

## 环境保护

文章编号: 1001-8689(2023)04-0473-08

## 多级厌氧系统对土霉素菌渣无害化处理的中试研究

徐建清<sup>1,2</sup> 陈舟舟<sup>2</sup> 陈代杰<sup>2</sup> 林挺<sup>2</sup> 谭俊<sup>3</sup> 黄镇宇<sup>4</sup> 储消和<sup>1</sup> 刘鹏宇<sup>2,\*</sup>

(1 浙江工业大学长三角绿色制药协同创新中心, 杭州 310014; 2 上海交通大学药学院, 上海 200240;

3 上海医药工业研究院, 上海 201203; 4 浙江工业大学食品科学与工程学院, 杭州 310014)

**摘要:** **目的** 研究多级厌氧系统对土霉素菌渣的减量化和无害化处理的水平以及沼泥对沙化土壤和紫花苜蓿的改良促进作用。**方法** 以化学需氧量(COD)为减量化验证参数, 土霉素含量为无害化验证参数, 通过检测处理前后COD和土霉素的变化考察多级厌氧系统的降解效率。以土壤养分和植物萌芽率及株高为资源化验证参数, 以土壤中土霉素抗性基因含量为无害化验证参数, 通过检测施加沼泥前后各参数的变化考察沼泥的资源化和无害化利用。**结果** 经3个周期的多级厌氧系统处理, 土霉素菌渣中COD降解率达到87.58%, 土霉素含量降解率达到99.44%; 施加沼泥至沙化土壤后, 有机质含量增加1645.74%, 全氮含量增加3654.39%, 全磷含量增加29.17%, 全钾含量增加31.08%, 紫花苜蓿株高提高166.16%, 土壤中抗性基因*int11*、*tetC*和*tetW*含量下降, 抗性基因*tetM*含量无明显变化, 抗性基因*tetQ*含量显著上升。**结论** 多级厌氧系统能够实现土霉素菌渣的减量化和无害化处理, 沼泥具有改良沙化土壤养分和促进植物生长的效果, 对部分抗性基因有促降解作用, 但仍需关注抗性基因*tetQ*的变化。

**关键词:** 多级厌氧系统; 土霉素菌渣; 抗性基因; 减量化; 无害化**中图分类号:** R978.1 **文献标志码:** A

## Pilot study on the harmless treatment of oxytetracycline residues by multi-stage anaerobic system

Xu Jian-qing<sup>1,2</sup>, Chen Zhou-zhou<sup>2</sup>, Chen Dai-jie<sup>2</sup>, Lin Ting<sup>2</sup>, Tan Jun<sup>3</sup>,Huang Zhen-yu<sup>4</sup>, Chu Xiao-he<sup>1</sup>, and Liu Peng-yu<sup>2</sup>

(1 Collaborative Innovation Center of Yangtze River Delta Region Green Pharmaceuticals, Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310014; 2 School of Pharmacy, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240; 3 Shanghai Institute of Pharmaceutical Industry, Shanghai 201203; 4 College of Food Science and Technology, Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310014)

**Abstract Objective** To study the level of reduction and harmless treatment of oxytetracycline residues by multi-stage anaerobic system and the improvement and promotion of sludge on desertified soil and alfalfa. **Methods** Taking chemical oxygen demand (COD) as a reduction verification parameter, and oxytetracycline content as a harmless verification parameter, the degradation efficiency of the multi-stage anaerobic system was investigated by detecting changes in COD and oxytetracycline before and after treatment. Taking soil nutrients,

**收稿日期:** 2022-02-24**基金项目:** 微生物代谢国家重点实验室开放课题计划资助(No. MMLKF20-06); 工业和信息化部“微生物发酵类原料药的发酵废水和菌渣处理技术项目”计划资助(No. CEIEC-2020-ZM02-0165); “科技兴蒙”行动重点专项“有机固废制备新型微生物肥料及其配套的沙化土壤改良技术开发及产业化示范”资助(No. 112)**作者简介:** 徐建清, 男, 生于1997年, 在读硕士研究生, 研究方向: 沙化土壤修复, E-mail: suffer.ctrl@qq.com

\*通讯作者, E-mail: lpsipi@163.com

plant germination rate and plant height as resource verification parameters, and oxytetracycline ARGs content in soil as harmless verification parameters, resources and harmless utilization of the sludge is investigated by detecting the changes of various parameters before and after applying sludge. **Results** After 3 cycles of multi-stage anaerobic system treatment, the degradation rate of COD in the oxytetracycline residues reached 87.58%, and the degradation rate of oxytetracycline content reached 99.44%; after applying sludge to the sandy soil, the organic matter content increased by 1645.74 %, total nitrogen content increased by 3654.39%, total phosphorus content increased by 29.17%, total potassium content increased by 31.08%, alfalfa plant height increased by 166.16%, and the contents of ARGs *intII*, *tetC* and *tetW* in the soil decreased significantly, the content of *tetM* did not change significantly, and the content of *tetQ* increased significantly. **Conclusion** The multi-stage anaerobic system can achieve the reduction and harmless treatment of oxytetracycline residues. The sludge can improve the nutrients of sandy soil and promote the growth of plant, and it can promote the degradation of some ARGs' content, but still need to pay attention to the changes of *tetQ*.

