

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.6

第40卷 第6期

目次

北京城区大气金属元素干湿沉降特征	张国忠, 潘月鹏, 田世丽, 王永宏, 熊秋林, 李广, 顾梦娜, 吕雪梅, 倪雪, 何月欣, 黄威, 刘博文, 王跃思	(2493)
北京城郊 PM _{2.5} 中金属元素的污染特征及潜在生态风险评价	徐静, 李杏茹, 张兰, 陈曦, 杨阳, 刘永桥, 赵清	(2501)
上海城区二次气溶胶的形成: 光化学氧化与液相反应对二次气溶胶形成的影响	高杰, 乔利平, 楼晟荣, 严茹莎, 周敏, 刘瑜存, 冯加良, 黄丹丹	(2510)
天津市 2017 年重污染过程二次无机化学污染特征分析	徐虹, 肖致美, 陈魁, 李立伟, 杨宁, 高璟赞, 李源, 孔君, 毕温凯, 邓小文	(2519)
典型非金属矿物制造工艺过程源成分谱特征	赵雪艳, 于高峰, 王信梧, 张向炎, 殷宝辉, 刘盈盈, 王歆华, 杨文, 赵若杰	(2526)
垃圾焚烧厂排放颗粒物组分粒径分布特征	余卓君, 吴建会, 张裕芬, 张进生, 冯银厂, 李蒲	(2533)
天津市春季样方法道路扬尘碳组分特征及来源分析	马妍, 姬亚芹, 国纪良, 赵静琦, 李越洋, 王士宝, 张蕾	(2540)
霾天气下城市气溶胶吸湿性的观测	杨素英, 田芷洁, 张铁凝, 于兴娜, 李艳伟, 安俊琳, 赵秀勇, 李岩, 王梓航, 吴尚	(2546)
宁东能源化工基地大气 PM _{2.5} 中硝基多环芳烃污染特征及呼吸暴露风险	刘攀亮, 剧媛丽, 毛蒲萱, 黄韬, 高宏, 马建民	(2556)
2014 ~ 2016 年间郑州市控制 PM ₁₀ 和 PM _{2.5} 污染的健康效益评估	韩士杰, 王佳, 燕启社, 杨留明, 赵庆炎, 王申博, 李晨, 张轶舜, 张瑞芹	(2565)
1990 ~ 2017 年中国地区气溶胶光学厚度的时空分布及其主要影响类型	刘莹, 林爱文, 覃文敏, 何利杰, 李霄	(2572)
北京春季一次霾-沙天气污染特性与成因分析	王耀庭, 李青春, 郑祚芳, 窦有俊	(2582)
江苏省内河船舶大气污染物排放清单及特征	徐文文, 殷承启, 许雪记, 张玮	(2595)
亚热带稻区大气 NO ₂ 、HNO ₃ 及硝态氮污染特征及干湿沉降	欧阳秀琴, 王波, 沈健林, 朱潇, 王杰飞, 李勇, 吴金水	(2607)
长江源区降水氢氧稳定同位素特征及水汽来源	汪少勇, 王巧丽, 吴锦奎, 何晓波, 丁永建, 王利辉, 胡召富	(2615)
基于高山湖泊沉积记录的贵州北部大气重金属污染历史重建	梁梦瑶, 刘恩峰, 张恩楼, 纪明, 李小林	(2624)
青岛 4 个海水浴场微塑料的分布特征	罗雅丹, 林千惠, 贾芳丽, 徐功娣, 李锋民	(2631)
鄱阳湖湿地候鸟栖息地微塑料污染特征	刘淑丽, 简敏菲, 周隆胤, 李文华, 吴希恩, 饶丹	(2639)
三峡库区消落带土壤溶解性有机质溯源: 基于氮/碳比值的线性双端元源负荷分析	江韬, Joeri Kaal, 梁俭, 刘江, 张耀玲, 王定勇, 魏世强, 赵铮	(2647)
水生生物光合作用对雪玉洞岩溶水体中 CDOM 的影响	范佳鑫, 蒋勇军, 贺秋芳, 王家楠, 何瑞亮, 张彩云, 马丽娜, 汪啟容	(2657)
水化学和环境同位素对济南东源饮用水源地地下水演化过程的指示	张雅, 苏春利, 马燕华, 刘伟江	(2667)
崇左响水地区地下水水质分析及健康风险评价	周巾枚, 蒋忠诚, 徐光黎, 覃小群, 黄奇波, 张连凯	(2675)
云南荞麦地流域地下水水化学特征及物质来源分析	张勇, 郭纯青, 朱彦光, 于爽	(2686)
鄱阳湖流域多尺度 C、N 输送通量及其水质参数变化特征	陆瑶, 高扬, 贾珺杰, 宋贤威, 陈世博, 马明真, 郝卓	(2696)
合流制面源污染传输过程与污染源解析	房金秀, 谢文霞, 朱玉玺, 沈雷, 马玉坤, 李佳, 姜智绘, 李叙勇, 赵洪涛	(2705)
强化浅基质层干植草沟对道路径流的脱氮效果	段进凯, 李田, 张佳炜	(2715)
水源水库暴雨径流过程水体锰的迁移及其影响	邓立凡, 黄廷林, 李楠, 李凯, 吕晓龙, 毛雪静	(2722)
巢湖十五里河沉积物磷吸收潜力及对外源碳的响应	李如忠, 鲍琴, 张瑞钢, 陈慧	(2730)
金盆水库沉积物磷的来源及分布特征	毛雪静, 黄廷林, 李楠, 徐金兰, 苏露, 吕晓龙, 邓立凡	(2738)
水库水体热分层的水质及细菌群落分布特征	王禹冰, 王晓燕, 庞树江, 杨晓明, 刘洋	(2745)
不同水温分层水库沉积物间隙水营养盐垂向分布与细菌群落结构的关系	王慎, 张思思, 许尤, 官卓宇, 杨正健, 刘德富, 马骏	(2753)
表面流人工湿地长期运行后的底泥营养盐累积特征与释放规律	朱伊梦, 姜翠玲, 朱立琴, 杜观超, 高旭, 陈红卫, 李峰东, 张海阔, 张雪, 秦文凯, 李一平	(2764)
针铁矿改性生物炭对砷吸附性能	朱司航, 赵晶晶, 尹英杰, 商建英, 陈冲, 瞿婷	(2773)
改性稻壳生物炭对水溶液中甲基橙的吸附效果与机制	史月月, 单锐, 袁浩然	(2783)
厌氧膜生物反应器处理含盐废水运行效能及膜污染特性	闫欢沙, 许振钰, 金春姬, 邵梦雨, 郭亮, 赵阳国	(2793)
污水处理厂出水有机磷污染特征及强化去除	王小东, 王子文, 陈明飞, 王燕, 王硕, 李激	(2800)
碱度对沸石序批式反应器亚硝化的影响	王瑞鑫, 陈婧, 汪晓军, 胡浩林, Karasuta Chayangkun	(2807)
活性污泥物理结构对呼吸过程的影响	郭耀, 李志华, 杨成建, 王慧娟, 李亚明, 姜阳	(2813)
好氧颗粒污泥处理畜禽养殖沼液污染物的特性	廖杰, 叶嘉琦, 曾志超, 刘琳, 徐开钦, 刘超翔	(2821)
快速城市化区河流温室内空气排放的时空特征及驱动因素	刘婷婷, 王晓峰, 袁兴中, 龚小杰, 侯春丽	(2827)
生物炭对潜流人工湿地污染物去除及 NO ₃ 排放影响	邓朝仁, 梁银坤, 黄磊, 方丹丹, 陈玉成, 杜刚	(2840)
曾用抗生素磺胺二甲嘧啶对稻田 N ₂ O 排放的影响及其微生物机制	吴杰, 李志琳, 徐佳迎, 王珏, 蒋静艳	(2847)
不同施氮水平对紫花苜蓿草地土壤呼吸和土壤生化性质的影响	胡伟, 张亚红, 李鹏, 张鹏, 李满友, 尤璟涛, 田水泉	(2858)
典型城市化区域土壤重金属污染的空间特征与风险评价	何博, 赵慧, 王铁宇, 孟晶, 肖荣波, 刘胜然, 周云桥, 史斌	(2869)
西南高锡地质背景区农田土壤与农作物的重金属富集特征	刘意章, 肖唐付, 熊燕, 宁增平, 双燕, 李航, 马良, 陈海燕	(2877)
基于 GIS 和受体模型的枸杞地土壤重金属空间分布特征及来源解析	白一茹, 张兴, 赵云鹏, 王幼奇, 钟艳霞	(2885)
喀斯特地区小尺度农业土壤砷的空间分布及污染评价	汪花, 刘秀明, 刘方, 唐启琳, 王世杰	(2895)
黄土高原不同植被带人工刺槐林土壤团聚体稳定性及其化学计量特征	瞿晴, 徐红伟, 吴旋, 孟敏, 王国梁, 薛蓑	(2904)
秸秆还田配施氮肥对喀斯特农田微生物群落及有机碳矿化的影响	徐学池, 苏以荣, 王桂红, 刘坤平, 胡亚军, 陈香碧, 郑小东, 何寻阳	(2912)
生物炭施用及老化对紫色土中抗生素吸附特征的影响	阴文敏, 关卓, 刘琛, 何杨, 杨飞, 唐翔宇	(2920)
稳定性同位素 DNA-SIP 示踪中性紫色土的氨氧化过程	刘天琳, 王智慧, 闫小娟, 赵永鹏, 贾仲君, 蒋先军	(2930)
纳米银和银离子对土壤中硝化微生物及其氨氧化速率的影响	伍玲丽, 张旭, 舒慧慧, 张丽, 司友斌	(2939)
农田沟道土壤中锰氨氧化 (Mn-ANAMMOX) 过程的探究	陈湜, 李正魁, 覃云斌, 丁帮环, 陈志浩	(2948)
污泥四环素含量对蚯蚓堆肥中氨氧化菌群的影响	吴颖, 黄魁, 夏慧, 陈景阳	(2954)
《环境科学》征订启事 (2929)	《环境科学》征稿简则 (2947)	信息 (2646, 2656, 2857)

