数/cm ⁻¹	所占比例/%		
		进水	改性CAC出水	HCLL-S8-M出水
聚合链	1 625~1 610	22.53	19.00	17.40
β -折叠	1 640~1 630	18.68	21.52	24.26
无规则卷曲	1 645~1 640	26.19	18.26	19.79
α -螺旋	1 657~1 648	12.73	19.05	18.27
三向螺旋	1 672~1 659	15.38	15.65	14.45
反平行/ β -折叠	1 695~1 680	4.50	6.52	5.83

对改性CAC滤料中Fe 2p的XPS分析结果显示,位于711.4和724.9 eV的两个主峰代表Fe 2p_{3/2}和Fe 2p_{1/2},未使用的改性CAC滤料中Fe²⁺/Fe³⁺为

0.87,由于附着在改性CAC滤料表面生物膜从Fe中获取电子,导致Fe²⁺比例降低,因此使用46 d后Fe²⁺/Fe³⁺减小到0.69。相比未使用的改性CAC滤料,使用以后的改性CAC滤料CV(电流-电势)曲线矩形程度增强,电子转移电阻大幅降低,表明改性CAC滤料表面的EPS具有高效的电子转移能力。在Cu 2p_{2/3}的XPS中Cu⁺和Cu²⁺的结合能分别为933.0、935.0 eV,未使用的HCLL-S8-M滤料中Cu⁺/Cu²⁺为1.20,使用2 h和46 d后则分别增加到3.43和2.25。结果证明,水体中有机物通过静电作用吸附在HCLL-S8-M的贫电子区,通过 π - π 作用诱导电子向富电子区转移,从而导致Cu⁺/Cu²⁺升高^[32]。微生物通过EPS从HCLL-S8-M的富电子区获得电子,导致使用46 d后比使用2 h的HCLL-S8-M中Cu⁺/Cu²⁺略有下降。根据上述实验结果,两种滤料能够避免微生物对有机物能量利用,从而减弱了复合微污染物对微生物的胁迫效应。

水体中门水平上的微生物群落结构见图5。进水中的门主要为变形菌门(*Proteobacteria*)、放线菌门(*Actinobacteria*)、浮霉菌门(*Planctomycetota*)和酸杆菌门(*Acidobacteria*),相对丰度分别为53.89%、25.73%、5.37%和4.84%。经过滤后,改性CAC和HCLL-S8-M中变形菌门分别增至75.85%和79.70%,放线菌门降至10.52%和4.58%,浮霉菌门降至1.45%和1.67%,酸杆菌门降至0.69%和1.55%。同时,改性CAC出水中绿弯菌门(*Chloroflexi*)和衣原体门(*Chlamydiae*)由进水的0.20%和0.43%增至2.21%和1.22%。HCLL-S8-M出水中拟杆菌门(*Bacteroidota*)占比为8.23%,高于进水的4.09%。

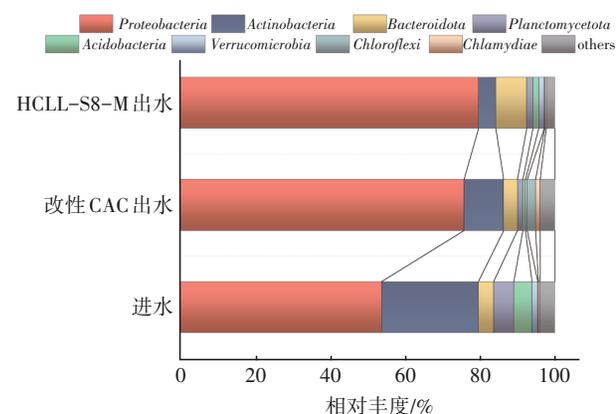


图5 在门水平上的微生物群落结构分布

Fig.5 Relative abundance of bacteria at phylum

进水及两个滤池出水中属水平上的微生物群

落分布见图 6。两种滤料能富集降解有机物的细菌,使其成为优势菌群。在改性 CAC 中,氢噬胞菌属 (*Hydrogenophaga*) 和生丝微菌属 (*Hyphomicrobium*) 的相对丰度增加可能和参与铁氧化还原循环有关。两种滤料出水中可降解有机物的阿菲波菌属 (*Afipia*)、沉积物杆状菌属 (*Sediminibacterium*) 和新鞘酯属 (*Novosphingobium*) 的相对丰度明显高于进水。