**Key words** Multi-stage anaerobic system; Oxytetracycline residues; ARGs; Reduction; Harmlessness

抗生素菌渣中粗蛋白、粗纤维等有机质含量丰富,资源化价值高,抗生素菌渣在2008年因残留抗生素进入土壤后影响农作物生长<sup>[1]</sup>、易污染排放地的微生物群落导致超级细菌的诞生<sup>[2]</sup>、又进一步渗透转移至地表水和地下水<sup>[3]</sup>等一系列危害被专家组定义为高危固废,后被列入《国家危险废物名录》<sup>[4]</sup>,只能选择成本大且存在二次污染风险的填埋和焚烧方法<sup>[5]</sup>;而我国现存药企数量多、规模小,对于产生的大量抗生素菌渣缺乏科学有效的处理。基于此,抗生素菌渣的无害化处理和资源化利用成为研究热点<sup>[6]</sup>。本研究采用的土霉素菌渣属于四环素抗生素中的一种,广泛应用于禽类兽类鱼类的动物饲料中,用于抵抗防范养殖物病害<sup>[7]</sup>。随着土霉素生产技术的提高以及抗病效果优异,土霉素产量和需求逐年上涨,其生产过程中产生的菌渣也逐渐成为新的环境处理问题<sup>[8]</sup>。

近年来对土霉素菌渣的减量化处理大多采用物理处理(填埋)、化学处理(焚烧)、生物处理(好氧堆肥和厌氧消化)。其中填埋处理是较为普遍的固废处理方式,技术成本低,处理量大,然而填埋存在需要占用大量土地、渗透液污染环境、处理时间长等问题;焚烧处理是将菌渣在800℃至1200℃的焚烧炉中进行燃烧,土霉素残留的去除效果较好,缺点是前期设备投入和后期燃料消耗的成本过高,同时焚烧不当会导致二次污染<sup>[9]</sup>;好氧堆肥是利用微生物通过高温发酵对有机质进行腐化和降解从而达到土霉素菌渣的无害化,郭梦婷<sup>[10]</sup>研究发现,10、50、100和

150 mg/kg土霉素残留处理在30 d堆肥后土霉素的降解率分别为27.22%、81.06%、88.3%和82.64%;厌氧消化是指在没有游离氧的条件下,以厌氧微生物为主对有机物进行降解、稳定的一种无害化处理方式<sup>[11]</sup>。传统的厌氧消化以单极厌氧罐为主,本研究采用的多级厌氧系统进行了分级分相工艺优化,使得厌氧消化3个阶段的反应效率达到最大。

本研究采用多级厌氧降解技术对土霉素菌渣进行减量化和无害化处理,该反应系统此先已在阿卡波糖、螺旋霉素等制药废渣中应用,效果显著<sup>[12]</sup>。

四环素类抗生素的固-液吸附分配系数远高于常见的磺胺类抗生素,易在土壤中吸附积累,破坏微生物群落,使其产生抗性基因,进而破坏土壤生态系统中的物质能量双链条。同时,蔬菜作物亦可能直接吸收四环类抗生素,威胁食品安全<sup>[13]</sup>。本研究通过实验室花盆小试来验证土霉素菌渣经过多级厌氧降解后对生态环境的影响<sup>[14]</sup>,以期对土霉素菌渣的无害化处理与资源化利用提供相关研究借鉴。

## 1 试验材料与方法

### 1.1 土霉素发酵菌渣及接种污泥来源

土霉素发酵菌渣取自内蒙古某制药厂,呈棕黄色颗粒状,pH约为8~10,在厌氧处理前需将其粉碎后加水搅匀配成固体含量为40 g/L的菌渣液,再由螺杆泵泵入多级厌氧系统进行中试试验。多级厌氧系统的接种污泥取自内蒙古某制药厂污水站UASB反应器中的厌氧污泥,污泥含量约为40~50 g/L。

### 1.2 中试设备及运行过程

多级厌氧系统主要由3部分组成，一是配料预处理池，主要用于配制中试试验所用的土霉素菌渣液；二是主反应器，包括水解酸化池、pH调节池和3个串联的厌氧罐，是土霉素菌渣厌氧降解的主要场所；三是污泥沉淀及浓缩池，主要用于厌氧污泥回流及产生的沼泥浓缩。中试试验所用的配料预处理池有效容积为2 m<sup>3</sup>，配备搅拌混匀装置；水解酸化池有效容积为0.25 m<sup>3</sup>，接种污泥为池体有效容积的

