

河流潜流带地表水-地下水交互作用对磺胺甲恶唑迁移转化过程的影响

潘维艳¹ 刘洋¹ 徐征和¹ 桑国庆¹

1. 济南大学 水利与环境学院 山东济南 250022

摘要: 磺胺甲恶唑 (SMX) 作为一种广泛使用的抗生素, 其在环境中的残留与检出频率持续增加, 研究 SMX 在河流潜流带中的迁移转化行为对保障河流生态健康与水安全至关重要。本研究基于室内模拟实验, 探讨了不同水力梯度下, 地表水-地下水交互作用对潜流带沉积物中 SMX 迁移转化规律的影响。结果表明: 地表水-地下水交互作用驱动着潜流带环境因子的动态变化, 进而引起微生物多样性及群落结构的演替, 最终影响 SMX 的迁移与转化行为。SMX 在潜流带中的转化主要经由水解、脱硫化和生物降解途径实现, 其主导衰减机制随交互作用时间的延长而转变。其中, 变形菌门与厚壁菌门是参与 SMX 生物降解的优势菌群。此外, 水力梯度对 SMX 的去除效率具有明显影响, 在低水力梯度下, 较小的水流流速更有利于 SMX 在沉积物中的滞留与降解, 因而表现出更显著的去除效果。

关键词: 河流潜流带; 地表水-地下水交互作用; 磺胺甲恶唑迁移转化; 微生物群落

中图分类: X52

收稿日期: 2025-09-30

Study on the influence of surface water-groundwater interaction in hyporheic zone on Sulfamethoxazole migration and transformation process

Pan Weiyan¹, Liu Yang¹, Xu Zhenghe¹, Sang Guoqing¹

1. University of Jinan, School of Water Conservancy and Environment, Jinan, 250022, China

Abstract: As a widely used antibiotic, sulfamethoxazole (SMX) is being increasingly detected in aquatic and soil environments, where its residual concentrations continue to rise. It is imperative to investigate the fate of SMX in the hyporheic zone, as it is critical for safeguarding river ecosystem health and ensuring water security. This study collected hyporheic sediments and conducted simulation experiments to investigate the migration and transformation processes of SMX within the hyporheic zone under various hydraulic gradients. The results demonstrated that dynamics of sedimentary environmental factors in the hyporheic zone, driven by surface water-groundwater interactions, were initiated by successive shifts in microbial diversity and community structure, which in turn modulated the migration and transformation processes of SMX. Hydrolysis, desulfonation, and biodegradation served as the primary pathways for SMX transformation in the hyporheic zone, with the dominant attenuation mechanism transitioning over the course of water interactions. Proteobacteria and Firmicutes were the primary microbial groups in the hyporheic zone and the key drivers of SMX

基金项目: 国家自然科学基金 (地表水-地下水交互带中典型抗生素迁移转化机制研究, 42307083); 济南大学 2024 年学科交叉会聚建设项目 (XKJC-202407)。

作者简介 (通讯作者): 潘维艳 (1987-), 女, 副教授, 主要从事地表水-地下水交互作用下污染物迁移转化方面研究。E-mail:stu_panwy@ujn.edu.cn, ORCID: 0009-0005-6063-9759

biodegradation. The removal efficiency of SMX varied with hydraulic gradients in the hyporheic zone, with a more significant removal observed under the lower hydraulic gradient condition.

Keywords: Hyporheic zone, Surface water-groundwater interaction, SMX transformation, Bacterial groups

引言

中国是世界上最大的抗生素生产国和使用国 (Kaandorp *et al.*, 2018)，由此带来的生态环境问题受到社会广泛关注。目前，抗生素已在地表水、地下水被频繁检出，其残留及潜在危害已成为全球研究热点 (柳林妹等, 2024; Wu *et al.*, 2025)。磺胺类抗生素是环境检出频繁、迁移性强且具有较高环境和人体健康风险的一种抗生素种类 (Bai *et al.*, 2019; Dong *et al.*, 2021)，磺胺甲恶唑 (SMX) 是世界上使用最广泛的磺胺类抗生素之一 (Jia *et al.*, 2017; Wang *et al.*, 2018)，且其环境检出率及检出浓度较高。据中国再生水及地下水样抗生素浓度普查结果可知，SMX 在其中的检出率分别为 100% 和 81.25%，浓度最大值高达 4.0 $\mu\text{g/L}$ 和 1.3 $\mu\text{g/L}$ (Ma *et al.*, 2015)。

作为地表水与地下水相互作用的关键纽带，潜流带在流域水文循环和生物地球化学循环中扮演着重要角色 (杜尧等, 2017; Wen *et al.*, 2024)。地表水-地下水潜流带中频繁且强烈的水分交换作用伴随着水动力条件、生物地球化学特征的变化，将直接影响其中污染物的迁移、转化和归宿 (Schübl *et al.*, 2021)，作为污染物富集、降解和转化等过程的重要场所 (Harvey and Gooseff, 2015)，潜流带不断接纳各种污染物，其中新型污染物抗生素因其具有难以降解、生物毒性较高，能诱导产生耐药菌和耐药基因等特点，对人体健康和生态安全可构成严重威胁而备受关注 (Zhang *et al.*, 2021)。在地表水与地下水交换过程中，地表水中的抗生素部分可以被吸附到沉积物中，部分可以被降解 (Zhang *et al.*, 2021; Chabilan *et al.*, 2023)，残留部分则可能随着地表水与地下水的交互过程进入地下水。潜流带内复杂的水动力作用、生物作用、物质迁移和化学反应等动态过程，使其内部形成陡峭的化学和生物梯度，从而驱动抗生素等污染物的环境生物地球化学行为 (朱子超等, 2021)，并能调控其中微生物群落的分布特征。

目前国内外学者关于微生物降解磺胺抗生素的实验研究表明，磺胺抗生素在降解过程中，主要发生水解、氧化、还原、脱硫等过程，磺胺抗生素在微生物的作用下矿化，转化为对环境无害的降解末端产物 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ (Jiang *et al.*, 2014)。磺胺类抗生素生物降解过程复杂，且受多种因素影响，氧化还原条件是影响 SMX 降解的关键因素之一，研究发现，SMX 的降解不再局限于严格厌氧条件，也可在好氧环境中发生 (Kassotaki *et al.*, 2016; Liu *et al.*, 2017)，前期研究已知水动力条件改变能够影响潜流带沉积物中微生物群落分布、水力停留时间、温度及营养物浓度，进而影响污染物的降解效果 (平雪等, 2018; Qu *et al.*, 2025)，但是不同水动力条件对磺胺甲恶唑迁移转化以及微生物群落结构的影响还不清楚。目前关于河流潜流带抗生素的迁移转化主要集中在野外试验中，然而，野外试验受到自然环境的不可控因素限制。相比之下，室内模拟实验能够在受控条件下模拟各种物理、化学和生物过程，从而更准确地分析污染物的迁移转化机制，排除外界干扰 (彭闯等, 2024)。

本文通过采集河流潜流带沉积物原状样品并开展室内模拟实验，探讨潜流带地表水-地下水交互作用下沉积物中 SMX 的迁移转化规律以及微生物群落组成，

揭示潜流带地表水-地下水交互作用过程中 SMX 的迁移转化机制, 以期为流域抗生素污染综合防治提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 实验装置与材料

