

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第5期

Vol.34 No.5

2013

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

基于过氧化物的消毒技术研究进展	习海玲, 赵三平, 周文 (1645)
环境损害评估: 国际制度及对中国的启示	张红振, 曹东, 於方, 王金南, 齐霖, 贾倩, 张天柱, 骆永明 (1653)
不同国家基于健康风险的土壤环境基准比较研究与启示	徐猛, 颜增光, 贺萌萌, 张超艳, 侯红, 李发生 (1667)
蚯蚓堆肥及蝇蛆生物转化技术在有机废弃物处理应用中的研究进展	张志剑, 刘萌, 朱军 (1679)
基于生态分区的我国湖泊营养盐控制目标研究	刁晓君, 席北斗, 何连生, 邓祥征, 吴锋, 王鹏腾 (1687)
我国东北地区地表水酸化现状	徐光仪, 康荣华, 罗遥, 段雷 (1695)
西安市对渭河水质的影响分析	于婕, 李怀恩 (1700)
极端干旱水文年(2011年)夏季珠江口溶解氧的分布特征及影响因素研究	叶丰, 黄小平, 施震, 刘庆霞 (1707)
应用相平衡分配法建立湘江衡阳段沉积物重金属质量基准	韩超南, 秦延文, 郑丙辉, 张雷, 曹伟 (1715)
长江口海域底栖生态环境质量评价——AMBI和M-AMBI法	蔡文倩, 孟伟, 刘录三, 朱延忠, 周娟 (1725)
温州城市降雨径流中BOD ₅ 和COD污染特征及其初始冲刷效应	王骏, 毕春娟, 陈振楼, 周栋 (1735)
影响悬浮颗粒物吸收系数测量的相关因素研究	余小龙, 沈芳, 张晋芳 (1745)
香溪河库湾春季pCO ₂ 与浮游植物生物量的关系	袁希功, 黄文敏, 毕永红, 胡征宇, 赵玮, 朱孔贤 (1754)
紊流脉动强度对藻类生长及水环境的影响研究	雷雨, 龙天渝, 伞磊, 安强, 朱芳 (1761)
高铁酸钾对水中藻类及其次生臭味污染物二甲基三硫醚同步去除研究	马晓雁, 张泽华, 王红宇, 胡仕斐, 李青松 (1767)
纳米Fe ₃ O ₄ -H ₂ O ₂ 非均相Fenton反应催化氧化邻苯二酚	何洁, 杨晓芳, 张伟军, 王东升 (1773)
水中茶普生的紫外光降解机制及其产物毒性研究	马杜娟, 刘国光, 吕文英, 姚锐, 周丽华, 谢成屏 (1782)
酸活化赤泥催化臭氧氧化降解水中硝基苯的效能研究	康雅凝, 李华楠, 徐冰冰, 齐飞, 赵伦 (1790)
镉污染应急处置含镉絮体稳定性实验研究	柳王荣, 魏清伟, 杨仁斌, 许振成, 曾东 (1797)
基于光学在线监测及形态学研究的絮凝体强度分析方法	金鹏康, 冯永宁, 王宝宝, 王晓昌 (1802)
不同电子供体下三氯苯酚的还原脱氯机制研究	万金泉, 胡梦蝶, 马邕文, 黄明智 (1808)
壳聚糖季铵盐磁性颗粒的制备及其对甲基橙的吸附效果	张聪璐, 胡筱敏, 英诗颖, 王芳 (1815)
城市污水二级出水超滤膜污染与膜特性的研究	孟晓荣, 张海珍, 王磊, 王旭东, 赵亮 (1822)
倒置A ² /O-MBR处理城市污水的中试研究	张健君, 邹高龙, 杨淑芳, 丁星, 王莉, 毛乾庄, 杨丹 (1828)
不同电子供体的硫自养反硝化脱氮实验研究	袁莹, 周伟丽, 王晖, 何圣兵 (1835)
短程同步硝化反硝化过程的脱氮与N ₂ O释放特性	梁小玲, 李平, 吴锦华, 王向德 (1845)
基于固相萃取的水中多种有毒有害有机污染物富集方法优化	张明全, 李锋民, 吴乾元, 胡洪营 (1851)
多环麝香污染胁迫对蚯蚓特异性蛋白基因表达的影响	陈春, 刘潇威, 郑顺安, 周启星, 李松 (1857)
浙江省制药行业典型挥发性有机物臭氧产生潜力分析及健康风险评价	徐志荣, 王浙明, 许明珠, 何华飞 (1864)