1/2；pH调节池有效容积为0.1 m<sup>3</sup>，该池配置酸碱加药装置，用于调节水解酸化池出料的pH；3个厌氧罐的直径为0.7 m，高度为3.6 m，每个厌氧塔的有效容积为1 m<sup>3</sup>，接种污泥为各个厌氧塔有效容积的1/2，每个厌氧塔配备回流泵，可进行厌氧罐内污泥的循环搅拌，各个厌氧罐外侧设有电加热套，可稳定维持运行温度35℃；污泥沉淀池的有效容积为0.3 m<sup>3</sup>，污泥浓缩池的有效容积为2 m<sup>3</sup>(图1)。

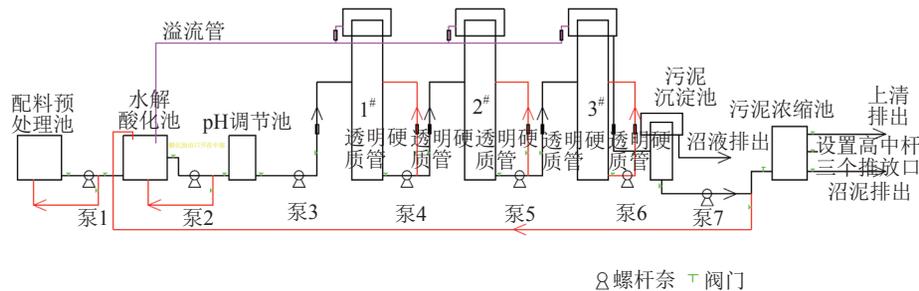


图1 多级厌氧系统中试处理流程示意图

Fig. 1 Schematic diagram of pilot-scale treatment process of multi-stage anaerobic system

多级厌氧系统对土霉素菌渣的处理过程为：将菌渣和清水在配料预处理池中混合，配成固态含量为40 g/L的菌渣液，多级厌氧系统为序批式处理，每天泵入系统中处理菌渣液量为250 L，菌渣液在水解酸化池中反应停留时间为1 d，然后泵入pH调节池中进行pH调节，控制进入1号厌氧罐的物料pH为6.9~7.2。菌渣液依次经过1~3号厌氧罐处理，总厌氧停留时间为12 d，每天开启厌氧罐的回流泵循环搅拌1 h。3号厌氧罐出料进入污泥沉淀池后，上清沼液排出，底部沉淀的厌氧污泥泵入污泥浓缩池进一步依靠重力沉降浓缩，定期将污泥浓缩池中上清排出，底部浓缩沼泥最后经叠螺机统一进行固液分离，获得固体厌氧沼泥。多级厌氧运行过程中1~3号厌氧罐均会产生沼气，通过设置排气管，将3个罐产生的沼气统一收集，因产量有限暂时无法利用，故收集后点燃处理。运行过程中检测pH、化学需氧量(COD)及抗生素残留含量变化<sup>[15]</sup>。

### 1.3 多级厌氧系统运行参数检测

#### 1.3.1 pH及COD检测

pH检测采用酸度计电极法<sup>[16]</sup>测定，COD检测采用快速消解分光光度法：将样品稀释至COD含量

500 mL/L以内，吸取稀释液2.5 mL，加入重铬酸钾标准溶液0.7 mL，摇匀，再加入浓硫酸4.8 mL，摇匀，165℃消解10 min。降温2 min后加入蒸馏水2.5 mL，混匀静置冷却至室温，分光光度计波长600 nm下检测。与标准曲线进行比较计算得出COD含量<sup>[17]</sup>。

#### 1.3.2 样品中土霉素含量检测

样品前处理：采用流动相配比溶液对土霉素菌渣进行提取，样品与提取溶液的体积比为1:500，超声30 min，220 r/min摇床1 h，超声30 min，滤液过滤并洗涤滤饼，合并滤液。液相条件：液相仪器-Agient 1200型高效液相色谱仪，配紫外检测器；色谱柱为ZORBAX Eclipse XDB-C<sub>18</sub>；柱温35℃；流动相为磷酸二氢钾：乙腈=80:20；流速为1 mL/min；时间为15 min；波长为355 nm<sup>[18]</sup>。检测方法定量限0.1 mg/L，检测限0.01 mg/L。