1.1.1 实验装置

模拟实验装置由渗流槽和两侧升降水箱 2 部分组成 (图 1), 渗流槽内部尺寸为 100 cm (长) \times 80 cm (高) \times 20 cm (宽), 由厚度为 15 mm 的有机玻璃板制成。槽体两端设有宽为 5 cm 的进出水槽, 沉积物样品接触侧通过布水板的水孔与进出水槽实现连通, 布水板表面均匀覆盖 200 目孔径的尼龙纱网, 防止渗流槽内沉积物流失。两侧水箱尺寸为 20 cm (长) \times 20 cm (宽) \times 20 cm (高), 渗流槽的左上端设置为 20 cm (长) \times 18 cm (宽) \times 20 cm (高) 的河流模拟区。在槽体正面布设陶土头用于水样采集。

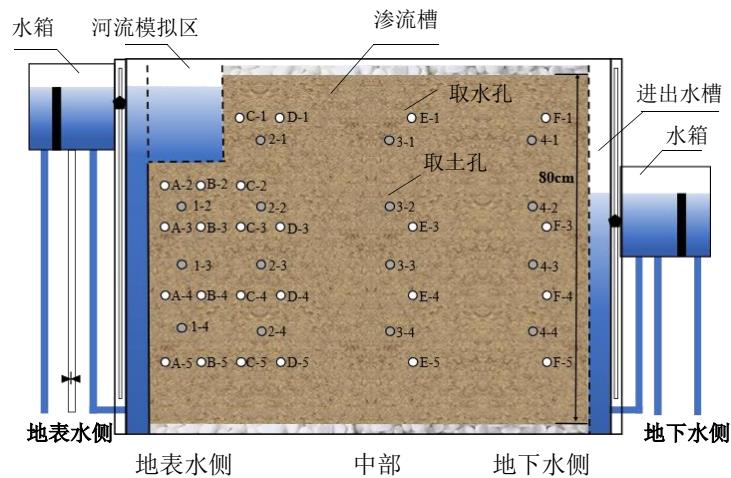


图 1 潜流带地表水-地下水交互过程模拟实验装置

Fig.1 Simulation experimental device for the process of water exchange in hyporheic zone

1.1.2 潜流带沉积物

采用 PVC 管采集 80 cm 河流潜流带沉积物样品, 取回的沉积物样品进行风干, 剔除杂质, 得到实验沉积物样品待用。采用环刀法测定沉积物干容重, 采用马尔文激光粒度仪测定沉积物粒径, 参照《土壤 氨氮、亚硝酸盐氮、硝酸盐氮的测定 氯化钾溶液提取-分光光度法》HJ 634—2012 测定沉积物中的 NH_4^+ 和 NO_3^- 含量。采用固相萃取-高效液相色谱法测定沉积物中的 SMX。测定结果表明, 土壤为砂壤土, 干容重为 1.79 g/cm^3 , 沉积物中 NO_3^- 、 NH_4^+ 和 SMX 的含量分别为 20 mg/kg 、 0.58 mg/kg 和 18.6 ng/g 。

1.1.3 实验设计与运行

渗流槽填装前, 在渗流槽底部出水口处放置砂网并填入粒径为 0.5~1 cm 的砂粒作为反滤层防止沉积物流失, 并在渗流槽内壁均匀涂抹凡士林以避免渗流槽内壁产生优先流。随后往渗流槽内分层填充 80 cm 沉积物样品, 填装完成后, 在沉积物顶部表面装 2 cm 厚度的卵砾石以均匀布水并防止进水对沉积物表面造成冲击。填充完成后, 首先进行渗流槽的排气和清洗, 采用自下而上的方式向渗流

槽中通入去离子水,使渗流槽内部的孔隙结构达到饱水状态,直至渗流槽顶部有水溢出,保持持续供水72 h后结束饱水,排气完成。随后改为自上而下供水,对渗流槽进行清洗,清洗时间约6周,直至渗流槽底层出水中 NO_3^- 、 NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 浓度达到检测下限,分别为0.08 mg/L、0.025 mg/L和5 mg/L,此时完成渗流槽清洗。

基于潜流带地表水-地下水交互作用过程进行实验设计,从河流模拟区通入地表水模拟液模拟地表水补给地下水过程,从渗流槽地下水侧通入地下水模拟液模拟地下水补给地表水过程。实验过程中通过升降装置控制水箱内水位高度以设置不同水力梯度,从而研究不同水力梯度下SMX在潜流带沉积物中的迁移转化规律。实验设置两组水力梯度即低水力梯度(H1)和高水力梯度(H2),H2组实验是在H1组结束后开展,在改变水力梯度之前,渗流槽有一个充分冲洗过程,除水力条件不同,H2实验条件与设置均和H1保持一致,每组实验持续时间为30 d,每5 d更换补给方向,因此,实验期间包括三个地表水-地下水交互作用周期,分别为第一个地表水-地下水交互作用周期(0~10 d)、第二个地表水-地下水交互作用周期(10~20 d)和第三个地表水-地下水交互作用周期(20~30 d),每1~2 d采集一次水样,两种水力梯度设计情况见表1。实验采用遮光布覆盖渗流槽,以模拟自然状态下潜流带的避光环境,实验温度控制在25~30°C。

表1 实验水力梯度设计

Table 1 Design of experimental hydraulic gradients

实验分组	地表水补给地下水			地下水补给地表水		
	地表水水位(cm)	地下水水位(cm)	水力梯度	地表水水位(cm)	地下水水位(cm)	水力梯度
H1	75	52.5	0.225	62.5	75	0.125
H2	80	48.5	0.315	57.5	80	0.225

通过蠕动泵将模拟液注入升降水箱中,参考河流地表水和地下水各组分实际含量进行模拟液配置,实验用模拟液的配置组分及浓度如表2和表3所示。

表2 地表水模拟液的配置组分及浓度

Table 2 Composition and concentration of constituents in simulated surface water

物质	$\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$	NH_4Cl	KNO_3	KCl
浓度(mg/L)	3.64	1.34	11.59	18.39
物质	$\text{Ca}(\text{HCO}_3)_2$	NaCl	CaCl_2	SMX
浓度(mg/L)	330	3.33	18.34	0.5

表3 地下水模拟液的配置组分及浓度

Table 3 Composition and concentration of constituents in simulated groundwater

物质	$\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$	NH_4Cl	KNO_3	$\text{Ca}(\text{HCO}_3)_2$	NaCl	SMX
浓度(mg/L)	13.44	0.475	30.3	630.87	8.95	0.5

1.2 测试指标

水样测试指标包括SMX、pH、溶解氧(DO)、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 。其中, NH_4^+ 采用紫外分光光度法, SO_4^{2-} 采用硫酸钡比浊法,pH、DO采用电极法测定。SMX浓度测定采用固相萃取—高效液相色谱法(SPE—HPLC法)。色谱分析采用Agilent 1290 Infinity II超高效液相色谱系统,配置XDB C18反相色谱柱(150 mm×4.6 mm, 5 μm 粒径)。色谱柱恒温箱设置为30°C,该温度可优化分析物与固定相的相互作用,提升分离效能。模拟液采用SMX标准样品($\text{C}_{10}\text{H}_{11}\text{N}_3\text{O}_3\text{S}$)