好氧颗粒污泥处理畜禽养殖沼液污染物的特性

廖杰¹, 叶嘉琦¹, 曾志超¹, 刘琳^{1,2*}, 徐开钦³, 刘超翔²

(1. 厦门理工学院环境科学与工程学院, 环境生物技术福建省高校重点实验室, 厦门 361024; 2. 中国科学院城市环境研究所, 中国科学院城市污染物转化重点实验室, 厦门 361021; 3. 日本国立环境研究所, 筑波 305-8506)

摘要: 采用序批式反应器, 研究了好氧颗粒污泥处理畜禽养殖沼液中传统和新兴污染物的去除特性, 以及系统的微生物群落结构演变情况。结果表明, 畜禽沼液所含高浓度污染物不会对好氧颗粒污泥结构产生显著毒性胁迫, 好氧颗粒污泥系统可实现对沼液所含有机物和氨氮的稳定去除。系统出水平均化学需氧量和氨氮浓度分别为 $(267 \pm 81) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $(62 \pm 12) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 去除效率分别为 $73\% \pm 8\%$ 和 $91\% \pm 2\%$ 。同时, 也可实现对沼液所含四环素类和磺胺类抗生素的有效去除, 去除效率分别为 $65\% \pm 16\%$ 和 $98\% \pm 2\%$ 。但对磷素的去除效率较低, 约为 $16\% \pm 2\%$ 。好氧颗粒污泥系统处理沼液过程中微生物群落结构稳定, 但其中功能微生物菌群丰度会受到水质的作用影响, 从毛单胞菌科 Comamonadaceae (相对丰度约为 16.66%) 为污泥中的主导微生物群落。

关键词: 活性污泥; 养殖污水; 微生物群落结构; 抗生素; 营养盐

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)06-2821-06 DOI: 10.13227/j.hjxx.201811099

Performance of an Aerobic Granular Reactor Treating Biogas Slurry from Pig Farm

LIAO Jie¹, YE Jia-qi¹, ZENG Zhi-chao¹, LIU Lin^{1,2*}, XU Kai-qin³, LIU Chao-xiang²

(1. Key Laboratory of Environmental Biotechnology, Fujian Province University, College of Environmental Science and Engineering, Xiamen University of Technology, Xiamen 361024, China; 2. Key Laboratory of Urban Pollutant Conversion, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 3. National Institute of Environment Studies, Tsukuba 305-8506, Japan)

Abstract: This research investigated the performance of an aerobic granular reactor treating biogas slurry from pig farm. Results indicated that the granular structure of aerobic sludge was not affected by the high pollution concentrations in the biogas slurry. Although a low removal rate of phosphate was found in this study (about $16\% \pm 2\%$), organic matter and ammonia nitrogen showed stable removal and transformation in the granular system, and the effluent concentrations of those components were $(267 \pm 81) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ and $(62 \pm 12) \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, respectively. In addition, the removal rate of sulfamethazine and tetracycline was $98\% \pm 2\%$ and $65\% \pm 16\%$, respectively. During the process biogas slurry treatment, bacterial communities in the aerobic granular reactor remained stable, and Comamonadaceae was the dominant bacteria (relative abundance of approximately 16.66%).