### 1.4 土霉素菌渣的多级厌氧产物(沼泥)对环境的影响效果考察

#### 1.4.1 沼泥对紫花苜蓿的影响

(1)紫花苜蓿发芽指数的测定 用玻璃平板为载体，铺上一层吸水纸，滴加蒸馏水浸湿吸水纸，在纸上摆放20粒苜蓿种子，间隔分明，最后加入10滴

沼泥浸提液，用蒸馏水做对照，每组处理做3个平行，生化恒温箱中25℃培养，48 h后测种子发芽率和根长，并计算GI。

$$GI(\%) = \frac{\text{浸提液的种子发芽率} \times \text{种子根长}}{\text{蒸馏水的种子发芽率} \times \text{种子根长}} \times 100\%$$

(2)紫花苜蓿株高的测定 试验植物选取紫花苜蓿，培养基质选取沙化土壤，采用高15 cm，底面半径6 cm的圆柱形花盆，底部5 cm用纯沙土铺垫，上层10 cm采取沼泥和沙土的混合土样，以沼泥施加量为变量设置四个处理，分别为沼泥施加量：0 t/ha(以下简称空白组)、沼泥施加量：10 t/ha(以下简称低施加量组)、沼泥施加量：20 t/ha(以下简称中施加量组)、沼泥施加量：30 t/ha(以下简称高施加量组)。每组处理做3个平行，每个平行种植生长状况相近的10株紫花苜蓿苗，白天室温控制在20℃~26℃，晚上室温停止控温，随环境变化，每日早晚八点各浇水一次，每个处理温度控制和浇水一致且试验全程不添加其他肥料和营养物质。每6 d记录各组紫花苜蓿株高变化。

#### 1.4.2 沼泥对土壤的影响

(1)土壤样品取样及前处理 土壤取样：五点法取样，每个花盆平面选取随机不相近的五点，每个点面积1 cm<sup>2</sup>，铲去每个选中点的上方2 cm土样，再用小铲挖出1 cm<sup>3</sup>土样，将每个花盆挖出的五个土样混合均匀。样品前处理：将采回的土样，放在塑料布上，摊成薄薄的一层，置于室内通风阴干。在土样半干时，须将大土块擀碎，完全干后，再进行小心研磨，防止结块。

(2)土壤养分含量测定 对初始沙土、沼泥及沙土-沼泥混合土样进行土壤养分检测。土壤有机质采用重铬酸钾容量法—外加热法测定，全氮采用凯氏定氮法测定，全磷指标采用碱熔法测定，全钾指标采用氢氟酸消解法测定<sup>[16]</sup>。

(3)土壤中抗性基因测定 在PCR反应体系中，加入SYBR荧光染料，SYBR荧光染料特异性地掺入DNA双链后，发射荧光信号。提取土壤样品基因组DNA后进行qPCR，反应条件为：95℃预变性5 min

后，95℃变性15 s，退火30 s，72℃延伸30 s，共35个循环，最后72℃延伸7 min。检测项为16S、整合子*intI1*及抗性基因*tetC*、*tetM*、*tetQ*和*tetW*。

#### 1.5 数据处理与分析

数据处理采用Microsoft Excel 2016和SPSS 26统计软件计算，图形处理采用Microsoft Excel 2016完成。

## 2 结果与分析

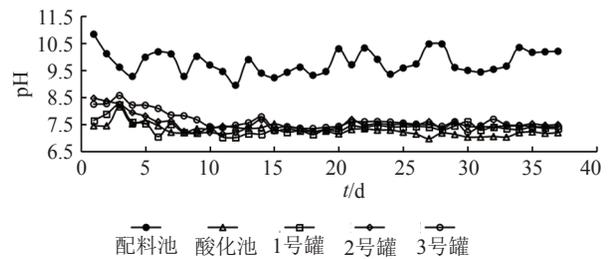


图2 多级厌氧设备各级的pH变化  
Fig. 2 pH changes at all levels of multi-stage anaerobic equipment

### 2.1 多级厌氧系统的运行参数变化

#### 2.1.1 pH变化

多级厌氧设备运行时pH变化情况如图2所示。数据中整体pH呈现配料池>3号罐>2号罐>1号罐>酸化池的规律，其中在热碱裂解土霉素菌渣的配料池中会加入较大的氢氧化钠，导致pH上升，而进入酸化池后，经过1 d的停留时间，pH出现较大幅度的降低，其原因是在此阶段进行水解酸化反应，随后为达到主体罐的最适pH，在泵入主体罐前进行pH调节，导致后续主体罐的pH上升。其中1号罐受到酸化池和人工调节的影响最大，pH波动也较为明显。而2号罐和3号罐在经过1号罐的缓冲调节之后，受到的影响已经大大下降，逐渐趋于稳定。