纯度>99.5%，相对分子质量为 253.27，超高效液相色谱仪的流动相甲醇、甲酸为高效液相色谱级，实验用水为去离子水。在两组实验开始前和结束后分别通过取样孔采集沉淀物样品进行微生物测定，采用高通量测序技术，进行微生物群落组成分析，测定样品共计 4 组 16 个样本，H1 条件下实验开始前样品记为 C0，实验结束后样品记为 C1，H2 条件下实验开始前、结束后样品分别记为 C2、C3，结合不同采样深度(15、30、45、60 cm)，分别记为 C01~C04、C11~C14、C21~C24、C31~C34。潜流带对 SMX 的去除率，定义为进水浓度与相应观测期内渗流槽中观测到的 SMX 最低浓度之差同进水浓度的比值。微生物群落组成委托北京诺禾致源科技股份有限公司进行测定。

2 结果分析与讨论

2.1 潜流带沉积物环境因子与 SMX 及其代谢产物变化特征

2.1.1 潜流带沉积物环境因子变化规律

实验期间，两种不同水力梯度下潜流带 15、30、45 和 60 cm 深度沉积物孔隙水中 pH 值随时间均呈现减小趋势，地表水-地下水交互作用结束时(30 d)，H1 条件下各深度孔隙水中 pH 值从 7.7~7.8 下降到 7.0~7.2 之间，H2 条件下各深度孔隙水中 pH 值从 7.7~7.9 下降到 7.0~7.1 之间，整体上来看，两种水力梯度下潜流带孔隙水中 pH 值接近，地表水-地下水交互作用过程使潜流带沉积物从碱性环境逐渐转变为中性环境。

两种水力梯度下潜流带沉积物孔隙水中 DO 浓度变化特征如图 2 所示，由图 2 可知，在 H1 条件下，从地表水补给地下水开始(5 d)到地表水-地下水交互作用结束(30 d)，潜流带沉积物孔隙水中 DO 浓度从 7.63~10.95 mg/L，下降到 2.08~6.47 mg/L；在 H2 条件下，DO 浓度从 6.63~10.8 mg/L，下降到 1.26~5.7 mg/L。在两种水力梯度条件下潜流带孔隙水中 DO 浓度变化趋势相似，且 DO 浓度整体上随地表水-地下水交互作用过程的进行呈现下降趋势。地表水-地下水交互作用结束后，潜流带沉积物内部 DO 浓度呈垂直分布并表现出随深度增加而递减的规律，对比两种水力条件发现，高水力梯度条件下潜流带沉积物孔隙水中 DO 浓度比低水力梯度条件下消耗的多。

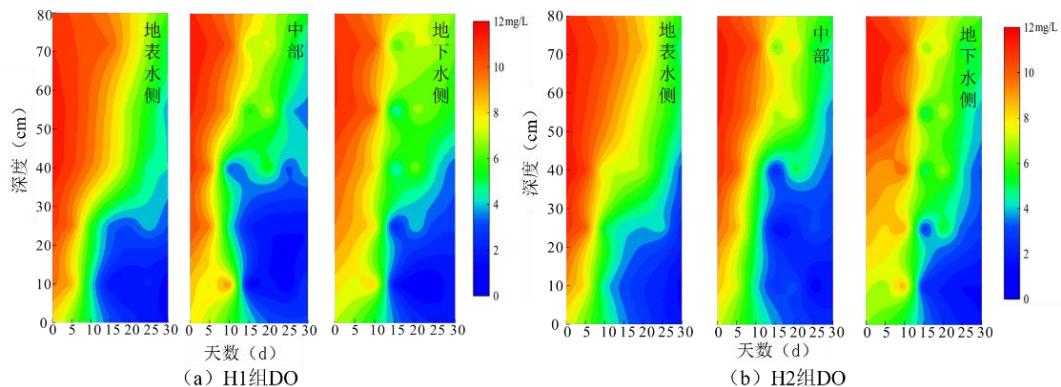


图 2 不同水力梯度下沉积物孔隙水 DO 变化特征

Fig.2 Concentration changes of DO in sediment interstitial water at different depths under different hydraulic gradients

2.1.2 潜流带沉积物中 SMX 浓度变化规律分析

两种水力梯度下潜流带沉积物孔隙水中 SMX 浓度变化特征如图 3 所示。由图 3 (a) 可知, 在 H1 条件下, 实验初期, 地表水补给地下水过程中潜流带沉积物孔隙水中 SMX 浓度呈现上升趋势, SMX 自潜流带左上方(河流模拟区)向潜流带深处扩散, 整个潜流带沉积物孔隙水中 SMX 浓度在 0.12~0.41 mg/L 范围内, 更换为地下水补给地表水过程后(10 d), 潜流带右侧沉积物孔隙水中 SMX 浓度逐渐升高, 潜流带左侧 SMX 浓度则呈减小变化趋势, 此时孔隙水中 SMX 浓度在 0.19~0.43 mg/L 范围内, 最大值为 0.43 mg/L, 出现在地下水补水处附近。第二个和第三个地表水-地下水交互周期中 SMX 在潜流带沉积物中的迁移规律与第一个周期相似。第三个周期结束(30 d)时, 整个潜流带沉积物孔隙水中 SMX 浓度在 0.22~0.43 mg/L 范围内。与实验前相比, 经过三个地表水-地下水交互周期后, H1 条件下孔隙水中 SMX 浓度有所上升但均低于模拟液 SMX 浓度, 可见 SMX 浓度在地表水-地下水交互作用下发生了明显的衰减作用, H1 条件下潜流带对 SMX 的平均去除率为 56%。由图 3 (b) 可知, 在 H2 条件下, 第一、二和三个地表水-地下水交互周期结束后, 孔隙水中 SMX 浓度分别在 0.23~0.40 mg/L, 0.27~0.45 mg/L 和 0.3~0.45 mg/L 范围内, H2 条件下潜流带对 SMX 的平均去除率为 40%。

结果发现, 在潜流带中地表水-地下水交互作用能够导致潜流带水流形态和 DO 浓度的差异(图 2), 进而造成潜流带内部氧化还原条件和微生物群落结构等因素的不同, 从而影响潜流带中 SMX 的迁移和转化过程(图 3)。两种不同水力梯度下, 潜流带沉积物孔隙水中 SMX 浓度扩散规律相似。与实验开始前相比, 经过地表水-地下水交互作用后, 沉积物孔隙水中 SMX 浓度上升明显但均低于输入的模拟液 SMX 浓度, 且 SMX 浓度在潜流带空间上的分布趋于均匀, 这是由于模拟液进入沉积物中对孔隙水中的水分进行驱替与混合。以第一个地表水-地下水交互作用周期为例, 在地表水补给地下水过程中水流形态为下降流, 地表水携带 SMX 和 DO 由浅表沉积物向深层沉积物迁移, 导致 SMX 和 DO 浓度在空间上均呈现左高右、下低的分布特征, 与地表水中 SMX 和 DO 浓度相比可知, SMX 在该交互周期内发生了衰减, 潜流带沉积物中 SMX 浓度在 0.12~0.41 mg/L 范围内, 最低值为 0.12 mg/L。而在地下水补给地表水过程中, 由于水流形态为侧向流并且水流缓慢, SMX 和 DO 在潜流带沉积物孔隙水中继续迁移、扩散, SMX 浓度呈现地下水侧最高, 中间部分最低的分布特征, 此时潜流带沉积物中 SMX 浓度在 0.19~0.43 mg/L 范围内, 最低值为 0.19 mg/L, 对比两种补给方向情境下的实验结果可以发现, 地表水补给地下水条件下潜流带对 SMX 的衰减效果较地下水补给地表水条件下略强。