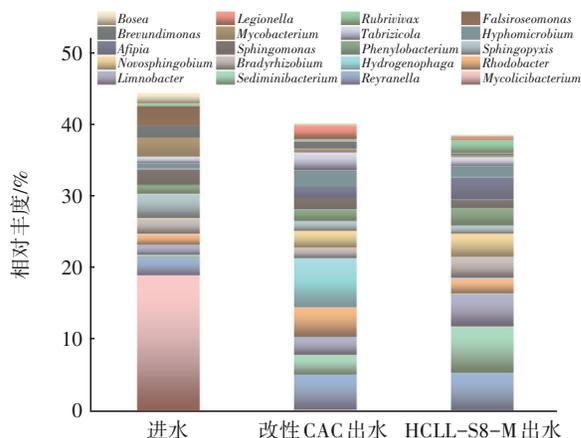


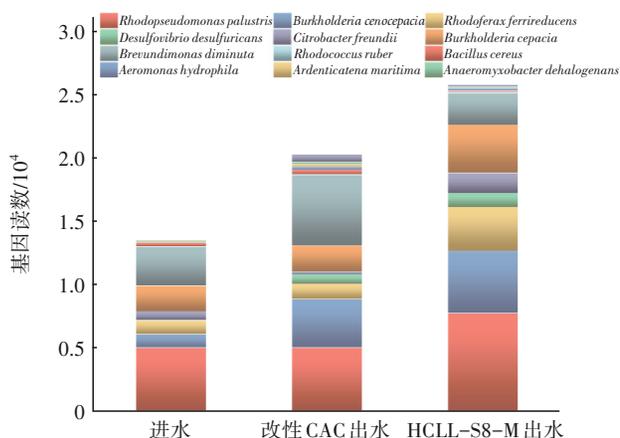
图 6 在属水平上的微生物群落结构分布

Fig.6 Relative abundance of bacteria at at genus

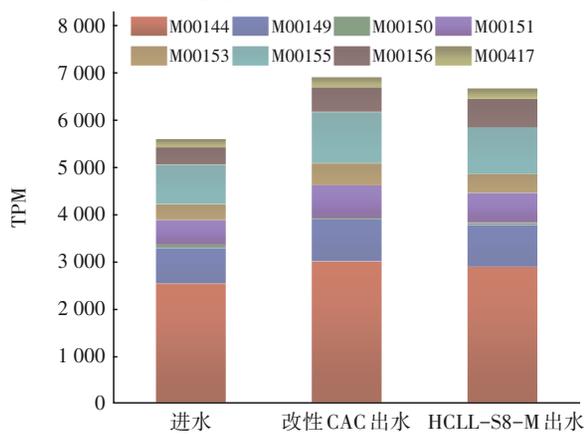
对属水平上的微生物多样性指标进行了分析,进水、改性 CAC 和 HCLL-S8-M 出水中实际检测到的物种数分别为 5 133、4 617 和 4 223,改性 CAC 和 HCLL-S8-M 出水的 Shannon 指数 (4.71 和 4.42) 高于进水 (4.38),而 Simpson 指数低于进水 (分别为 0.02、0.03、0.05)。说明经过生物滤池处理后出水中微生物群落丰富度降低,而多样性升高。微生物在属水平的主成分分析 (PCA) 显示,样品之间的微生物群落存在很大差异,表明不同生物滤料对塑造微生物群落结构至关重要。

进出水中典型电化学活性细菌种水平基因读数见图 7(a)。典型的电活性细菌包括红假单胞菌 (*Rhodopseudomonas palustris*)、新洋葱伯克霍尔德菌 (*Burkholderia cenocepacia*)、铁还原红育菌 (*Rhodoferax ferrireducens*)、缺陷短波单胞菌 (*Brevundimonas diminuta*)、脱硫弧菌 (*Desulfovibrio desulfuricans*)、弗氏柠檬酸杆菌 (*Citrobacter freundii*) 和洋葱伯克霍尔德菌 (*Burkholderia cepacia*)。在改性 CAC 和 HCLL-S8-M 滤料出水中电化学活性细菌基因表达量上升,证明两种滤料对电活性微生物具有选择性富集作用。微生物的氧化磷酸化过程是电子传递的重要途径^[18]。由图 7(b)可知,两种滤池出水中参与氧

化磷酸化的模块基因每百万转录本数 (TPM) 比进水要高,因此两种滤料为微生物提供电子进行生物利用,从而削弱了污染物对微生物的胁迫效应,微生物分泌 EPS 行为相应减弱,从而减少 DBPs 前体物浓度并抑制 ARGs 增殖。而传统生物滤料表面微生物基于自身代谢活动高效降解有机物的同时,微污染物对其胁迫效应显著增强,从而引起抗性基因等微生物水质风险。与传统滤料相比,改性 CAC 和 HCLL-S8-M 滤料不仅具有高效去除溶解性有机物的能力,同时还可削弱微污染物的胁迫效应,为控制微生物应激反应诱发的间接水质风险提供了思路。



a. 典型电化学活性细菌种水平基因读数



b. 微生物氧化磷酸化模块的 TPM

图 7 典型电化学活性细菌种水平基因读数和微生物氧化磷酸化模块的 TPM

Fig.7 Gene read number of typical electrochemically active bacteria at species level and expression of genes associated with module related to oxidative phosphorylation