#### 2.1.2 COD变化

多级厌氧设备运行时COD变化情况如图3所示，

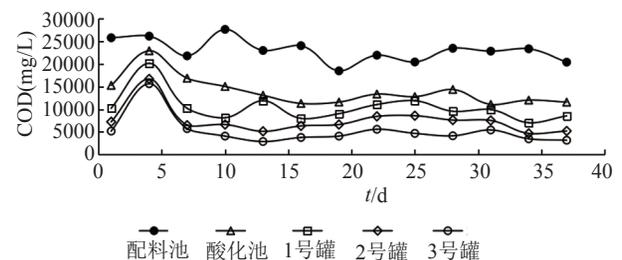


图3 多级厌氧设备各级的COD变化  
Fig. 3 COD changes at all levels of multi-stage anaerobic equipment

数据显示土霉素菌渣经过多级处理后，COD含量逐级降低。其中经过酸化池的处理COD降解效率最强，最大时能达到55.92%的降解幅度，最后经过3号罐反应后整体能达到最大为87.58%的COD降解幅度。表明多级厌氧系统能够较好地实现土霉素菌渣的减量化处理。

通过对比pH在多级厌氧系统各个阶段和各级设备的变化以及COD各个阶段和各级设备的变化中发现，酸化池在试验前期对COD的降解效率并不高这与前期酸化池pH波动较大对应，而2号罐和3号罐的COD降解效率在整个试验阶段都较为稳定，对应了这二者较为稳定的pH变化。这表明pH对多级厌氧系统具有重要指导意义，维持pH的稳定能较好地促进多级厌氧系统对土霉素菌渣的减量化处理。

### 2.1.3 土霉素含量变化

多级厌氧系统以12 d为一个周期，在经过三个周期的运行后pH和COD变化都基本稳定。稳定后在3号罐出料口取样检测土霉素含量，检测结果如图4~5所示，与初始的土霉素菌渣进行比较。初始时土霉

素含量为17.95 mg/L，而经过多级厌氧处理后，已检测不到土霉素的存在。检测方法定性限0.01 mg/L，据此得知多级厌氧系统对土霉素菌渣中土霉素残留降解率达到99.44%以上，显著地表明多级厌氧系统有利于土霉素菌渣的无害化处理。叶东旭<sup>[19]</sup>研究结果表明，静态厌氧消化运行15 d后，有23.92%的土霉素通过水解途径而降解，通过生物降解途径降解的土霉素达到37.82%，总体降解率为61.74%。通过半连续流单相中温厌氧反应器对土霉素总体降解率最高可达到87.04%。对比表明多级厌氧系统相比较传统的厌氧消化处理，对土霉素降解效率更高。

土霉素菌渣经过加水稀释后在配料池中含量为4.1 mg/L，经过酸化池水解酸化后略有降低，限制于停留时间过低，土霉素降解量不高，进入主罐后有显著的下落趋势，其中1号罐降解效率达到了50.98%，效果最强，这也验证了多级厌氧第一段水解酸化效果能达到最大化，从而促进对土霉素的降解和无害化处理。

### 2.2 土霉素菌渣的多级厌氧产物对环境的影响

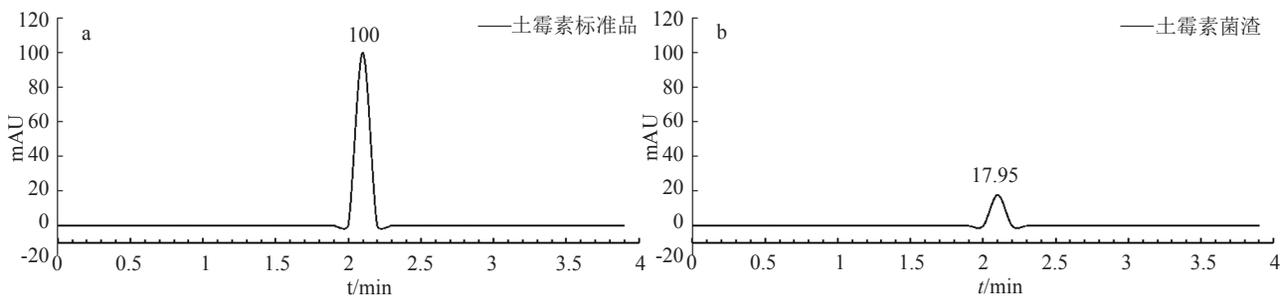


图4 土霉素液相色谱图  
Fig. 4 Liquid chromatogram of oxytetracycline

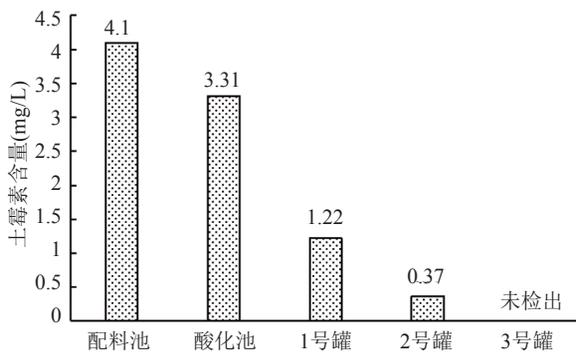


图5 多级厌氧设备各级的土霉素含量变化  
Fig. 5 Oxytetracycline content changes at all levels of multi-stage anaerobic equipment