两种不同水力梯度下, 虽然潜流带沉积物孔隙水中 SMX 浓度扩散规律相似, 但扩散速度与衰减效果有所差异(图 3)。有研究表明潜流带水流形态和流向受地表水和地下水水位差的影响, 而物质在潜流带的水流驻留时间主要取决于潜流带的水力梯度(Gartner *et al.*, 2012; Xia *et al.*, 2023), 本研究中潜流带孔隙水中 SMX 浓度在两种不同水力梯度下呈现了不同的迁移规律与衰减效果。对比图 3 (a)、(b) 可以发现, 高水力梯度条件下潜流带沉积物孔隙水中 SMX 浓度整体上明显高于低水力梯度, 这是由于在低水力梯度下, 潜流带水力停留时间长, 污染物迁移速度较慢, 一方面导致污染物仍集中在潜流带的上部, 潜流带孔隙水中 SMX 浓度空间变化不明显, 另一方面延长水力停留时间有利于污染物的充分

衰减（李海波等，2016），导致 H1 内的 SMX 浓度低于 H2。潜流带沉积物孔隙水中 SMX 的浓度空间分布特征与 DO 基本一致，呈现随着深度的增加而减小的趋势，且试验期间 H1 内一直处于好氧环境，H2 处于以好氧为主、缺氧共存的环境，研究表明，地表水与地下水交互作用能够导致潜流带沉积物孔隙水中形成不同的氧化还原环境，进而影响 SMX 的迁移转化过程。不同水力梯度最终导致潜流带沉积物对 SMX 的衰减效果不同，结果显示，低水力梯度下潜流带对 SMX 的去除效果优于高水力梯度条件。

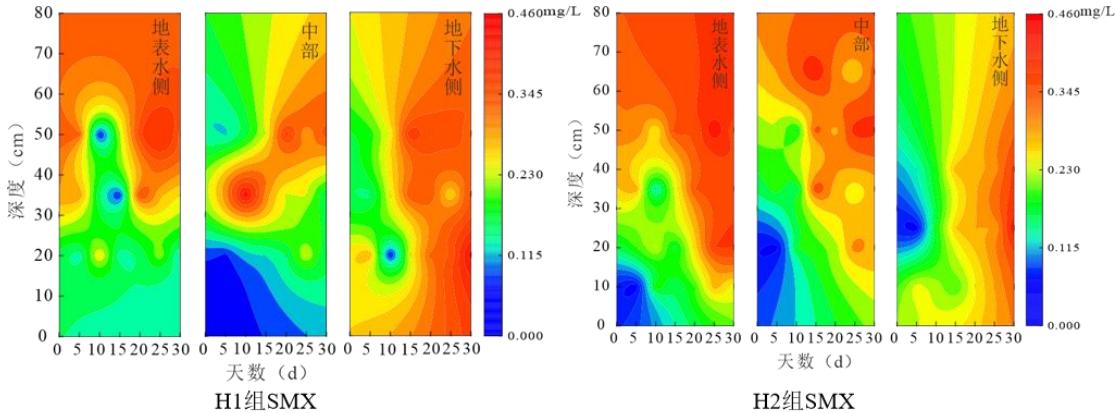


图 3 不同水力梯度下沉积物孔隙水 SMX 变化特征

Fig.3 Concentration Changes of SMX in sediment interstitial water at different depths under different hydraulic gradients

潜流带的酸碱环境驱动着物质的存在形态、迁移转化效率及微生物活性等过程（Cook *et al.*, 2020; Jin *et al.*, 2020）。当潜流带水环境 pH 值在 7~8 范围内时，水环境中 SMX 主要以阴离子形式存在，与土壤介质表面的负电荷排斥，不容易被吸附，迁移能力强（Sarker *et al.*, 2023），两种水力梯度条件下，地表水-地下水交互作用过程中潜流带各深度沉积物孔隙水中 pH 值均呈现下降趋势，且整体上在 7~8 之间，因此，推测潜流带沉积物对 SMX 的吸附作用较弱。如图 3 所示，与输入模拟液 SMX 浓度值相比，两种水力梯度下孔隙水中 SMX 浓度均随着地表水与地下水交互作用过程呈现减小趋势，这表明 SMX 在潜流带中除了迁移扩散，还可能发生水解、生物降解等作用（Borsetto *et al.*, 2021; Chabilan *et al.*, 2023），最终导致 SMX 的衰减去除。

2.1.3 潜流带沉积物中 NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 浓度变化特征

两种水力梯度下潜流带沉积物孔隙水 NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 浓度变化如图 4 所示，由图 4 可以看出，与补给地表水之前孔隙水中 NH_4^+ 浓度（小于 0.025 mg/L）相比，两种水力梯度下孔隙水中 NH_4^+ 浓度整体上均呈现先上升后下降的趋势。由图 4 (a) 可知，在 H1 条件下，第一、二和三个地表水-地下水交互周期结束后，孔隙水中 NH_4^+ 浓度分别在 2.1~9.5 mg/L, 2.0~8.1 mg/L 和 1.9~8.6 mg/L 范围内，平均值分别为 5.9 mg/L、5.0 mg/L 和 5.1 mg/L。由图 4 (b) 可知，在 H2 条件下，第一、二和三个地表水-地下水交互周期结束后，孔隙水中 NH_4^+ 浓度分别在 1.61~8.33 mg/L, 2.35~7.56 mg/L 和 2.03~7.65 mg/L 范围内，平均值分别为 4.9 mg/L、4.8 mg/L 和 4.5 mg/L。结果显示，两种水力梯度下沉积物孔隙水 NH_4^+ 浓度扩散趋势相似，地表水-地下水交互作用结束时高水力梯度下的潜流带 NH_4^+ 浓度整体低于低水力梯度条件。

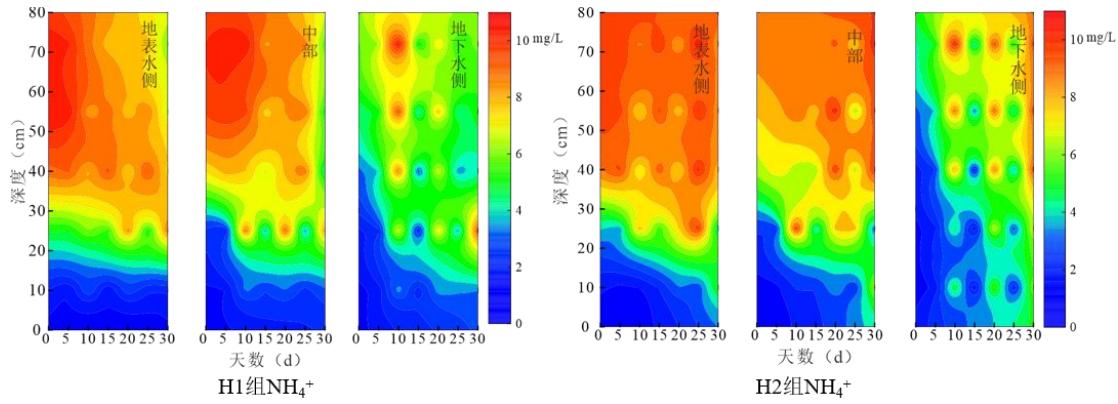


图 4 不同水力梯度下沉积物孔隙水 NH_4^+ 变化特征

Fig.4 Concentration Changes of NH_4^+ in sediment interstitial water at different depths under different hydraulic gradients