3 结论

① 改性 CAC 和 HCLL-S8-M 可以有效去除 N-DBPs 前体物、ARGs、溶解性有机物和低浓度复合微污染物,起到净化水质作用。

② 改性CAC和HCLL-S8-M滤料中微生物分泌的EPS更少,高疏水性使其更加稳定地附着在滤料表面。两种生物滤料可以富集具有降解有机物功能的菌群。

③ 改性CAC和HCLL-S8-M滤料通过降解复合微污染物减弱微生物的胁迫效应,从而控制DBPs前体物的产生和ARGs增殖,有效控制微生物的应激反应造成的间接饮用水水质风险。

参考文献:

- [1] ALSBAIEE A, SMITH B J, XIAO L, *et al.* Rapid removal of organic micropollutants from water by a porous beta-cyclodextrin polymer [J]. *Nature*, 2016, 529: 190–194.
- [2] SU Z, YU W, LIU T, *et al.* Discovery of welcome biopolymers in surface water: improvements in drinking water production [J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, 55: 2076–2086.
- [3] LIAO X P, ZHANG C X, NAN C, *et al.* Phenol driven changes onto MnO₂ surface for efficient removal of methyl parathion: the role of adsorption [J]. *Chemosphere*, 2021, 269: 128695.
- [4] TOMASZ N, ADAM K, MICHAL C, *et al.* Quantification of 2, 4-dichlorophenoxyacetic acid in environmental samples using imprinted polyethyleneimine with enhanced selectivity as a selective adsorbent in ambient plasma mass spectrometry [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2024, 467: 133661.
- [5] CAREY D E, MCNAMARA P J. Altered antibiotic tolerance in anaerobic digesters acclimated to triclosan or triclocarban [J]. *Chemosphere*, 2016, 163: 22–26.
- [6] GAZE W H, ABDOUSLAM N, HAWKEY P M, *et al.* Incidence of class I integrons in a quaternary ammonium compound-polluted environment [J]. *Antimicrobial Agents Chemotherapy*, 2005, 49: 1802–1807.
- [7] KURENBACH B, MARJOSHI D, AMABILE-CUEVAS C F, *et al.* Sublethal exposure to commercial formulations of the herbicides Dicamba, 2, 4-dichlorophenoxyacetic acid, and glyphosate cause changes in antibiotic susceptibility in *Escherichia coli* and *Salmonella enterica* serovar *Typhimurium* [J]. *mBio*, 2015, 6: e00009–e00015.
- [8] 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 Jinfeng, WANG Bin, LIAO Yang, *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 (in Chinese).
- [9] FU J, LEE W N, COLEMAN C, *et al.* Removal of disinfection byproduct (DBP) precursors in water by two-stage biofiltration treatment [J]. *Water Research*, 2017, 123: 224–235.
- [10] XIN K, CHEN X, ZHANG Z, *et al.* Trace antibiotics increase the risk of antibiotic resistance genes transmission by regulating the biofilm extracellular polymeric substances and microbial community in the sewer [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2022, 432: 128634.
- [11] LI J, YE W, WEI D, *et al.* System performance and microbial community succession in a partial nitrification biofilm reactor in response to salinity stress [J]. *Bioresource Technology*, 2018, 270: 512–518.
- [12] WANG Z, CHOI O, SEO Y. Relative contribution of biomolecules in bacterial extracellular polymeric substances to disinfection byproduct formation [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47: 9764–9773.
- [13] LEE W, WESTERHOFF P, CROUE J P. Dissolved organic nitrogen as a precursor for chloroform, dichloroacetonitrile, N-nitrosodimethylamine, and trichloronitromethane [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, 41: 5485–5490.
- [14] LI Z S, LI T, XING X C, *et al.* Inhibiting the increase of antibiotic resistance genes during drinking water distribution by superior microbial interface using Fe modified granular activated carbon [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2022, 335: 130225.
- [15] XING X C, LI T, BI Z H, *et al.* Enhancing inhibition of disinfection byproducts formation and opportunistic pathogens growth during drinking water distribution by Fe₂O₃/coconut shell activated carbon [J]. *Environmental Pollution*, 2021, 268: 115838.
- [16] LYU L, YAN D B, YU G F, *et al.* Efficient destruction of pollutants in water by a dual-reaction-center Fenton-like process over carbon nitride compounds-complexed Cu (II) -CuAlO₂ [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52 (7): 4294–4304.
- [17] LYU L, YU G F, ZHANG L L, *et al.* 4-