#### 2.2.1 沼泥对紫花苜蓿的影响

紫花苜蓿发芽指数试验结果如图6所示，图中数据显示施加沼泥后的土壤混合物并不会对苜蓿种子造成毒害作用，并且存在一定程度的促进萌发效果。

紫花苜蓿生长株高随不同处理的结果如图7所示，图中数据显示施加沼泥后紫花苜蓿株高有显著的提升，这也反映出在生长阶段土霉素菌渣经过多级厌氧系统处理后的沼泥并不会抑制紫花苜蓿的生长。反而由于富含有机质和全氮，促进了苜蓿的生长。结果反应多级厌氧系统有利于土霉素菌渣的无

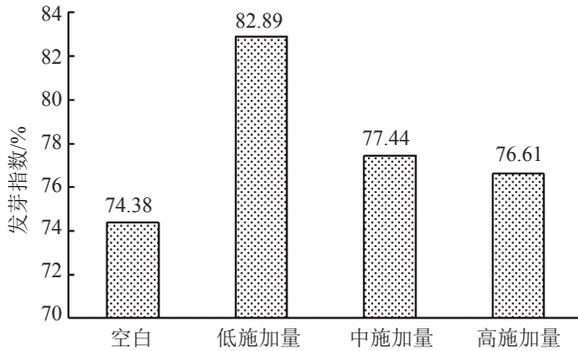


图6 不同沼泥-沙土混合物浸提液下发芽指数试验

Fig. 6 Germination index test under different sludge-sand soil mixture extractions