Key words: activated sludge; livestock wastewater; microbial community; antibiotics; nutrients

近年来, 畜禽养殖业快速发展导致其污水(主要为沼液形式)对环境的压力越发显著^[1]。同时, 抗生素在畜禽养殖废水中高残留现象也逐渐被社会所关注^[2, 3]。考虑到经济成本因素, 以活性污泥法为代表的生物处理技术被广泛用于沼液的净化处理, 但沼液所含高浓度污染物和抗生素残留也对传统生物处理法提出了严峻的考验。针对此问题, 作为未来活性污泥法发展趋势的好氧颗粒污泥技术被认为可有效解决生物法现存瓶颈难点^[4~6]。Figuerola 等^[7]的研究指出好氧颗粒污泥在处理生猪养殖悬浮液过程中, 在有机物(以 COD 计)和氮素(以 N 计)负荷率分别为 $4.4 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $0.83 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 的情况下, 有机物和氮素去除率分别可达 87% 和 70%。

然而, 基于好氧颗粒污泥技术的沼液废水处理过程特性及微生物群落结构还有待深入解析, 且其

对实际沼液中新兴污染物(例如抗生素)的去除特性也较少报道。因此, 本实验利用好氧颗粒污泥对实际养殖沼液进行了净化考察, 研究有机物、营养盐和抗生素的去除过程特性及系统稳态阶段微生物群落结构情况, 以期为好氧颗粒污泥技术在畜禽养殖污染治理过程中的应用提供参考。

1 材料与方法

1.1 实验装置及污水水质

本实验采用序批式反应器, 反应器体积为 10

收稿日期: 2018-11-15; 修订日期: 2019-01-04

基金项目: 国家自然科学基金项目(51878582); 福建省引导性项目(2018Y0083); 环境生物技术福建省高校重点实验室开放研究基金项目(EBL2018008); 福建省中青年骨干教师教育科研项目(JAT170412)

作者简介: 廖杰(1983~), 女, 硕士, 实验师, 主要研究方向为水环境治理和生态修复, E-mail: liaoj@xmut.edu.cn

* 通信作者, E-mail: lliu@iue.ac.cn

L, 工作容积 8 L, 污水体积交换率设定为 75%。采用底部鼓曝气方式, 通过转子流量计控制其水平保持在 $0.4 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, pH 通过实时在线控制设备维持在 7~8, 温度保持室温水平 $22 \sim 27^\circ\text{C}$ 。反应器每天运行两个周期, 每周期运行时间为 8 h, 每个周期的运行情况如下: 进水 20 min, 曝气 7.5 h, 沉降 5 min, 排水 5 min。实验所用接种颗粒污泥取自本实验前期所获稳态颗粒污泥系统, 颗粒粒径 $0.5 \sim 1.6 \text{ mm}$, 系统污泥浓度保持在 $4\,400 \sim 4\,800 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。污泥停留时间为 12 d。

本实验所用养殖沼液取自于厦门市某生猪养殖场沼气池出水, 沼液中典型污染物含量如下: 化学需氧量 (chemical oxygen demand, COD) $820 \sim 1150 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、氨氮 (ammonia nitrogen, AN) $670 \sim 780 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和总磷 (total phosphorus, TP) $67 \sim 82 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

1.2 分析方法

COD、AN 和 TP 等常规分析指标的测定方法均采用国家水质分析标准^[8]。四环素类抗生素 (tetracyclines, TCs) 的土霉素 (oxytetracycline, OTC) 和金霉素 (chlortetracycline, CTC), 磺胺类抗生素 (sulfonamides, SAs) 的磺胺甲基嘧啶 (sulfamerazine, SMZ) 的分析测试过程如下: 采用固相萃取装置进行富集, 固相萃取小柱 (Oasis HLB, Waters) 用丙酮 (6 mL) 进行活化处理; 之后将水样以 $5 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ 左右的速度过固相萃取小柱; 水样富集后用 0.5% 甲酸水溶液 (10 mL) 冲洗柱体, 真空干燥 30 min 之后, 采用甲醇 (10 mL) 将目标化合物洗脱到氮吹管中, 用氮气将甲醇吹干; 最后用 20% 的甲醇水溶液溶解 (1 mL), 甲醇水溶液用 $0.45 \mu\text{m}$ 有机滤膜过滤, 并于 4°C 低温保存; 富集抗生素溶液利用高效液相色谱-串联四级杆质谱仪 (HPLC-MS/MS, ABI 3200Q TRAP) 进行分析测定^[9]。

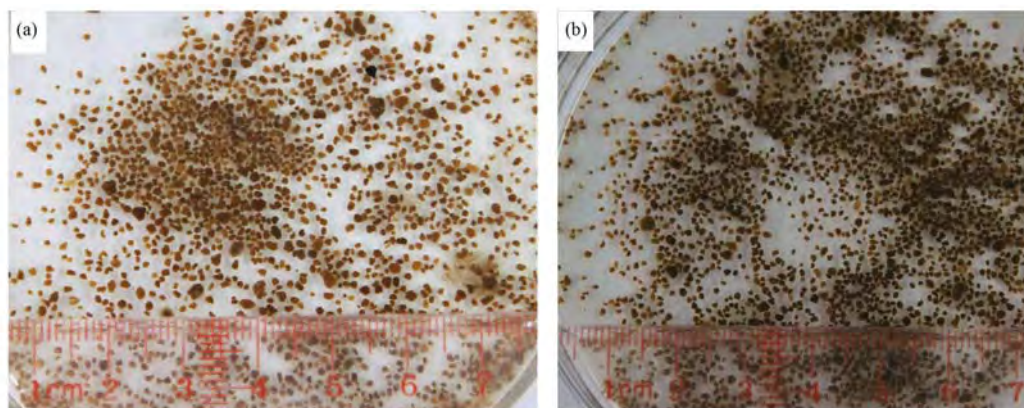
好氧颗粒污泥系统运行稳定后, 采用 OMEGA 生物试剂盒提取微生物 DNA 样品, 经纯度与浓度检测合格后送检进行 PCR 扩增与文库构建, 并利用 Illumina HiSeq 2000 平台进行生物测序, 测序数据经拼接过滤后, 利用 Uparse 软件对所有样品的全部有效 Tags 进行聚类, 采用 GreenGene 数据库进行物种注释分析。

2 结果与讨论

2.1 好氧颗粒污泥结构特性

本实验好氧颗粒污泥的初期形态 (1 d) 和后期形态 (72 d) 如图 1 所示, 表明好氧颗粒污泥在处理养殖沼液过程中可以保持良好的颗粒化形态, 未发生显著性的颗粒破碎或丝状菌膨胀现象。Liu 等^[5] 和 Morales 等^[6] 的实验结果显示, 沼液处理过程中颗粒体颜色发生显著变化。实验过程中接种颗粒体的颜色由棕黄色转变为黑褐色, 表明好氧颗粒污泥在处理沼液过程中会对水体中色素成分进行吸附固定, 微生物群落结构可能发生了显著的转化。