两种水力梯度下潜流带沉积物孔隙水中 SO_4^{2-} 浓度变化如图 5 所示, 两种水力梯度下沉积物孔隙水 SO_4^{2-} 浓度扩散趋势一致。由图 5 (a) 可以看出, 在 H1 条件下, 第一、二和三个地表水-地下水交互周期结束后, 潜流带沉积物孔隙水中 SO_4^{2-} 浓度分别在 1.26~5.01 mg/L, 2.56~6.66 mg/L 和 3.45~7.54 mg/L 范围内。由图 5 (b) 可以看出, 在 H2 中, 第一、二和三个地表水-地下水交互周期结束后, 潜流带沉积物孔隙水中 SO_4^{2-} 浓度分别在 1.56~7.32 mg/L, 2.13~7.56 mg/L 和 4.03~7.85 mg/L 范围内。与代谢产物 NH_4^+ 浓度分布不同, 高水力梯度条件下沉积物孔隙水中 SO_4^{2-} 略高于低水力梯度条件。

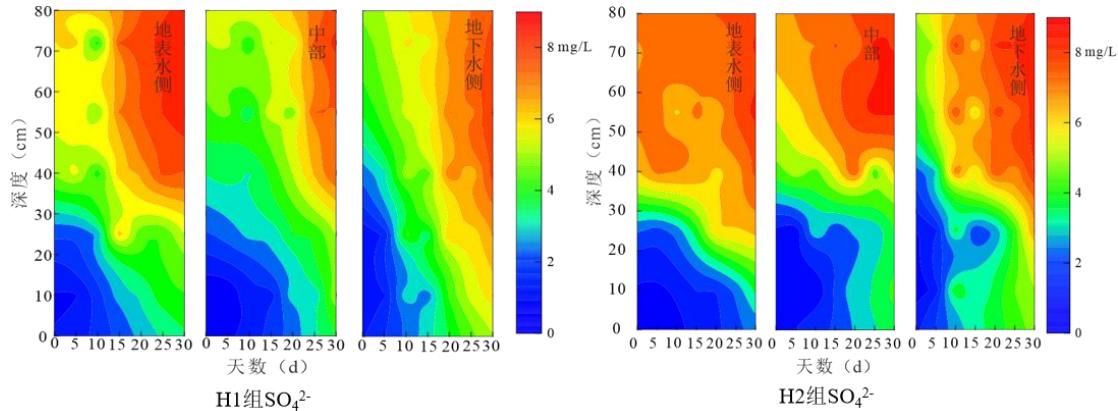


图 5 不同水力梯度下沉积物孔隙水 SO_4^{2-} 变化特征

Fig.5 Concentration Changes of SO_4^{2-} in sediment interstitial water at different depths under different hydraulic gradients

作为代谢产物, 潜流带沉积物孔隙水中的 SO_4^{2-} 浓度在地表水-地下水交互作用过程中呈逐渐增长变化趋势, 前 15 d 增长速率相对平缓, 随后增长速率显著提升, 该浓度变化趋势与 SMX 的浓度变化过程相似, 进一步验证在潜流带中 SMX 发生了水解、脱硫化等代谢过程, 最终生成 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 等产物 (Cheng and Zhang, 2024)。与 SO_4^{2-} 浓度变化趋势不同, 在第三个地表水-地下水交互作用周期 (20~30 d) 内沉积物孔隙水中的 NH_4^+ 浓度又呈现下降趋势, 这是由于在碳源充足, DO 浓度高于 1 mg/L 的情况下潜流带发生了硝化作用 (丁吾举等, 2024), 导致潜流带沉积物孔隙水 NH_4^+ 浓度下降的同时伴随 DO 浓度和 pH 值的下降 (图 2)。综合潜流带地表水-地下水交互作用过程中 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 含量以及 pH 值的变

化趋势, 推测水解、脱硫化等代谢过程主要发生在潜流带沉积物前两个地表水-地下水交互作用周期内。

2.2 潜流带沉积物微生物群落组成特征

2.2.1 Alpha 多样性分析

本研究选取 Chao1 丰富度指数和 Shannon 多样性指数来比较不同实验时期潜流带沉积物中微生物群落的物种多样性特征, 结果如图 6 所示。由图 6 (a) 可知, 各组潜流带沉积物样本中 Shannon 指数范围分别为 3.35~9.08, 3.31~9.15, 3.24~8.12 和 3.00~7.19, Shannon 指数 C1>C0>C2>C3。对比发现, H1 实验结束时微生物多样性较实验开始前有所增加, H2 实验结束时微生物群落多样性在整个实验周期中最低。由图 6 (b) 可以看出, 各组潜流带沉积物样本中, Chao1 指数 C1>C0>C2>C3, 该结果与 Shannon 指数一致, C1 组的物种丰富度最高, C0 组次之, C3 组最低。

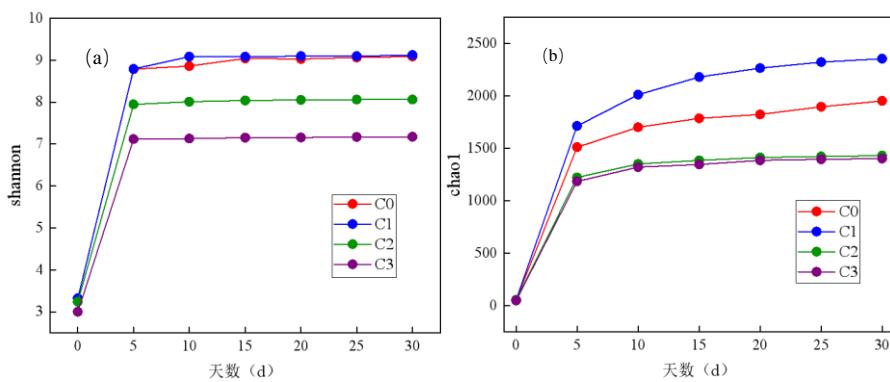


图 6 潜流带沉积物样品 Shannon 指数稀释曲线 (a) 和 Chao1 指数 (b)

Fig.6 Shannon indices and Chao1 index in river sediment samples

2.2.2 微生物群落组分分析

依据不同分类等级 (界门纲目科属种) 的物种注释数据库, 筛选相对丰度排名前列的优势物种, 将剩余低丰度物种合并为“Others”, 构建各沉积物样本在不同分类层级上的物种相对丰度柱状图。各组潜流带沉积物样本在门水平上的排名前 10 的群落组成与属水平上的排名前 30 的群落组成结果如图 7 所示。由图 7 (a) 可以看出, 微生物检测门水平上的优势菌群主要为变形菌门(*Proteobacteria*)、厚壁菌门(*Firmicutes*)、芽单胞菌门(*Gemmatimonadota*)、拟杆菌门(*Bacteroidota*)、酸杆菌门 (*Acidobacteriota*)、放线菌门 (*Actinobacteriota*)、泉古菌门 (*Crenarchaeota*)、黏球菌门 (*Myxococcota*)、绿弯菌门 (*Chloroflexi*)、脱硫杆菌门 (*Desulfobacterota*) 等。