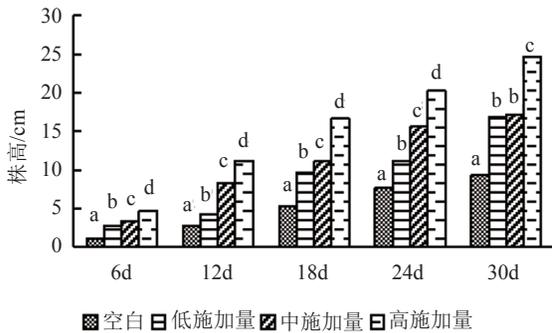


图7 不同沼泥施加量下紫花苜蓿株高

Fig. 7 Alfalfa plant height under different sludge application rates

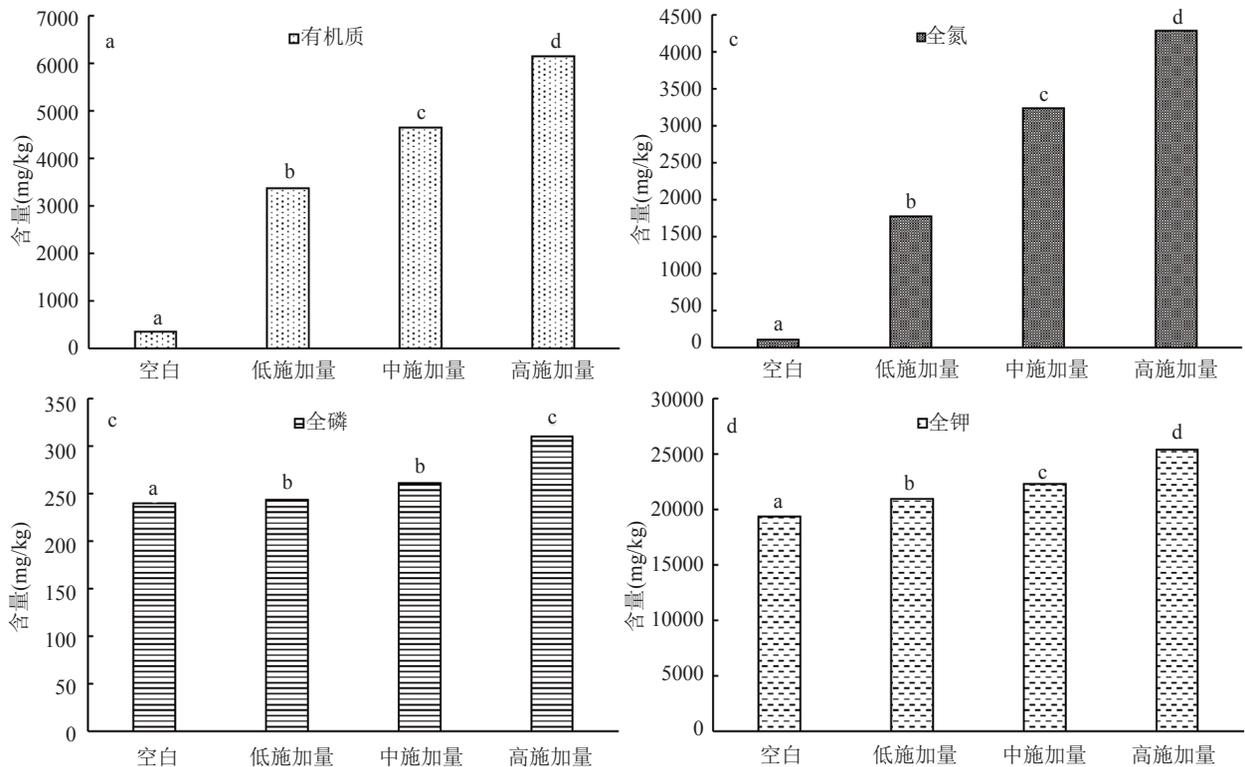


图8 不同沼泥施加量下沙化土壤养分

Fig. 8 Desertified soil nutrients under different sludge application rates

害化处理，并具有改造为植物有机肥的潜力。

### 2.2.2 沼泥对土壤养分含量的影响

沙化土壤养分在施入沼泥后的变化情况如图8所示，数据显示各项指标均有提升，且提升幅度随沼泥施加量的增加而增加，其中有机质和全氮含量受到沼泥的影响最显著，提升效果十分明显，沼泥高施加量组有机质提升达到了1645.74%，全氮提升达到了3654.39%。全磷和全钾提升幅度较小，高施加量组全磷提升幅度为29.17%，全钾为31.08%。造成这种现象的主要原因是多级厌氧系统的原料土霉素菌渣主要是微生物培养基和破碎的细胞，含有丰富的有机质和蛋白质，再经过多级厌氧降解一部分后，仍存在较小分子的有机物和蛋白质。沼泥的施入极大地改良了沙化土壤的养分含量，这表明多级厌氧系统有利于土霉素菌渣的资源化处理。

### 2.2.3 沼泥对土壤土霉素抗性基因含量的影响

在试验前0 d和经过30 d的花盆小试后取部分土样，分析各组间土样中土霉素抗性基因的差异，数据结果如图9所示。*int11*、*tetC*、*tetM*、*tetQ*和*tetW* 5

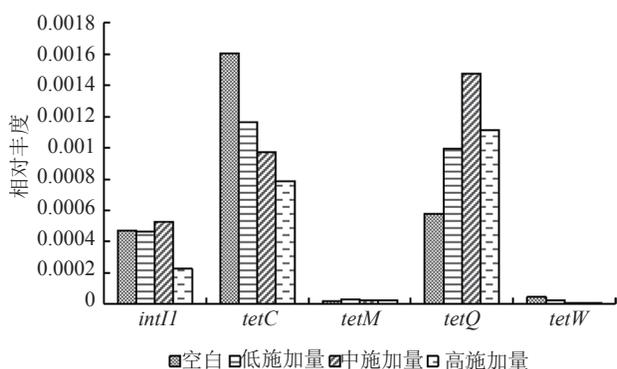


图9 不同沼泥施加量下土壤抗性基因相对丰度

Fig. 9 Relative abundance of soil ARGs under different sludge application rates

项指标代表土壤中土霉素抗性基因数量, 数据显示在空白土样中也检查出存在*intI1*、*tetC*、*tetM*、*tetQ*和*tetW*抗性基因, 但在空白土样中并未检测出土霉素的存在, 这表明天然的自然环境中也会因为各种非直接传播例如空气、水循环系统等带来土霉素抗性细菌。在经过30 d的试验后, 各类抗性基因均有所变化。其中抗性基因*intI1*在30 d后空白组与施加沼泥的试验组中的低施加量组和中施加量组无明显变化, 而高施加量组出现抗性基因*intI1*的降低, 表明施加沼泥对降低土壤中*intI1*含量有较小的促进作用, 且这个促降解作用需在施加量大的前提下才会触发; 抗性基因*tetC*在30 d后相比较于空白组, 各个试验组均有大幅度降低, 且随着沼泥施加量的增大, 抗性基因*tetC*下降越明显, 表明施加沼泥对降低土壤中*tetC*含量有显著的促进作用; 抗性基因*tetM*在30 d后空白组与施加沼泥的试验组无明显变化, 表明土壤中*tetM*含量变化与施加沼泥无显著关系; 抗性基因*tetQ*在30 d后相比较于空白组, 施加沼泥的三个处理的*tetQ*含量均有所增加, 这表明施加沼泥会增加土壤中*tetQ*含量。抗性基因*tetW*在30 d后相比较于空白组, 各个试验组均有大幅度降低, 且随着沼泥施加量的增大, 抗性基因*tetW*下降越明显, 表明施加沼泥对降低土壤中*tetW*含量有显著的促进作用。