污泥体积指数可反映活性污泥的松散程度和凝聚性能, 进而可表征污泥沉降性能的优劣。相比絮状活性污泥, 好氧颗粒污泥的较快沉降速率为其结构特征之一^[10], 本研究采用 5 min 污泥体积指数 (5 min sludge volume index of granular sludge, SVI_5) 来表征好氧颗粒污泥的沉降性能。如图 2 所示, 好氧颗粒污泥的 SVI_5 在实验初期第 1 d 时为 $(41 \pm 1) \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$, 而在实验后期第 74 d 时变为 $(32 \pm 0.5) \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$, 结果表明好氧颗粒污泥处理沼液过程中仍可保持其自身优势特性, 颗粒体仍可保持较好的紧密度。沼液所含高浓度基质不仅没有破坏颗粒体结构, 反而强化了颗粒污泥的结构强度。这是由于养殖废水中较高钙镁离子含量, 钙离子通过结晶作用可有助于高强度好氧颗粒污泥的形成, 这与刘丽



(a) 初期形态 (1 d); (b) 后期形态 (72 d)

图 1 好氧颗粒污泥处理养殖沼液过程结构形态变化

Fig. 1 Changes in the structure and morphology of aerobic granular sludge during the process of treating the biogas slurry

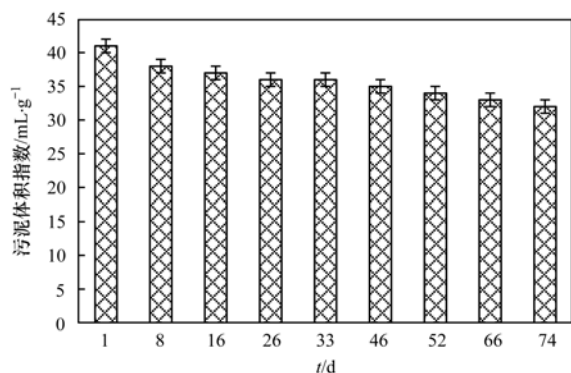
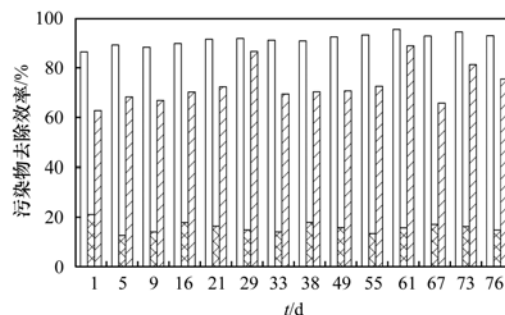
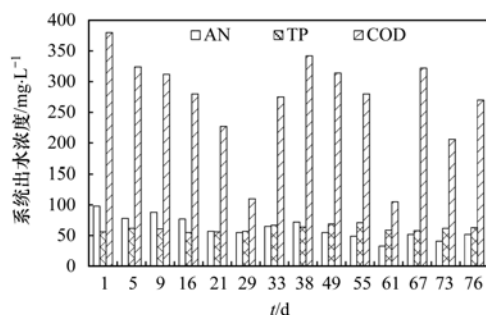
图2 好氧颗粒污泥 SVI₅ 变化情况Fig. 2 Changes in the SVI₅ of the aerobic granular sludge

图3 好氧颗粒污泥处理沼液过程中有机物和氮磷的去除效果

Fig. 3 Removal efficiency of organics and nitrogen and phosphorus in the biogas slurry treatment with aerobic granular sludge

好氧颗粒污泥系统中 COD 与 AN 的去除主要依靠生物的降解和转化^[12]。两者在系统中较为稳定的去除效率表明,颗粒化结构可有效抵抗污染物高浓度水平对微生物活性的冲击,好氧颗粒污泥可在有机物和氮素去除中发挥较优与稳定的作用。磷素在生物处理系统中通常依靠化学吸附和生物吸收进行去除^[13],由于系统 pH 值控制在 7~8 之间,好氧颗粒污泥对磷素的化学吸附作用在本实验中可忽略不计,进而推测在磷素去除过程中仍以生物吸收利用为主,这与王亮等^[14]和何理等^[15]的研究结果相一致。因此,畜禽养殖沼液的磷素高污染特征,净化达标仅仅通过好氧颗粒污泥单一净化系统难以实现。考虑到生物磷素吸收利用原理,沼液中较低的碳磷比例将成为制约该技术有效处理沼液所含磷素的主要因素。

2.3 新兴污染物的净化特性

本实验在考察传统污染物的同时,选取了畜禽养殖沼液中较为典型的四环素类(土霉素 OTC 和金霉素 CTC)和磺胺类(磺胺甲基嘧啶 SMZ)抗生素为对象,考察其在颗粒化系统中的去除效率,实验结果见图 4。

如图 4 所示,OTC 和 CTC 的检出浓度较为稳定,分别约为 $1.1 \sim 3.4 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $0.5 \sim 6.2 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,而 SMZ 在沼液中含量水平波动较大,约为

等^[11]的研究结论相一致。

2.2 传统污染物的净化特性

养殖沼液通过好氧颗粒污泥系统处理后,系统出水中传统污染物(COD、AN 和 TP)的去除情况如图 3 所示。好氧颗粒污泥系统出水中 COD、AN 和 TP 的含量平均水平分别为 (267 ± 81) 、 (62 ± 12) 和 $(61 \pm 5) \text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$,去除效率分别为 $73\% \pm 8\%$ 、 $91\% \pm 2\%$ 和 $16\% \pm 2\%$,结果表明 COD 和 AN 的去除效果符合中国《畜禽养殖业污染物排放标准》(GB 18596-2001)的规定,并略优于标准中的指标要求,但 TP 去除效果无法达到相关标准。

$0.1 \sim 20.1 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$,且其检出含量相对最高。两类目标抗生素在好氧颗粒污泥系统中的去除情况差异较大,OTC 和 CTC 的平均去除效率分别为 $63\% \pm 18\%$ 和 $67\% \pm 13\%$,SMZ 的平均去除效率为 $98\% \pm 2\%$ 。此外,OTC、CTC 和 SMZ 的平均去除效率的标准差分别为 2%、18% 和 13%。