这些菌门在不同样本中的相对丰度有所不同, 其中 *Proteobacteria* 和 *Firmicutes* 在大多数样本中占据较大比例, 是主要的优势菌群。变形杆菌门类群涵盖严格需氧、兼性厌氧与微好氧等多种呼吸代谢类型, 对溶解氧条件多变的潜流带具有较强的适应性。变形菌门在潜流带沉积物中作为优势种群, 其核心功能在于驱动抗生素的降解过程。该类群通过编码加氧酶、水解酶等关键酶系, 直接催化抗生素分子的开环与分解; 同时, 其多样的好氧/兼性厌氧代谢能力使其在微氧环境中保持活性, 并通过共代谢途径有效转化抗生素。厚壁菌门多数为严格厌氧或兼性厌氧菌, 且在大多数地区的河流沉积物微生物群落中厚壁菌门均为优

势菌门(李鹏洋等, 2022), 在潜流带中, 厚壁菌门可通过芽孢抵抗抗生素胁迫, 作为耐药基因库, 并通过厌氧发酵等代谢途径, 直接降解抗生素或通过共代谢转化污染物中间体(吴迎等, 2019)。其他菌门如 *Gemmatimonadota*、*Bacteroidota*、*Acidobacteriota*、*Actinobacteriota* 和 *Crenarchaeota* 在个别样本中占有一定比例, 但相对较低。经跨样本统计平均后, *Proteobacteria* 在所有样品中展现出最高的相对丰度优势, 其平均占比达到 30.90%, 其次是 *Firmicutes*、*Gemmatimonadota*、*Bacteroidota*、*Acidobacteriota*、*Actinobacteriota*, 占比依次为 18.41%、11.15%、10.51%、6.45%、7.01%, 而 *Desulfobacterota*、*Chloroflexi*、*Myxococcota*、*Crenarchaeota* 的占比较低, 分别为 3.57%、3.82%、1.53%、1.28%。其他菌门的总占比为 5.38%。

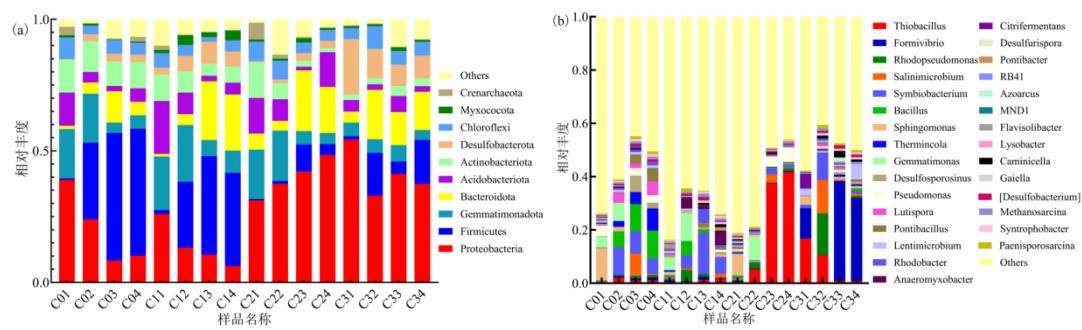


图 7 潜流带沉积物样品在门水平与属水平的微生物种群结构

Fig.7 Microbial community members at the phylum level and the genus level in river sediment samples

由图 7 (b) 可知, 在属水平上, 物种丰度占比较高的微生物菌属主要有硫杆菌属(*Thiobacillus*)、甲酸弧菌属(*Formivibrio*)、共生杆菌属(*Symbiobacterium*), 分别占比为 7.54%、4.77%、4.01%, 其余的芽孢杆菌属(*Bacillus*)、芽单胞菌属(*Gemmatimonas*)、鞘氨醇单胞菌属(*Sphingomonas*)、盐微菌属(*Salinimicrobium*)、红假单胞菌属(*Rhodopseudomonas*)、热丝菌属(*Thermincola*)、脱硫芽孢菌属(*Desulfosporosinus*) 占比较少, 在 0.56%~2.45% 之间。

随着实验进行, 两种水力梯度条件下, 沉积物样品属水平微生物群落结构呈现显著的变化, 相关种群的相对丰度呈现在实验后期出现上升, 实验末期出现下降的变化趋势。如图 7 (b) 所示, 在 H1 条件下, *Thiobacillus* 和 *Formivibrio* 的相对丰度始终维持在 1% 以下。改为 H2 条件后, 两类菌属呈现明显差异, C2 组中 *Thiobacillus* 的相对丰度升至最高水平, 而 C3 组中 *Formivibrio* 占据主导地位。可以看出, 在潜流带地表水-地下水交互作用下, 微生物群落结构在时空上发生了显著变化, 最终导致不同实验时期内潜流带 SMX 去除效果的差异。

图 6 和图 7 表明在地表水-地下水交互作用下潜流带沉积物中环境条件不同, 导致不同时期潜流带沉积物中微生物多样性与群落结构不断发生变化。在低水力梯度条件下, 潜流带沉积物中微生物多样性随地表水-地下水交互作用过程的进行呈现增大趋势(图 7), 这是因为沉积物和模拟液中携带的营养物质为潜流带中的微生物活动提供了丰富的物质基础, 微生物逐渐适应了潜流带沉积物环境, 进而促进了其中微生物的快速生长和繁殖(Zhang et al., 2015), 因此, 经过三个水交互作用周期后(H1, 30 d) 潜流带沉积物中微生物物种丰富度和多样性明显提高。与 H1 不同的是, 在高水力梯度作用下, 潜流带沉积物中可用营养物质的

水力停留时间短,限制了潜流带中部分微生物的生长和繁殖,从而影响了微生物群落的结构,导致某些物种的相对丰度降低,群落结构不均匀。

2.3 潜流带地表水-地下水交互作用下 SMX 迁移转化机制

综合潜流带沉积物地表水-地下水交互作用下氧化还原条件、酸碱环境以及微生物群落分布特征,可将 SMX 在潜流带沉积物中的迁移转化过程划分为三个阶段:前期阶段(2~10 d)为微生物群落适应期,该阶段 SMX 的衰减主要依赖水解、脱硫化等过程;中期阶段(10~20 d),SMX 的降解速率明显增长,该阶段表现为生物降解主导期;末期阶段(20~30 d),营养物质缺乏和 SMX 的抑菌性导致微生物群落结构发生变化,SMX 浓度再次呈现累积现象。

溶解氧几乎参与潜流带所有物质的循环过程,并控制着环境的氧化还原电位变化(Wen et al., 2024)。本研究中地表水与地下水在潜流带进行不同程度的混合时,产生了自上而下、自河岸由里及外递减的溶解氧梯度(图 3),这与 Lin et al., (2012)的研究结果一致。潜流带沉积物孔隙水 DO 浓度变化趋势表明潜流带中的氧气逐渐被消耗,微生物的作用条件也由好氧环境逐渐过渡为缺氧环境,可见 SMX 生物降解作用也可在潜流带复杂的氧化还原条件下发生,这与 Kassotaki et al., (2016)的研究发现磺胺甲恶唑的降解条件不再局限于严格厌氧条件,也可在好氧环境中发生的结果一致。