### 3 结论

(1)多级厌氧系统能够将土霉素菌渣的COD含量降解87.58%, 其中酸化池环节COD降解效率最佳, 可达到55.92%, 实现土霉素菌渣的减量化处理。

(2)多级厌氧系统能够将土霉素菌渣的土霉素

含量从17.95 mg/L降解至检测限以下, 实现降解率99.44%以上, 实现高效土霉素菌渣的无害化处理。

(3)pH对多级厌氧系统降解土霉素具有重要的指导意义, 维持pH稳定在6.8~7.3范围之内能够达到反应系统的最大效率。

(4)土霉素菌渣经多级厌氧处理后的沼泥含有丰富的有机质和全氮, 能显著地提高土壤养分含量, 且能够促进紫花苜蓿种子的萌芽和苜蓿植株的生长, 具有作为土壤改良剂和生物有机肥料的潜力, 实现土霉素菌渣的资源化处理。

(5)沼泥施加后, 土壤中抗性基因变化趋势各异, 其中抗性基因*intI1*、*tetC*和*tetW*含量均有所下降, 抗性基因*tetM*不受沼泥施加的影响, 抗性基因*tetQ*含量出现上升趋势, 需在应用时关注*tetQ*含量变化。

### 参考文献

- [1] 姚建华, 牛德奎, 李兆君, 等. 抗生素土霉素对小麦根际土壤酶活性和微生物生物量的影响[J]. 中国农业科学, 2010, 43(4): 721-728.
- [2] 贾媛, 胡建英, 孙建仙, 等. 环境中的医药品与个人护理品[J]. 化学进展, 2009, 21(Z1): 389-399.
- [3] Cheng D M, Liu X H, Wang L, *et al.* Seasonal variation and sediment-water exchange of antibiotics in a shallower large lake in North China[J]. *Sci Total Environ*, 2014, 476-477: 266-275.
- [4] 国家危险废物名录(2021年版)[J]. 中华人民共和国国务院公报, 2021(4): 18-46.
- [5] 展海银, 周启星. 环境中四环素类抗生素污染处理技术研究进展[J]. 环境工程技术学报, 2021, 11(3): 571-581.
- [6] 陈冠益, 刘环博, 李健, 等. 抗生素菌渣处理技术研究进展[J]. 环境化学, 2021, 40(2): 459-473.
- [7] 曾巧云, 丁丹, 檀笑. 中国农业土壤中四环素类抗生素污染现状及来源研究进展[J]. 生态环境学报, 2018, 27(9): 1774-1782.
- [8] 秦松岩, 李杭, 山丹, 等. 四环素类抗生素生产废水处理现状与研究进展[J]. 天津理工大学学报, 2016, 32(2): 50-54.
- [9] 李再兴, 田宝阔, 左剑恶, 等. 抗生素菌渣处理处置技术进展[J]. 环境工程, 2012, 30(2): 72-75.
- [10] 郭梦婷. 高土霉素残留猪粪的高效好氧堆肥技术研究[D]. 浙江工商大学, 2012.
- [11] 朱培, 张建斌, 陈代杰. 抗生素菌渣处理的研究现状和建议[J]. 中国抗生素杂志, 2013, 38(9): 647-651.

- [12] 朱培, 张建斌, 李继安, 等. 多级厌氧法处理螺旋霉素工业发酵菌渣效果的研究[J]. 环境工程学报, 2014, 8(2): 703-708.
- [13] 吴小莲, 向垒, 莫测辉, 等. 长期施用粪肥蔬菜基地蔬菜中典型抗生素的污染特征[J]. 环境科学, 2013, 34(6): 2442-2447.
- [14] 杨涛, 刘鹏宇, 徐亚强, 等. 多级厌氧系统处理阿卡波糖废渣的中试[J]. 环境工程, 2021, 39(4): 123-127.
- [15] 刘鹏宇, 何志勇, 陈佳容, 等. 四级串联厌氧反应器对阿卡波糖废渣的减量处理[J]. 环境工程, 2017, 35(7): 126-130.
- [16] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法[M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000.
- [17] 国家环境保护总局. 中华人民共和国环境保护行业标准. HJ/T 399-2007水质化学需氧量的测定快速消解分光光度法[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2017: 1-7.
- [18] 钱昊, 汪电雷, 李玮. 计算机辅助设计优化盐酸四环素有关物质HPLC分析方法[J]. 中国抗生素杂志, 2021, 46(4): 279-286.
- [19] 叶东旭. 厌氧消化工艺处理含土霉素污水厂污泥研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2015.