苯系物光催化开环降解产物低级醛类的健康效应	赵伟荣, 廖求文, 杨亚楠, 戴九松 (1871)
四川妇女血清中多溴联苯醚的浓度水平与组成特征	邵敏, 陈永亨, 李晓宇 (1877)
咪唑类离子液体毒性的QSAR/QSPR研究	赵继红, 赵永升, 张宏忠, 张香平 (1882)
宁夏石嘴山河滨工业园区表层土壤重金属污染的时空特征	樊新刚, 米文宝, 马振宁, 王婷玉 (1887)
内蒙古包头白云鄂博矿区及尾矿区周围土壤稀土污染现状和分布特征	郭伟, 付瑞英, 赵仁鑫, 赵文静, 郭江源, 张君 (1895)
福建省重点城市路面尘负荷及化学组成研究	郑桢, 杨冰玉, 吴水平, 王新红, 陈晓秋 (1901)
重金属污染场地电阻率法探测数值模拟及应用研究	王玉玲, 能昌信, 王彦文, 董路 (1908)
丛枝菌根真菌对稀土尾矿中大豆生长和稀土元素吸收的影响	郭伟, 赵仁鑫, 赵文静, 付瑞英, 郭江源, 张君 (1915)
海洋细菌N3对几种赤潮藻的溶藻效应	史荣君, 黄洪辉, 齐占会, 胡维安, 田梓杨, 戴明 (1922)
1株分离自煤矿废水的铁硫氧化细菌LY01的鉴定及其氧化特性研究	刘玉娇, 杨新萍, 王世梅, 梁银 (1930)
1株苯并[a]芘高效降解菌的筛选与降解特性	蔡瀚, 尹华, 叶锦韶, 常晶晶, 彭辉, 张娜, 何宝燕 (1937)
2,2',4,4'-四溴联苯醚的好氧微生物降解	张姝, Giulio Franco, 李晓豹, 卢晓霞, 侯珍, 杨君君 (1945)
养猪废水培养微生物絮凝剂产生菌群B-737及发酵特性	裴瑞林, 信欣, 张雪乔, 周迎芹, 姚力, 羊依金 (1951)
1997~2011年北京市空气中酸性物质与降水组分变化趋势的相关性分析	陈圆圆, 田贺忠, 杨懂艳, 邹本东, 鹿海峰, 林安国 (1958)
黄山降水酸度及电导率特征分析	石春娥, 邓学良, 吴必文, 洪杰, 张苏, 杨元建 (1964)
夏季黄山不同高度大气气溶胶水溶性离子特征分析	文彬, 银燕, 秦彦硕, 陈魁 (1973)
广州秋季灰霾污染过程大气颗粒物有机酸的污染特征	谭吉华, 赵金平, 段菁春, 马永亮, 贺克斌, 杨复沫 (1982)
福建省三大城市冬季PM _{2.5} 中有机碳和元素碳的污染特征	陈衍婷, 陈进生, 胡恭任, 徐玲玲, 尹丽倩, 张福旺 (1988)
上海市含碳大气颗粒物的粒径分布	袁宁, 刘卫, 赵修良, 王广华, 姚剑, 曾友石, 刘遂庆 (1995)
上海市浦东城区二次气溶胶生成的估算	崔虎雄, 吴迺名, 段玉森, 伏晴艳, 张懿华, 王东方, 王茜 (2003)
沙尘暴期间上海市大气颗粒物元素地球化学特征及其物源示踪意义	钱鹏, 郑祥民, 周立旻 (2010)
厦门秋季近郊地面CO ₂ 浓度变化特征研究	李燕丽, 穆超, 邓君俊, 赵淑惠, 杜可 (2018)
GC-MS和GC-ECD同时在线观测本底大气中的HCFC-142b	郭立峰, 姚波, 周凌晔, 李培昌, 许林 (2025)
城市居家环境空气真菌群落结构特征研究	方治国, 欧阳志云, 刘芃, 孙力, 王小勇 (2031)
城市污水处理厂挥发性芳香烃的气味指纹及定量评价研究	郭薇, 王伯光, 唐小东, 刘舒乐, 何洁, 张春林 (2038)
内河多点分散码头大气污染叠加影响特征	刘建昌, 李兴华, 徐洪磊, 程金香, 王忠岱, 肖杨 (2044)
义马煤中铅的热稳定性及转化行为研究	刘瑞卿, 王钧伟 (2051)
基于能源消费情景模拟的北京市主要大气污染物和温室气体协同减排研究	谢元博, 李巍 (2057)
《环境科学》征订启事(1652) 《环境科学》征稿简则(1789) 信息(1807, 1821, 1881, 1987) 专辑征稿通知(1863)	