本研究中微生物检测门水平上的优势菌群与东北某磺胺类抗生素污染场地附近水体与土壤中检测到的微生物群落结果类似(周爱霞, 2015)。实验期间,潜流带沉积物微生物群落属水平结构呈现显著的变化(图 7),H1 条件下,C1 组中 *Thiobacillus* 和 *Formivibrio* 的相对丰度始终维持在 1% 以下,H2 条件下,C2 组中 *Thiobacillus* 的相对丰度升至最高水平,而 C3 组中 *Formivibrio* 则占据主导地位。这种变化表明, *Thiobacillus* 对环境变化的响应比较缓慢,其代谢活动可能引发毒性物质的累积,随后 *Thiobacillus* 的相对丰度逐渐降低;而 *Formivibrio* 通过代谢功能调整逐渐适应潜流带沉积物环境条件,通过高效利用沉积物中的有机底物实现种群扩增,相对丰度不断增加。

生物降解是水体和沉积物介质中磺胺类抗生素衰减的重要作用之一(白国敏等, 2024),结合图 5 知,在低水力梯度条件下物种丰度占比较高的微生物菌属有共生杆菌属和芽孢杆菌属,高水力梯度条件下,脱硫杆菌为优势属,前人研究发现变形菌门中的脱硫杆菌在 SMX 降解过程中存在重要作用,能够去除水中的 SMX (Xue et al., 2019),芽孢杆菌的存在可以提高抗生素的降解效率(Chen et al., 2022)。本研究结果表明受潜流带地表水-地下水交互作用、水力梯度差异等影响潜流带沉积物中微生物群落组成做出相应改变,从而影响潜流带 SMX 的生物降解效率。

3 结论

(1) 地表水-地下水交互作用的驱动下,潜流带沉积物中的环境因子发生动态变化,进而促使沉积物微生物多样性及群落结构发生演替变化,这一连续变化过程最终影响 SMX 在河流潜流带中的迁移与转化行为。

(2) 河流潜流带沉积物对 SMX 具有一定的去除能力,且其去除效率与水力梯度调控下的地表水-地下水交换过程密切相关。在不同水力梯度条件下,潜流带沉积物对 SMX 的去除效果存在差异。在低水力梯度条件下因水流速度低,SMX 的去除效果更为明显。

(3) 在河流潜流带地表水-地下水交互作用下, 水解、脱硫化以及生物降解是潜流带中 SMX 转化的主要途径。在潜流带沉积物中, SMX 的主导性衰减机制随地表水-地下水交互作用时间的延长而发生转变。实验前期阶段, SMX 的衰减主要由水解和脱硫过程驱动实验中期, 其衰减则逐渐转为以生物降解为主导。

(4) 在河流潜流带地表水-地下水交互作用下, 微生物群落结构在时空上发生明显变化, 相关物种的相对丰度呈现中后期上升, 末期下降的变化趋势。河流潜流带主要微生物类型是变形菌门和厚壁菌门, 是潜流带 SMX 生物降解的主要菌群。

参考文献

- Bai, Y., Ruan, X.H., Wang, F.F., et al., 2019. Sulfonamides Removal Under Different Redox Conditions and Microbial Response to Sulfonamides Stress during Riverbank Filtration: A Laboratory Column Study. *Chemosphere*, 220:668-677. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.12.167>.
- Borsetto, C., Raguideau, S., Emma Travis, E., et al., 2021. Impact of Sulfamethoxazole on a Riverine Microbiome. *Water Research*, 201:117382. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2021.117382>.
- Chabilan, A., Ledesma, D.G.B., Horn, H., 2023. Mesocosm Experiment to Determine the Contribution of Adsorption, Biodegradation, Hydrolysis and Photodegradation in the Attenuation of Antibiotics at the Water Sediment Interface. *Science of the Total Environment*, 866: 161385.2. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.161385>.
- Cheng, Y., Li, W., Zhang, D., 2024. Hydrolysis of Sulfamethoxazole in the Hyporheic Zone: Kinetics, Factors and Pathways. *Environmental Technology*, 45(23):4834-4847. [10.1080/09593330.2023.2283402](https://doi.org/10.1080/09593330.2023.2283402).
- Chen, X., Lin, H., Dong, Y.B., et al., 2022. Mechanisms underlying enhanced bioremediation of sulfamethoxazole and zinc(II) by *Bacillus* sp. SDB4 immobilized on biochar. *Journal of Cleaner Production*, 370:133483. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2022.133483>.
- Dong, P.Y., Qiu, W.H., He, X., et al., 2021. Analysis of Physicochemical Factors Regulating Transport Behaviors of Sulfonamide Antibiotics in Saturated Porous Media. *Journal of Hydrology*, 599:1-10. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2021.126381>
- Gartner, J. D., Renshaw, C. E., Dade, W.B., et al., 2012. Time and Depth Scales of Fine Sediment Delivery into Gravel Stream Beds: Constraints from Fallout Radionuclides on Fine Sediment Residence Time and Delivery. *Geomorphology*, 151/152: 39-49. <https://doi.org/10.1016/j.geomorph.2012.01.008>.
- Harvey, J., Gooseff, M., 2015. River Corridor Science: Hydrologic Exchange and Ecological Consequences from Bed Forms to Basins. *Water Resources Research*, 51(9):6893-6922. <https://doi.org/10.1002/2015WR017617>.
- Jia, Y.Y., Khanal, S.K., Zhang, H.Q., et al., 2017. Sulfamethoxazole Degradation in Anaerobic Sulfate-reducing Bacteria Sludge System. *Water Research*, 119:12-20. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2017.04.040>.