- phenoxyphenol-functionalized reduced graphene oxide nanosheets: a metal-free Fenton-like catalyst for pollutant destruction [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52 (7): 747-756.
- [18] CAI W, ZHANG P, XING X C, *et al.* Synergetic effects of catalyst-surface dual-electric centers and microbes for efficient removal of ciprofloxacin in water [J]. *Water Research*, 2023, 245: 120541
- [19] LYU L, ZHANG G, HE H, *et al.* Selective H₂O₂ conversion to hydroxyl radicals in the electron-rich area of hydroxylated C-g-C₃N₄/CuCo-Al₂O₃ [J]. *Journal of Materials Chemistry*, 2017, 5: 7153-7164.
- [20] GAO J Y, XING X C, CAI W, *et al.* Effect of micropollutants on disinfection byproducts and antibiotic resistance genes in drinking water in the process of biological activated carbon treatment [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2024, 461: 132304.
- [21] WANG H B, HU C, LIU L Z, *et al.* Interaction of ciprofloxacin chlorination products with bacteria in drinking water distribution systems [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2017, 339: 174-181.
- [22] 王俊奇, 李伟, 辛慧宇, 等. 常规净水工艺中DBPFP的指示指标筛选及应用 [J]. *中国给水排水*, 2022, 38 (15): 7-13.
WANG Junqi, LI Wei, XIN Huiyu, *et al.* Screening and application of indicators for the formation potential of disinfection byproducts in conventional water purification processes [J]. *China Water & Wastewater*, 2022, 38 (15): 7-13 (in Chinese).
- [23] 陶辉, 陈怿扬, 蒋福春, 等. 纳滤对饮用水消毒副产物前体物的去除性能 [J]. *中国给水排水*, 2023, 39 (17): 38-44.
TAO Hui, CHEN Yiyang, JIANG Fuchun, *et al.* Rejection of disinfection by-products precursors by nanofiltration in drinking water treatment [J]. *China Water & Wastewater*, 2023, 39 (17): 38-44 (in Chinese).
- [24] YANG X, SHANG C, LEE W, *et al.* Correlations between organic matter properties and DBP formation during chloramination [J]. *Water Research*, 2008, 42 (8/9): 2329-2339.
- [25] YANG L, KIM D, UZUN H, *et al.* Assessing trihalomethanes (THMs) and N-nitrosodimethylamine (NDMA) formation potentials in drinking water treatment plants using fluorescence spectroscopy and parallel factor analysis [J]. *Chemosphere*, 2015, 121: 84-91.
- [26] ZHENG J, LIN T, CHEN W, *et al.* Removal of precursors of typical nitrogenous disinfection byproducts in ozonation integrated with biological activated carbon (O₃/BAC) [J]. *Chemosphere*, 2018, 209: 68-77
- [27] JIA F, YANG Q, LIU X, *et al.* Stratification of extracellular polymeric substances (EPS) for aggregated Anammox microorganisms [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51: 3260-3268
- [28] YUAN S J, SUN M, SHENG G P, *et al.* Identification of key constituents and structure of the extracellular polymeric substances excreted by *Bacillus megaterium* TF10 for their flocculation capacity [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 45 (3): 1152-1157.
- [29] ZHENG J, CHEN T, CHEN H. Antibiotic resistome promotion in drinking water during biological activated carbon treatment: is it influenced by quorum sensing? [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 612: 1-8.
- [30] 沈怡, 王海波, 胡春, 等. 微污染物对饮用水管网中微生物再生长的影响 [J]. *中国给水排水*, 2020, 36 (21): 15-20.
SHEN Yi, WANG Haibo, HU Chun, *et al.* Effect of micro-pollutants on bacterial regrowth in drinking water pipelines [J]. *China Water & Wastewater*, 2020, 36 (21): 15-20 (in Chinese).
- [31] CAO X, XU L, CHEN Y P, *et al.* Contribution, composition, and structure of EPS by in vivo exposure to elucidate the mechanisms of nanoparticle-enhanced bioremediation to metals [J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, 56: 896-906.
- [32] XING X C, LYU L, YAN Z, *et al.* Self-purification of actual wastewater via microbial-synergy driving of catalyst-surface microelectronic field: a pilot-scale study [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2023, 457: 131744.

作者简介:高靖雨(1996-),男,河南郑州人,博士,主要研究方向为饮用水安全保障技术。

E-mail:gaojingyu0114@163.com

收稿日期:2024-01-22

修回日期:2024-02-29

(编辑:李德强)