不同电子供体的硫自养反硝化脱氮实验研究

袁莹,周伟丽*,王晖,何圣兵

(上海交通大学环境科学与工程学院,上海 200240)

摘要: 采用硫自养反硝化处理模拟低浓度硝酸盐污染水. 分别以单质硫、 Na_2S 和 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 作为电子供体在3个反应器中连续运行进行脱氮实验,以考察不同电子供体条件下的脱氮效果. 结果表明,在进水 NO_3^- -N浓度为 $13\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的条件下,以 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 为电子供体脱氮效果最好, Na_2S 系统最差; $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统对低温的适应能力最强. 20°C 以上时,单质硫系统脱氮效率受传质效率和HRT的影响较大,HRT $\geq 2\text{ h}$ 时,系统对 NO_3^- -N和TN的平均去除率较高,分别为81%和79%,而HRT $< 2\text{ h}$ 时, NO_3^- -N和TN去除率分别降为47%和51%,出水 NO_2^- -N无明显积累,平均为 $0.53\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; Na_2S 系统HRT保持在4h时, NO_3^- -N和TN的平均去除率分别为47%和41%,出水 NO_2^- -N平均质量浓度为 $0.29\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$;而 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统的 NO_3^- -N和TN平均去除率分别为99%和90%,出水 NO_2^- -N平均质量浓度为 $0.080\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,且最短HRT可缩短至0.5h. 分子生物学分析表明,3个系统中存在不同的优势硫自养反硝化菌,单质硫系统中存在脱氮硫杆菌,而 Na_2S 和 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统中得到的反硝化菌基因片段在基因库中尚未找到相似性高的菌种,可能是尚未登记的硫自养反硝化菌新菌种.

关键词: 硫自养反硝化; 电子供体; 硝酸盐; 系统发育树; 脱氮硫杆菌

中图分类号: X703 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)05-1835-10

Study on Sulfur-based Autotrophic Denitrification with Different Electron Donors

YUAN Ying, ZHOU Wei-li, WANG Hui, HE Sheng-bing

(School of Environmental Science and Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: Sulphur-based autotrophic denitrification was applied to treat the low concentration nitrate-contaminated water. Different electron donors, namely, elemental sulfur, sulfide and thiosulfate, were used in three continuous reactors to compare the denitrification performance. When treating the low concentration nitrate-contaminated water ($13\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$), the thiosulfate system showed the best performance and the sulfide system was the worst. The thiosulfate system was less sensitive to low temperature than the other two. At temperatures higher than 20°C , the sulfur system was greatly influenced by mass transfer efficiency and HRT. It removed 81% of nitrate and 79% of TN when HRT was no less than 2 h, but could only achieve a low nitrate and TN removal rate of 47% and 51% when HRT was shorter than 2 h. No obvious nitrite accumulation was observed and the average effluent nitrite was $0.53\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. The sulfide system could only remove 47% of nitrate and 41% of TN with $0.29\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ nitrite in the effluent at the HRT of 4 h. Meanwhile, the thiosulfate system had a high removal rate of 99% for nitrate and 90% for TN, with a low content of effluent nitrite of $0.080\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, and the HRT could be shortened to 0.5 h. The molecular biological analysis showed that different bacteria predominated in the three reactors, and that *Thiobacillus denitrificans* existed abundantly in the sulfur system, while the functional bacteria in the sulfide and thiosulfate systems could not be identified yet. A new species of sulfur-based autotrophic denitrification bacterium may have been found.

Key words: sulfur-based autotrophic denitrification; electron donor; nitrate; phylogenetic tree; *Thiobacillus denitrificans*

在处理河流、湖泊、景观水等低碳高氮水时, 自养反硝化技术因其不需外加碳源从而避免了二次污染、产泥量少从而降低了运行费用等特点而更有优势^[1~7]. 利用还原态硫作为电子供体的硫自养反硝化研究一直都是自养反硝化脱氮研究的热点^[8]. S^{2-} 、 S^0 和 $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ 作为电子供体脱氮常见于各种研究中. 如姜巍^[9]等利用硫/石灰石的生物膜反应器处理硝酸氮废水, 结果表明基于电子供体硫的自养反硝化对水中的硝酸盐氮有很好的去除效果, 停留时间超过3h, 去除率可达80%以上. Sierra-Alvarez等^[10]采用硫/石灰石自养反硝化工艺去除地下水中

硝酸氮, 进水 NO_3^- -N为 $1.3\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 时, 最高进水负荷可达 $18.1\text{ mmol}\cdot(\text{L}\cdot\text{d})^{-1}$, NO_3^- -N平均去除率95.9%, 且出水无 NO_2^- -N和 S^{2-} 的积累. De Lomas等^[11]在污水处理厂的总进水口投加含高浓度硝酸盐的NutrioxTM稀释液, 使得空气中的 H_2S 气体和水体中的硫化物分别减少了98.7%和94.7%, 采用分

收稿日期: 2012-08-01; 修订日期: 2012-09-27

基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2008ZX07106-2-2); 教育部新世纪优秀人才支持计划项目(NCET-11-0320)

作者简介: 袁莹(1988~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为生物脱氮, E-mail: helloyy2006@126.com

* 通讯联系人, E-mail: weilizhou@sjtu.edu.cn

子生物学手段检测到 1 株同时具有硝酸盐还原和硫化物氧化功能的自养反硝化细菌 *T. denitrificans*. 李巍等^[12]实现了脱硫反硝化氮、硫、碳的同步去除,硫化物的去除率达到 99%,缺氧反应器中自养反硝化占主导地位. 王晖等^[13]采用 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 作为电子供体结合活性炭处理硝酸盐废水,在 $0.96 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 的负荷下仍能维持 90% 以上的 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 去除率,且无 $\text{NO}_2^- - \text{N}$ 的积累.