- Jiang, B., Li, A., Cui, D., et al., 2014. Biodegradation and Metabolic Pathway of Sulfamethoxazole by Pseudomonas Psychrophila HA-4, a Newly Isolated Cold-Adapted Sulfamethoxazole-Degrading Bacterium. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 98(10): 4671-4681. 10.1007/s00253-013-5488-3.
- Kaandorp, V.P., Molinanavarro, E., Andersen, H.E., et al., 2018. A Conceptual Model for the Analysis of Multi-Stressors in Linked Groundwater-Surface Water Systems. *Science of the Total Environment*, 627:880-895. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.01.259>.
- Kassotaki, E., Buttiglieri, G., Ferrando-Climent, L., et al., 2016. Enhanced Sulfamethoxazole Degradation through Ammonia Oxidizing Bacteria Co-Metabolism and Fate of Transformation Products. *Water Research*, 94:111-119. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.01.259>.
- Liu, Q.Q., Li, M., Zhang, F.W., et al., 2017. The Removal of Trimethoprim and Sulfamethoxazole by a High Infiltration Rate Artificial Composite Soil Treatment System. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 11(2):1-12. <https://doi.org/10.1007/s11783-017-0920-z>.
- Ma, Y., Li, M., Wu, M., 2015. Occurrences and Regional Distributions of 20 Antibiotics in Water Bodies During Groundwater Recharge. *Science of the Total Environment*, 518-519:498-506. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.02.100>.
- Qu, Y., Song, J.X., Long, Y.Q., et al., 2025. Phosphorus Speciation in the Hyporheic Zone and its Response to Sediment-Water Quality-Biological Activity Coupling Effect. *Journal of Environmental Management*, 374:124145. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2025.124145>.
- Schübl, M., Kieck, A., Hug, K., et al., 2021. Sorption and Biodegradation Parameters of Selected Pharmaceuticals in Laboratory Column Experiments. *Journal of Contaminant Hydrology*, 236:1-11. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2020.103738>.
- Sarker, P., Lei, X.B., Taylor, K., 2023. Evaluation of the Adsorption of Sulfamethoxazole (SMX) Within Aqueous Influent onto Customized Ordered Mesoporous Carbon (OMC) Adsorbents: Performance and Elucidation of Key Adsorption Mechanisms. *Chemical Engineering Journal*, 454:140082. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2022.140082>.
- Wang, J.L., Wang, S.Z. 2018. Microbial Degradation of Sulfamethoxazole in the Environment. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 102:3573-3582. <https://doi.org/10.1007/s00253-018-8845-4>.
- Xue, W.D., Li, F.X., Zhou, Q.X., 2019. Degradation Mechanisms of Sulfamethoxazole and Its Induction of Bacterial Community Changes and Antibiotic Resistance Genes in a Microbial Fuel Cell. *Bioresource Technology*, 289: 121632. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2019.121632>.
- Xia, X.L., Yue, W.F., Zhai, Y.Z., 2023. DOM Accumulation in the Hyporheic Zone Promotes Geogenic Fe Mobility: A laboratory Column Study. *Science of the Total Environment*, 896:165140. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165140>.

- Wen, Z., Liu, H., Rezanezhad, F., et al., 2024. Advancement and perspectives of hyporheic zone hydrology: Technology, theory and environmental implication. *Journal of Hydrology*, 630:130721.<https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2024.130721>.
- Wu, D.L., Bai, H., He, L.Y., et al., 2025. From River to Groundwater: Antibiotics Pollution, Resistance Prevalence, and Source Tracking. *Environment International*, 196:109305. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2025.109305>.
- Zhang, L.L., Zhang, C., Lian, L.T., et al., 2021. Effects of Chronic Exposure of Antibiotics on Microbial Community Structure and Functions in Hyporheic Zone Sediments. *Journal of Hazardous Materials*, 416(2021)126141. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.126141>.
- Zhang, L.Y., Ye, Y.B., Wang, L.J., et al., 2015. Nitrogen Removal Processes in Deep Subsurface Wastewater Infiltration Systems. *Ecological Engineering*, 77(23): 275-283. <https://doi.org/10.1016/j.ecoleng.2015.01.008>.
- 白国敏,孙寓蛟,孙钰洁,等, 2025. 磺胺类抗生素的生物降解研究进展. 环境工程, 43(07):112-124.
- Bai, G.M., Sun, Y.J., Sun, Y.J., et al., 2025. Research Progress on Biodegradation of Sulfonamides. *Environmental Engineering*, 43(07):112-124(in Chinese with English abstract).
- 丁吾举,陆菲雨,赵博,等, 2024. 氮周期供给时潜流带沉积物硝化、反硝化动力学. 地球科学, 49(10):3712-3722.
- Ding, W.J., Lu, F.Y., Zhao, B., et al., 2024. Kinetics of Nitrification and Denitrification in Hyporheic Zone Sediment with Periodical Supply of Nitrogen. *Earth Science*, 49(10):3712-3722(in Chinese with English abstract).
- 杜尧,马腾,邓娅敏,等. 2017. 潜流带水文-生物地球化学:原理、方法及其生态意义. 地球科学, 42(05):661-673.
- Du, Y., Ma, T., Deng, Y.M., et al., 2017. Hydro-Biogeochemistry of Hyporheic Zone: Principles, Hydro-Biogeochemistry of Hyporheic Zone: Principles, Methods and Ecological Significance. *Earth Science*. 42(05):661-673(in Chinese with English abstract).
- 李鹏洋,安启睿,王新皓. 2022. 辽河平原段流域河流沉积物微生物群落多样性和结构分析. 环境科学, 43(05):2586-2594.
- Li, P.Y., An, Q.R., Wang, X.H., 2022. Analysis on Diversity and Structure of Microbial Community in River Sediment of Siping Section of Liaohe River. *Environmental Science*, 43(05):2586-2594(in Chinese with English abstract).
- 李海波,马吉福,王鑫,等, 2016. 水力负荷对污水地下渗滤系统处理效果的影响. 环境工程学报, 10(2):544-550.
- Li, H.B., Ma, J.F., Wang, X., et al., 2016. Effect of Hydraulic Loading Rate on Sewage Treatment Efficiency of Subsurface Wastewater Infiltration System. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 10(2): 544-550(in Chinese with English abstract).
- 柳林妹,陈海洋,朱冠华,等. 2024. 人工湿地去除抗生素抗性基因. 地球科学, 49(09):3440-3444.

- Liu, L.M., Chen, H.Y., Zhu, G.H., et al., 2024. Constructed Wetlands for the Removal of Antibiotic Resistance Genes. *Earth Science*, 49(9):3440-3444(in Chinese with English abstract).
- 彭闯,干牧凡,车景璐,等. 2024. 河流潜流带水交换作用对氮迁移转化过程的影响. *生态学报*, 44(23):10794-10806.
- Peng, C., Gan, M.F., Che, J.L., et al., 2024. Study on the Inhence of Water Exchange in River Hyporheic One on Nitrogen Migration and Transformation process. *Acta Ecologica Sinica*, 44(23):10794-10806(in Chinese with English abstract).
- 平雪,鲜阳,靳孟贵. 2018. 河床起伏条件下生物堵塞对潜流带氮素迁移转化的影响. *地球科学*, 43(S1):171-180.
- Ping, X., Xian, Y., Jin, M.G., 2018. Influence of Bioclogging on Nitrogen Cycling in a Hyporheic Zone with an Undulate River-Bed. *Earth Science*, 43(S1):171-180(in Chinese with English abstract).
- 吴迎,冯朋雅,李荣,等. 2019.环境抗生素污染的微生物修复进展. *生物工程学报*, 35(11):2133-2150.
- Wu, Y., Feng, P.Y., Li, R., et al., 2019. Progress in Microbial Remediation of Antibiotic-residue Contaminated Environment. *Chinese Journal of Biotechnology*, 35(11): 2133-2150(in Chinese with English abstract).
- 周爱霞.2015.潜水中磺胺抗生素迁移转化机理及修复技术研究.吉林: 吉林大学.
- Zhou, A.X., 2015. Research on the Migration and Transformation Mechanism and remediation technique of sulfa antibiotics in phreatic water, *Jilin University, Jilin* (in Chinese with English abstract).
- 朱子超,刘慧,毛胜军,等,2021. 河水-地下水侧向交互带微生物群落分布特征及其主控因子. *地球科学*, 217:1-15.
- Zhu, Z.C., Liu, H., Mao, S.J., et al., 2021. Distribution Characteristics of Microbial Communities in the River-Groundwater Interaction Zone and the Main Environmental Factors. *Earth Science*, 217:1-15(in Chinese with English abstract).