相比四环素类抗生素,好氧颗粒污泥表现出对磺胺类抗生素更好的去除效果与稳定性,两类抗生素的性质差异应当是导致该现象的主要原因。有研究指出四环素类抗生素主要通过范德华力、色散力、诱导力和氢键等分子间作用力与颗粒物表面吸附位点结合,进而实现水相中四环素类抗生素的去除^[16,17],本研究中四环素类抗生素去除随实验进程的逐渐降低进一步证实此结论,即沼液中四环素类抗生素在好氧颗粒污泥中存在饱和吸附的可能性。磺胺类抗生素的去除研究表明,其在生物系统中的去除主要依靠微生物降解作用,在氮素营养盐充足条件下脱氮微生物可实现对磺胺类抗生素的高效降解^[18,19]。由此可见,好氧颗粒污泥对于抗生素的生物降解能力要强于其的吸附固定能力。

2.4 微生物群落结构演变特征

好氧颗粒污泥处理畜禽沼液过程中,选取相对丰度大于 1% 的菌群为对象,分析微生物群落科水平演变情况,研究结果见图 5。

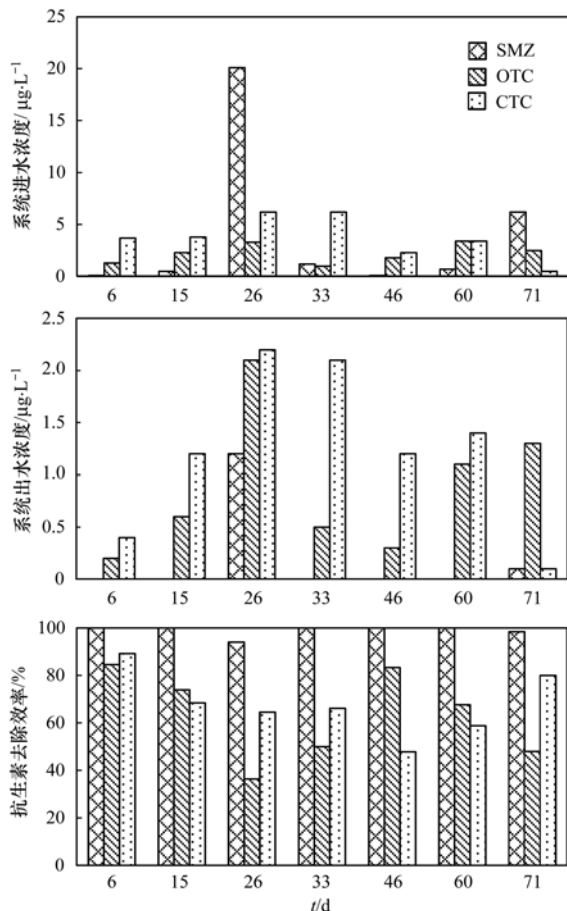


图4 典型抗生素在好氧颗粒污泥系统中的去除情况

Fig. 4 Removal of typical antibiotic ingredients in the aerobic granular sludge system

如图5所示,好氧颗粒污泥系统初期的主导菌群为 α -变形菌门的醋杆菌科(Acetobacteraceae)、鞘脂单胞菌科(Sphingomonadaceae)和红螺旋菌科(Rhodospirillaceae), β -变形菌门的红环菌科(Rhodobacteraceae)、亚硝化单胞菌科(Nitrosomonadaceae)和从毛单胞菌科(Comamonadaceae), γ -变形菌门的假单胞菌科(Pseudomonadaceae)和黄单胞菌科

(Xanthomonadaceae),硝化螺旋菌门硝化螺旋菌科(Nitrospiraceae).该系统在处理畜禽沼液后关键菌群发生了部分转变、Acetobacteraceae、Rhodospirillaceae、Rhodobacteraceae和Nitrospiraceae的相对丰度显著降低,而Nitrosomonadaceae、 β -变形菌门伯克氏菌科(Burkholderiaceae)和 γ -变形菌门肠杆菌科(Enterobacteriaceae)具有显著地升高,但好氧颗粒污泥中首要关键菌属并未发生显著演变,Comamonadaceae在系统运行期间都表现出最高相对丰度,约为14.51%(第1d)和16.66%(第75d).Comamonadaceae属于变形菌门,是水体环境中常见脱氮除磷功能微生物群落^[20, 21],尤其是在反硝化过程中发挥着重要的作用^[22],实验结果表明尽管硝化菌群会发生一定的变化,但是Comamonadaceae为好氧颗粒污泥体系中的最主要的反硝化菌群.而实验所用废水中较高氮素存在使Comamonadaceae丰度水平得以保持.在上述微生物中Nitrospiraceae和Nitrosomonadaceae也被认定为是脱氮过程的关键作用菌群,两者分别主导硝化过程和氨氧化过程^[23].Nitrospiraceae和Nitrosomonadaceae的演变表明好氧颗粒污泥系统中氮素生物转化途径发生变化,而沼液中较高氨氮水平所带来的游离氨胁迫作用应当是两者转变的主要因素.Anthonisen等^[24]的研究指出Nitrospiraceae的游离氨抑制阈值小于 $1\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,而Nitrosomonadaceae的抑制阈值大于 $8\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,即Nitrospiraceae更容易受到游离氨的毒性胁迫.而在本实验运行周期的初期与末期阶段,系统中游离氨平均含量分别约为 $47\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $4\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$.

微生物群落结构演变结果表明,好氧颗粒污泥处理沼液过程中,微生物群落结构不会发生显著的迁移变化,但其中功能微生物菌群丰度会受到水质的作用影响.然而,由于畜禽养殖污水中抗生素的

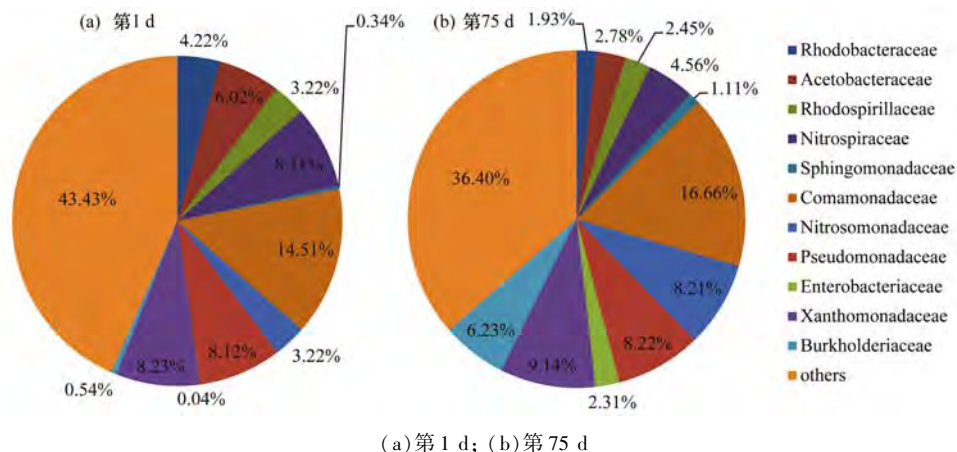


图5 好氧颗粒污泥处理沼液过程中的微生物群落演变

Fig. 5 Microbial community evolution during the aerobic sludge treatment of biogas slurry