目前对于硫自养反硝化的研究较多,但关于各种电子供体的脱氮能力及效果的横向比较的报道很少. 综合比较 3 种电子供体的优缺点,可以看到,采用单质硫,可将硫磺与提供碱度的石灰石^[14]载体材料混合填充于反应器中或固定于自然水体中,运行管理较方便,但易造成出水硬度增加且碱量消耗较大^[15,16],单质硫的溶解度和表面积也造成一定的传质阻碍^[17];采用硫化物的优点是较易溶,而且溶解后水解产生碱度可供自养反硝化消耗,因而不必外加碱,但硫化物碱性较强,易对系统的酸碱性环境造成冲击,而且硫化物不稳定易被氧化;硫代硫酸盐为电子供体同样具有溶解度高、传质好的优点^[18],而且对系统的 pH 影响不大. 但采用硫化钠和硫代硫酸钠为电子供体时,需增加融药、加药设备,对运行管理要求相对高. 为了进一步讨论和比较在相同或相似条件下用 3 种电子供体进行自养反硝化的实用性、稳定性和脱氮效果,本研究选用单质硫、硫化钠和硫代硫酸钠作为电子供体,分别进行脱氮实验,同时考察各个系统的脱氮效果及运行稳定性,并进一步在分子生物学方面对各个系统的驯化过程及功能菌的种类作初步探讨.

1 材料与方法

1.1 实验装置

连续实验装置采用 3 个相同的升流式厌氧污泥床反应器,有机玻璃柱的内径为 88 mm,高 500 mm,有效容积 3.2 L. 反应装置由原水水箱、蠕动泵、污泥床层、三项分离器、集气装置 5 个部分组成(如图 1). 以不同的还原态硫为电子供体运行的 3 个反应器,简称为单质硫系统、 Na_2S 系统、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统. 单质硫系统加入单质硫和石灰石的混合载体共 2.5 L,载体的粒径范围是 5 ~ 15 mm,硫和石灰石的体积比为 1:1.5,其中已经驯化的载体约占载体总量的三分之一; Na_2S 系统加入颗粒活性炭 200 g 和 2.0 L 絮状污泥,其中颗粒活性炭的粒径为 1 ~ 2 mm; $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统加入轻质陶粒 2.0 L 和 2.0 L 絮

状污泥,其中轻质陶粒大粒径(4 ~ 5 mm)1.4 L、小粒径(<4 mm)0.6 L. 接种污泥为上海市闵行污水处理厂剩余污泥,经长时间的密闭放置成为厌氧污泥、用筛网过滤除去块状垃圾后作为种泥使用.

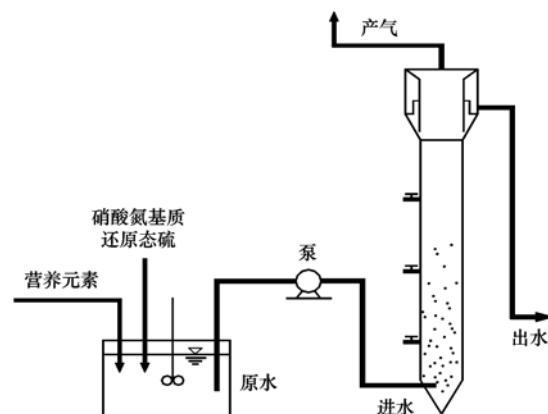


图 1 实验装置示意

Fig. 1 Experimental set-up

1.2 实验材料

进水为模拟硝酸盐废水,在自来水中添加各种试剂配制而成. 单质硫系统以载体中的硫为电子供体,石灰石为系统提供碱度; Na_2S 系统和 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统分别加入 $\text{Na}_2\text{S} \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 和 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 为电子供体, NaHCO_3 为系统提供碱度. S: N (摩尔比) = 1:1 (略高于理论值的 0.84:1),投加 $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 和 KH_2PO_4 提供微生物生长所需微量营养元素. 模拟配水如表 1 所示.

表 1 模拟配水组成¹⁾

Table 1 Composition of synthetic wastewater

成分	添加量/ $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$
NaNO_3	60.7
$\text{Na}_2\text{S} \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (Na_2S 系统)	171.6
$\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统)	177.1
NaHCO_3 (Na_2S 、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统)	66.9
KH_2PO_4	3.3
$\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	6.0

1) $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 浓度为 $10 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$

1.3 实验方法

3 个反应器均在自然室内温度(10 ~ 30℃)条件下连续运行,进水 pH 值为 6.0 ~ 7.0,通过改变系统的水力停留时间(HRT)考察对比低浓度条件下 3 个反应器的脱氮效率.

1.4 分析项目与测定方法

本实验中水质指标分析项目及测定方法主要为 $\text{NO}_3^- - \text{N}$: 酚二磺酸光度法; $\text{NO}_2^- - \text{N}$: N-(1-萘基)-乙二胺光度法; TN: 碱性过硫酸钾消解紫外分光光度

法; SO_4^{2-} : 铬酸钼分光光度法, 均按文献[19]的方法进行, pH 为每日实测。

1.5 分子生物学分析材料与方法

根据连续实验运行条件的变化确定采样时间, 取部分反应器中的污泥收集于无菌离心管中, 置于 -80°C 冰箱中保存或直接进行基因组 DNA 抽提^[20,21]。实验中对各阶段各个反应器的污泥样品采用试剂盒提取 DNA, 得到 DNA 模板。聚合酶链式反应(PCR)扩增采用通用引物 27F/927R^[22] 以及针对亚硝酸盐还原酶基因 *nirS* 和 *nirK* 的特异性引物对^[23], 进行基因扩增。然后取条带清晰的 PCR 扩增产物在浓度为 8%、变性剂浓度梯度为 20% ~ 60% 的聚丙烯酰胺胶内进行变性梯度凝胶电泳

(DGGE)^[24], 之后回收特征条带 DNA、PCR 扩增、纯化、测序, 测序结果在 NCBI 基因库中进行比对, 搜索碱基序列相似性较高的菌种, 做出系统发育树。

2 结果与讨论

3 个反应器均连续进水, 配水中 NO_3^- -N 质量浓度为 $10 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 当地自来水中 NO_3^- -N 质量浓度约为 $3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 故进水 NO_3^- -N 实际为 $13 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。分别选取温度在 $10 \sim 20^\circ\text{C}$ 之间和 20°C 以上的运行数据进行分析, 考察脱氮效果。