高浓度残留, 好氧颗粒污泥系统所产生的剩余污泥中抗生素抗性基因扩增风险将会产生. Liu 等^[25]已证实, 畜禽养殖污水中抗生素的含量可达到诱导好氧颗粒污泥中抗生素抗性基因相对丰度水平升高的阈值水平. 本实验中所获得的微生物群落分析数据进一步揭示了抗生素抗性基因扩增的途径. 实验结果表明 *Sphingomonadaceae* 和 *Xanthomonadaceae* 为好氧颗粒污泥的关键群落组成, 在实验运行初期两者在好氧颗粒污泥中相对比例分别为 14.51% 和 8.23%, 而在处理畜禽养殖废水后相对丰度进一步显著增加, 在系统运行 75 d 后 *Sphingomonadaceae* 和 *Xanthomonadaceae* 在污泥中的相对比例为 16.66% 和 9.14%. 前期国内外研究已证明该两种菌群对于磺胺类和四环素类抗生素具有显著的抗性响应特征, 并为抗生素抗性基因扩散过程中的主要参加菌群^[26]. 因此, 从抗生素抗性基因角度, 在利用好氧颗粒污泥处理养殖沼液过程中剩余污泥的安全处置还需进一步深入研究.

3 结论

(1) 好氧颗粒污泥可成功应用于畜禽养殖沼液的净化处理, 在此过程中颗粒体结构可保持良好的稳定性能.

(2) 好氧颗粒污泥可在有机物降解和氮素去除转化方面发挥较优与稳定的作用效果, 但受制于沼液中低碳磷比例因素, 其对磷素去除难以达到国家相关标准.

(3) 沼液所含抗生素在好氧颗粒污泥系统中可实现显著去除, 但抗生素类型与迁移降解特性决定好氧颗粒污泥对其的去除效果.

(4) 好氧颗粒污泥中微生物群落结构对沼液响应情况显著, 不同菌群相对丰度比例会出现明显演变, 但关键菌群分类学特征保持相似性.

参考文献:

- [1] 刘林林, 黄旭雄, 危立坤, 等. 15 株微藻对猪场养殖污水中氮磷的净化及其细胞营养分析[J]. 环境科学学报, 2014, **34**(8): 1986-1994.
Liu L L, Huang X X, Wei L K, *et al.* Removal of nitrogen and phosphorus by 15 strains of microalgae and their nutritional values in piggery sewage[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014, **34**(8): 1986-1994.
- [2] 孙建平, 郑平, 胡宝兰. 多种抗生素对畜禽废水厌氧消化的联合抑制[J]. 环境科学, 2009, **30**(9): 2619-2624.
Sun J P, Zheng P, Hu B L. Combined effect of antibiotics on anaerobic digestion of piggery wastewater[J]. *Environmental Science*, 2009, **30**(9): 2619-2624.
- [3] 廖杰, 徐熙安, 刘玉洪, 等. 水生植物滤床深度处理养殖废水过程中抗生素与抗性基因的响应研究[J]. 环境科学学报, 2015, **35**(8): 2464-2470.
Liao J, Xu X A, Liu Y H, *et al.* Removal and response of antibiotics and antibiotic resistance genes during advanced treatment of livestock wastewater by aquatic plant filter bed[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35**(8): 2464-2470.
- [4] Van Loosdrecht M C M, Brdjanovic D. Anticipating the next century of wastewater treatment[J]. *Science*, 2014, **344**(6191): 1452-1453.
- [5] Liu L, You Q Y, Gibson V, *et al.* Treatment of swine wastewater in aerobic granular reactors: comparison of different seed granules as factors[J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2015, **9**(6): 1139-1148.
- [6] Morales N, Figueroa M, Fra-Vázquez A, *et al.* Operation of an aerobic granular pilot scale SBR plant to treat swine slurry[J]. *Process Biochemistry*, 2013, **48**(8): 1216-1221.
- [7] Figueroa M, Van Del Río A, Campos J L, *et al.* Treatment of high loaded swine slurry in an aerobic granular reactor[J]. *Water Science and Technology*, 2011, **63**(9): 1808-1814.
- [8] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [9] Liu L, Liu Y H, Wang Z, *et al.* Behavior of tetracycline and sulfamethazine with corresponding resistance genes from swine wastewater in pilot-scale constructed wetlands[J]. *Journal of hazardous materials*, 2014, **278**: 304-310.
- [10] Zheng Y M, Yu H Q, Sheng G P. Physical and chemical characteristics of granular activated sludge from a sequencing batch airlift reactor[J]. *Process Biochemistry*, 2005, **40**(2): 645-650.
- [11] 刘丽, 任婷婷, 徐得潜, 等. 高强度好氧颗粒污泥的培养及特性研究[J]. 中国环境科学, 2008, **28**(4): 360-364.
Liu L, Ren T T, Xu D Q, *et al.* Cultivation and characteristics of the high strength aerobic granular sludge[J]. *China Environmental Science*, 2008, **28**(4): 360-364.
- [12] Gao D W, Liu L, Liang H, *et al.* Aerobic granular sludge: characterization, mechanism of granulation and application to wastewater treatment[J]. *Critical Reviews in Biotechnology*, 2011, **31**(2): 137-152.
- [13] De-Bashan L E, Moreno M, Hernandez J P, *et al.* Removal of ammonium and phosphorus ions from synthetic wastewater by the microalgae *Chlorella vulgaris* coimmobilized in alginate beads with the microalgae growth-promoting bacterium *Azospirillum brasilense*[J]. *Water Research*, 2002, **36**(12): 2941-2948.
- [14] 王亮, 陈重军, 陈英旭, 等. 规模化猪场养殖废水 UASB-SFSBR-MAP 处理工艺中试研究[J]. 环境科学, 2013, **34**(3): 979-985.
Wang L, Chen C J, Chen Y X, *et al.* Effect of pilot UASB-SFSBR-MAP process for the large scale swine wastewater treatment[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(3): 979-985.
- [15] 何理, 高大文, 刘琳, 等. 养猪废水处理过程中体积交换率对好氧污泥颗粒化的影响[J]. 环境工程, 2015, **33**(9): 69-73.
He L, Gao D W, Liu L, *et al.* Effect of volume exchange rate in aerobic granulation of treating swine wastewater[J]. *Environmental Engineering*, 2015, **33**(9): 69-73.
- [16] Li B, Zhang T. Biodegradation and adsorption of antibiotics in the activated sludge process[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(9): 3468-3473.
- [17] Prado N, Ochoa J, Amrane A. Biodegradation and biosorption of tetracycline and tylosin antibiotics in activated sludge system[J]. *Process Biochemistry*, 2009, **44**(11): 1302-1306.
- [18] Müller E, Schüssler W, Horn H, *et al.* Aerobic biodegradation of the sulfonamide antibiotic sulfamethoxazole by activated sludge applied as co-substrate and sole carbon and nitrogen source[J].

- Chemosphere, 2013, **92**(8): 969-978.
- [19] Kassotaki E, Buttiglieri G, Ferrando-Climent L, *et al.* Enhanced sulfamethoxazole degradation through ammonia oxidizing bacteria co-metabolism and fate of transformation products [J]. Water Research, 2016, **94**: 111-119.
- [20] 方芳, 陈少华. 功能基因在反硝化菌群生态学研究中的应用 [J]. 生态学杂志, 2010, **29**(9): 1836-1845.
- Fang F, Chen S H. Application of functional genes in the study of the ecology of denitrifying bacteria: A review [J]. Chinese Journal of Ecology, 2010, **29**(9): 1836-1845.
- [21] Nguyen H T T, Le V Q, Hansen A A, *et al.* High diversity and abundance of putative polyphosphate-accumulating *Tetrasphaera*-related bacteria in activated sludge systems [J]. FEMS Microbiology Ecology, 2011, **76**(2): 256-267.
- [22] Adav S S, Lee D J, Show K Y, *et al.* Aerobic granular sludge: recent advances [J]. Biotechnology Advances, 2008, **26**(5): 411-423.
- [23] Pal L, Kraigher B, Brajer-Humar B, *et al.* Total bacterial and ammonia-oxidizer community structure in moving bed biofilm reactors treating municipal wastewater and inorganic synthetic wastewater [J]. Bioresource Technology, 2012, **110**: 135-143.
- [24] Anthonisen A C, Loehr R C, Prakasam T B, *et al.* Inhibition of nitrification by ammonia and nitrous acid [J]. Journal-Water Pollution Control Federation, 1976, **48**(5): 835-852.
- [25] Liu L, Gibson V, Huang X, *et al.* Effects of antibiotics on characteristics and microbial resistance of aerobic granules in sequencing batch reactors [J]. Desalination and Water Treatment, 2016, **57**(18): 8252-8261.
- [26] Rosenberg E, DeLong E F, Lory S, *et al.* The Prokaryotes: Gammaproteobacteria (4th ed.) [M]. Berlin: Springer, 2014.