2.1 对 NO_3^- -N 的去除

图 2~4 所示为采用不同电子供体的各个系统对 NO_3^- -N 的去除情况。

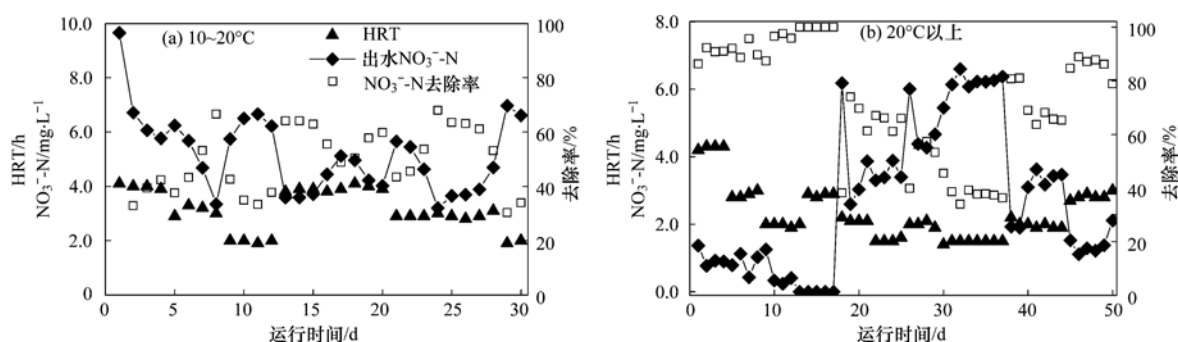


图 2 单质硫系统对 NO_3^- -N 的去除情况

Fig. 2 Removal of NO_3^- -N in the elemental sulfur system

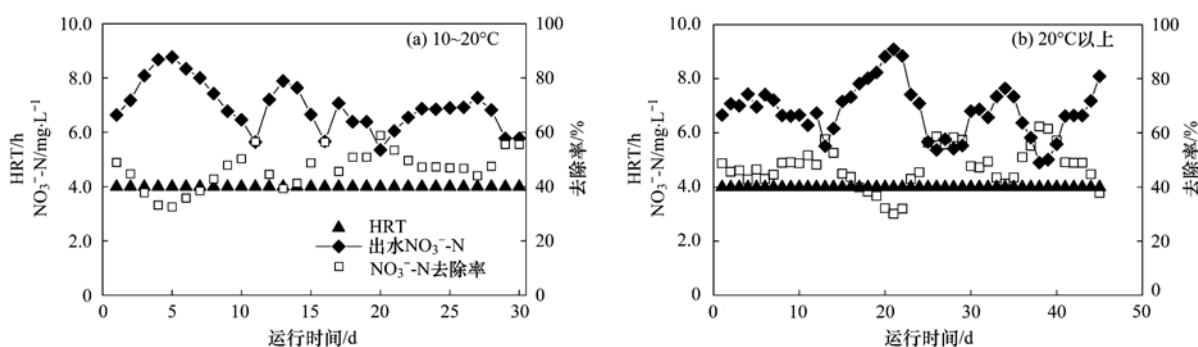
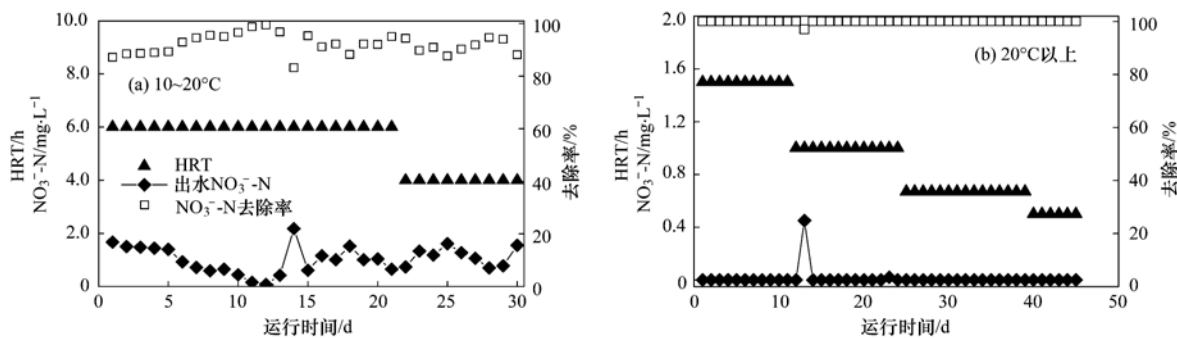


图 3 Na_2S 系统对 NO_3^- -N 去除情况

Fig. 3 Removal of NO_3^- -N in the sulfide system

单质硫系统的 NO_3^- -N 去除情况见图 2。在 $10 \sim 20^\circ\text{C}$ 时, HRT 在 $2 \sim 4 \text{ h}$ 变化, 出水 NO_3^- -N 含量较高且不稳定, 平均为 $5.2 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, NO_3^- -N 去除率不稳定, 平均为 50%。在 20°C 以上时, HRT 由 4 h 降至 2 h , 可以看到系统没有受到影响且出水 NO_3^- -N 含量逐渐降低, NO_3^- -N 去除率维持在 90% 以上的较高水平。此阶段出水 NO_3^- -N 平均含量和去除率分别为 $0.60 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 94%。随后 HRT 由 3 h 降至 1.5 h ,

NO_3^- -N 去除率明显下降, 降至 40% 左右。 NO_3^- -N 平均含量和去除率分别为 $4.9 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 51%。由于此时反应器已经运行半年多, 硫颗粒表面积累了厚厚的污泥, 阻碍了传质, 故在运行到 38 d 时, 将反应器中的污泥取出一部分, 并将剩余的污泥和硫粒搅拌。同时, 将 HRT 由 1.5 h 逐渐提高至 3 h , NO_3^- -N 去除率恢复至较高值, 最终达到接近 90% 的水平, 但低于运行初始相同 HRT 条件下的去除率, 这段时间,

图4 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统对 NO_3^- -N去除情况Fig. 4 Removal of NO_3^- -N in the thiosulfate system

出水 NO_3^- -N平均含量和去除率分别为 $2.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 77%。

总的来说,20℃以上、HRT 在 2 h 以上时,单质硫系统可以保持较好的 NO_3^- -N 去除率,平均为 81%; HRT < 2 h 时, NO_3^- -N 平均去除率为 47%。去除率的主要影响因素是传质效率和 HRT。

Na_2S 系统的 HRT 保持在 4 h。由图 3 可以看出,温度在 10 ~ 20℃ 时,出水 NO_3^- -N 含量一直较高且不稳定,平均为 $6.9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, NO_3^- -N 去除率较低,平均为 46%。温度在 20℃ 以上时,出水 NO_3^- -N 含量仍然较高,平均为 $6.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, NO_3^- -N 去除率较低,平均为 47%。 Na_2S 系统的 NO_3^- -N 去除效果均较差。温度升高对脱氮效果无明显改善。

$\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统的 NO_3^- -N 去除情况见图 4。在 10℃ ~ 20℃ 时,HRT 由 6 h 降至 4 h,出水 NO_3^- -N 含量较低,平均为 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, NO_3^- -N 平均去除率为 92%。温度升至 20℃ 以上时,HRT 由 1.5 h 逐渐降至 0.5 h,出水 NO_3^- -N 含量一直保持较低水平,去除率接近 100%。说明温度对 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统也有一定的影响,但该系统对温度和 HRT 变化所带来的冲击的抵抗能力较强。而且,从去除率和水力停留时间两项指标来比较,3 个系统中 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统脱氮效率

最高。

2.2 出水 NO_2^- -N 的积累及 SO_4^{2-} 的含量

脱氮过程中会产生 NO_2^- -N,由于其毒害作用比硝酸盐更强,所以出水 NO_2^- -N 的浓度也是一个重要的考察指标。图 5 ~ 7 反映的是各个系统出水中 NO_2^- -N 的积累情况。

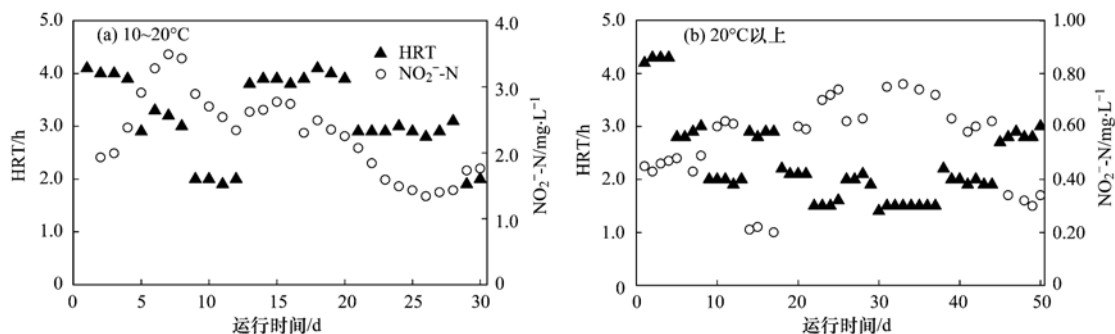
10 ~ 20℃ 时,单质硫系统出水的 NO_2^- -N 比较高 [图 3(a)],在 $1.0 \sim 3.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 之间波动,但温度升高至 20℃ 以上时, NO_2^- -N 含量降低至 $0.2 \sim 0.8 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

对于 Na_2S 系统(图 6),10 ~ 20℃ 时,出水中 NO_2^- -N 平均含量为 $1.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。20℃ 以上时,出水中 NO_2^- -N 含量较低,平均为 $0.29 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

相比之下, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统(图 7)在 10 ~ 20℃ 时,出水中 NO_2^- -N 平均含量为 $0.39 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。而在 20℃ 以上时,出水中 NO_2^- -N 平均含量仅为 $0.080 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,最高为 $0.60 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

综合比较,HRT 缩短和温度降低都会造成各个反应器的 NO_2^- -N 积累现象加重。但 3 个系统仍以 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统最为安全,出水 NO_2^- -N 最低。

图 8 ~ 10 所示为 20℃ 以上时各个系统出水中的 SO_4^{2-} 含量。单质硫、 Na_2S 、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统出水中

图5 单质硫系统中 NO_2^- -N 积累情况Fig. 5 Variation of NO_2^- -N in the elemental sulfur system