CONTENTS

Concurrent Measurement of Wet and Bulk Deposition of Trace Metals in Urban Beijing	ZHANG Guo-zhong, PAN Yue-peng, TIAN Shi-li, <i>et al.</i> (2493)
Concentration and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} Collected in Urban and Suburban Areas of Beijing	XU Jing, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i> (2501)
Secondary Aerosol Formation in Urban Shanghai: Insights into the Roles of Photochemical Oxidation and Aqueous-Phase Reaction	GAO Jie, QIAO Li-ping, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (2510)
Secondary Inorganic Pollution Characteristics During Heavy Pollution Episodes of 2017 in Tianjin	XU Hong, XIAO Zhi-mei, CHEN Kui, <i>et al.</i> (2519)
Characterization of PM ₁₀ and PM _{2.5} Source Profiles for Emissions from Nonmetal Mineral Products Manufacturing Processes	ZHAO Xue-yan, YU Gao-feng, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (2526)
Characteristics of Component Particle Size Distributions of Particulate Matter Emitted from a Waste Incineration Plant	YU Zhuo-jun, WU Jian-hui, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (2533)
Characteristics and Source Apportionment of Carbon Components in Road Dust PM _{2.5} and PM ₁₀ During Spring in Tianjin Derived by Using the Quadrat Sampling Method	MA Yan, JI Ya-qin, GUO Ji-liang, <i>et al.</i> (2540)
Urban Aerosol Hygroscopicity During Haze Weather	YANG Su-ying, TIAN Zhi-jie, ZHANG Tie-ning, <i>et al.</i> (2546)
Atmospheric Pollution Characteristics and Inhalation Exposure Risk of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM _{2.5} at the Ningdong Energy and Chemical Industry Base, Northwest China	LIU Pan-liang, JU Yuan-li, MAO Xiao-xuan, <i>et al.</i> (2556)
Health Benefit Evaluation for PM ₁₀ and PM _{2.5} Pollution Control in Zhengzhou, China, 2014-2016	HAN Shi-jie, WANG Jia, YAN Qi-she, <i>et al.</i> (2565)
Spatial-temporal Distribution of Aerosol Optical Depth and Its Main Influence Types in China During 1990-2017	LIU Ying, LIN Ai-wen, QIN Wen-min, <i>et al.</i> (2572)
Research on the Pollution Characteristics and Causality of Haze-sand Air Pollution in Beijing in Spring	WANG Yao-ting, LI Qing-chun, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (2582)
Vessel Emission Inventories and Emission Characteristics for Inland Rivers in Jiangsu Province	XU Wen-wen, YIN Cheng-qi, XU Xue-ji, <i>et al.</i> (2595)
Atmospheric Nitrogen Dioxide, Nitric Acid, Nitrate Nitrogen Concentrations, and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China	OUYANG Xiu-qin, WANG Bo, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2607)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Moisture Sources in the Headwaters of the Yangtze River	WANG Shao-yong, WANG Qiao-li, WU Jin-kui, <i>et al.</i> (2615)
Historical Trends of Atmospheric Trace Metal Pollution in Northern Guizhou Province as Reconstructed from Alpine Lake Sediments	LIANG Meng-yao, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (2624)
Distribution Characteristics of Microplastics in Qingdao Coastal Beaches	LUO Ya-dan, LIN Qian-hui, JIA Fang-li, <i>et al.</i> (2631)
Pollution Characteristics of Microplastics in Migratory Bird Habitats Located Within Poyang Lake Wetlands	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZHOU Long-yin, <i>et al.</i> (2639)
Use of the Nitrogen/Carbon Ratio (N/C) and Two End-Member Sources Mixing Model to Identify the Origins of Dissolved Organic Matter from Soils in the Water-Level Fluctuation Zones of the Three Gorges Reservoir	JIANG Tao, JOERI Kaal, LIANG Jian, <i>et al.</i> (2647)
Effects of Photosynthesis of Submerged Aquatic Plants on CDOM in a Karst Water System: A Case Study from Xueyu Cave, Chongqing, China	FAN Jia-xin, JIANG Yong-jun, HE Qiu-fang, <i>et al.</i> (2657)
Indicators of Groundwater Evolution Processes Based on Hydrochemistry and Environmental Isotopes: A Case Study of the Dongyuan Drinking Water Source Area in Ji'nan City	ZHANG Ya, SU Chun-li, MA Yan-hua, <i>et al.</i> (2667)
Water Quality Analysis and Health Risk Assessment for Groundwater at Xiangshui, Chongzuo	ZHOU Jin-mei, JIANG Zhong-cheng, XU Guang-li, <i>et al.</i> (2675)
Chemical Characteristics of Groundwater and Material Sources Analysis in Buckwheat Field, Yunnan Province	ZHANG Yong, GUO Chun-qing, ZHU Yan-guang, <i>et al.</i> (2686)
C and N Transport Flux and Associated Changes of Water Quality Parameters from a Multiscale Subtropical Watershed in the Poyang Lake Area	LU Yao, GAO Yang, JIA Jun-jie, <i>et al.</i> (2696)
Pollutant Transport Analysis and Source Apportionment of the Entire Non-point Source Pollution Process in Combined Sewer Systems	FANG Jin-xiu, XIE Wen-xia, ZHU Yu-xi, <i>et al.</i> (2705)
Nitrogen Removal Efficiencies from Road Runoff by Dry Grass Swales with a Shallow Substrate Layer	DUAN Jin-kai, LI Tian, ZHANG Jia-wei (2715)
Migration Characteristics of Manganese During Rainfall Events and Its Impacts on Water Quality in a Drinking Water Source Reservoir	DENG Li-fan, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2722)
Potential for Phosphorus Uptake by Bed Sediments and Its Response to Carbon Additions in the Shiwuli River, Chaohu Lake Basin	LI Ru-zhong, BAO Qin, ZHANG Rui-gang, <i>et al.</i> (2730)
Sources and Distribution of Phosphorus in Sediments of the Jinpen Reservoir	MAO Xue-jing, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2738)
Water Quality Characteristics and Distribution of Bacterial Communities During Thermal Stratification in the Miyun Reservoir	WANG Yu-bing, WANG Xiao-yan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (2745)
Relationship Between the Vertical Distribution of Nutrients and Bacterial Community Structures in Sediment Interstitial Waters of Stratified Reservoirs with Different Water Temperatures	WANG Shen, ZHANG Si-si, XU You, <i>et al.</i> (2753)
Accumulation Characteristics and Release Regularity of Nutrients in Sediments of a Surface-flow Constructed Wetland After Long-term Operation	ZHU Yi-meng, JIANG Cui-ling, ZHU Li-qin, <i>et al.</i> (2764)
Application of Goethite Modified Biochar for Arsenic Removal from Aqueous Solution	ZHU Si-hang, ZHAO Jing-jing, YIN Ying-jie, <i>et al.</i> (2773)
Effects and Mechanisms of Methyl Orange Removal from Aqueous Solutions by Modified Rice Shell Biochar	SHI Yue-yue, SHAN Riu, YUAN Hao-ran (2783)
Performance and Membrane Fouling Properties in an Anaerobic Membrane Bioreactor for Salty Wastewater	YAN Huan-xi, XU Zhen-yu, JIN Chun-ji, <i>et al.</i> (2793)
Pollution Characteristics and Enhanced Removal of Organic Phosphorus in Effluent from a Wastewater Treatment Plant	WANG Xiao-dong, WANG Zi-wen, CHEN Ming-fei, <i>et al.</i> (2800)
Effects of Alkalinity on Partial Nitrification in a Zeolite Sequencing Batch Reactor	WANG Rui-xin, CHEN Jing, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (2807)
Effects of the Physical Structure of Activated Sludge on Respiration Processes	GUO Yao, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (2813)
Performance of an Aerobic Granular Reactor Treating Biogas Slurry from Pig Farm	LIAO Jie, YE Jia-qi, ZENG Zhi-chao, <i>et al.</i> (2821)
Spatial-temporal Characteristics and Driving Factors of Greenhouse Gas Emissions from Rivers in a Rapidly Urbanizing Area	LIU Ting-ting, WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, <i>et al.</i> (2827)
Influences of Biochar on Pollutant Removal Efficiencies and Nitrous Oxide Emissions in a Subsurface Flow Constructed Wetland	DENG Chao-ren, LIANG Yin-kun, HUANG Lei, <i>et al.</i> (2840)
Effects of the Veterinary Antibiotic Sulfamethazine on N ₂ O Emissions and the Associated Microbiological Mechanism in a Rice Field	WU Jie, LI Zhi-lin, XU Jia-ying, <i>et al.</i> (2847)
Effects of Different Levels of Nitrogen Fertilization on Soil Respiration Rates and Soil Biochemical Properties in an Alfalfa Grassland	HU Wei, ZHANG Ya-hong, LI Peng, <i>et al.</i> (2858)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils from a Typical Urbanized Area	HE Bo, ZHAO Hui, WANG Tie-yu, <i>et al.</i> (2869)
Accumulation of Heavy Metals in Agricultural Soils and Crops from an Area with a High Geochemical Background of Cadmium, Southwestern China	LIU Yi-zhang, XIAO Tang-fu, XIONG Yan, <i>et al.</i> (2877)
Spatial Distribution Characteristics and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Chinese Wolfberry Land Based on GIS and the Receptor Model	BAI Yi-ru, ZHANG Xing, ZHAO Yun-peng, <i>et al.</i> (2885)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of As at a Small Scale in Agricultural Soils of the Karst Region	WANG Hua, LIU Xiu-ming, LIU Fang, <i>et al.</i> (2895)
Soil Aggregate Stability and Its Stoichiometric Characteristics in <i>Robinia pseudoacacia</i> Forest within Different Vegetation Zones on the Loess Plateau, China	QU Qing, XU Hong-wei, WU Xuan, <i>et al.</i> (2904)
Straw Returning Plus Nitrogen Fertilizer Affects the Soil Microbial Community and Organic Carbon Mineralization in Karst Farmland	XU Xue-chi, SU Yi-rong, WANG Gui-hong, <i>et al.</i> (2912)
Effects of Biochar Application and Ageing on the Adsorption of Antibiotics in Purple Soil	YIN Wen-min, GUAN Zhuo, LIU Chen, <i>et al.</i> (2920)
Ammonia Oxidation in a Neutral Purple Soil Measured by the ¹³ C-DNA-SIP Method	LIU Tian-lin, WANG Zhi-hui, YAN Xiao-juan, <i>et al.</i> (2930)
Effects of Silver Nanoparticles and Silver Ions on Soil Nitrification Microorganisms and Ammonoxidation	WU Ling-li, ZHANG Xu, SHU Kun-hui, <i>et al.</i> (2939)
Insight into the Process of Mn-ANAMMOX in Soils of Agricultural Drainage Ditches	CHEN Shi, LI Zheng-kui, QIN Yun-bin, <i>et al.</i> (2948)
Effects of Different Concentrations of Tetracycline in Sludge on Ammonia Oxidizers During Vermicomposting	WU Ying, HUANG Kui, XIA Hui, <i>et al.</i> (2954)