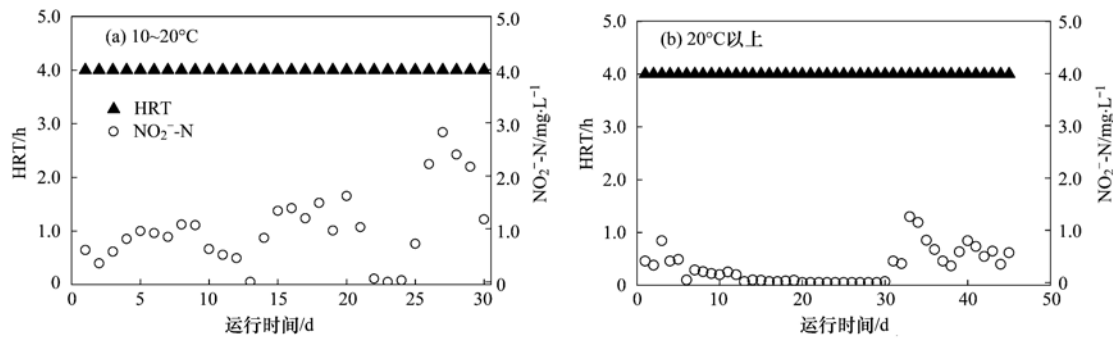


图 6 Na_2S 系统中 NO_2^- -N积累情况

Fig. 6 Variation of NO_2^- -N in the sulfide system

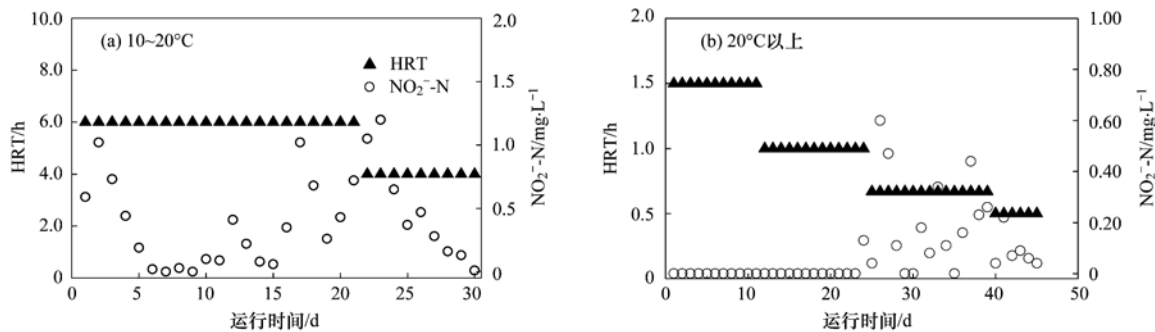


图 7 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统中 NO_2^- -N积累情况

Fig. 7 Variation of NO_2^- -N in the thiosulfate system

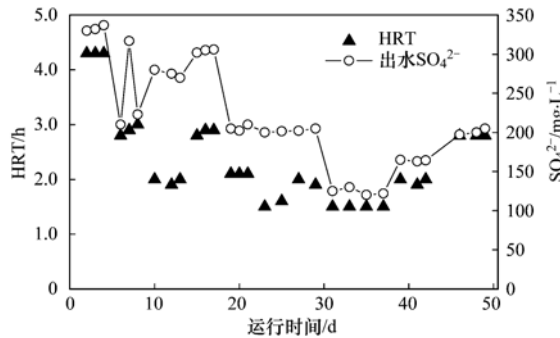


图 8 单质硫系统出水中 SO_4^{2-} 含量

Fig. 8 Concentration of effluent SO_4^{2-} in the elemental sulfur system

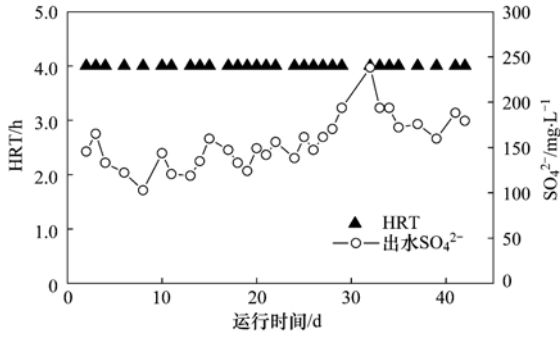


图 9 Na_2S 系统出水中 SO_4^{2-} 含量

Fig. 9 Concentration of effluent SO_4^{2-} in the sulfide system

SO_4^{2-} 平均含量分别为 224、156 和 174 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

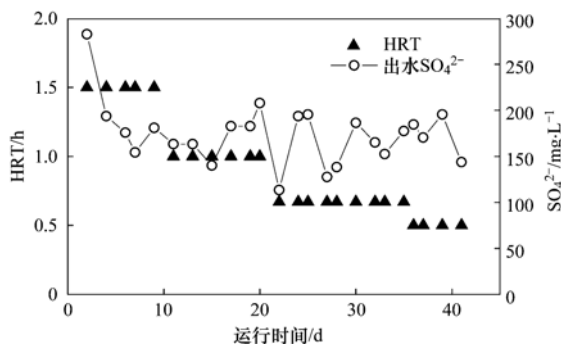
可见,单质硫系统出水硫酸盐最高,这可能是由于该系统的电子供体为预先填充,相对于水中氮的含量硫总是过量的,而微溶的单质硫在有氧环境中会发生连续氧化。另外两个系统的电子供体可根据进水浓度进行调节和控制,产生的硫酸盐较少,电子供体的浪费也相对较低。对于低浓度含氮废水,3 个系统出水中 SO_4^{2-} 含量对水质影响不大,均可达饮用水要求的 250 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ [25]。

2.3 TN 的去除

由于 NO_3^- -N的脱除需要经过由 NO_3^- 转化为

NO_2^- 再转化为 N_2 的两步过程,所以系统的脱氮效果必须考虑 TN 的去除情况。图 11 ~ 13 为各个系统对 TN 的去除情况。

单质硫系统的 TN 去除率随着 HRT 的增减而增减(图 11)。10 ~ 20℃时,HRT 在 2 ~ 4 h 变化,出水 TN 含量最高为 9.7 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$,TN 平均去除率为 40%。当温度在 20℃以上时,TN 去除率较高,运行初始阶段平均为 88%,出水 TN 平均含量为 1.5 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$;随后,HRT 由 3 h 逐渐降至 1.5 h,TN 去除率逐渐降低,平均为 55%;之后,取出部分污泥并搅拌后,TN 平均去除率上升至 75%。总的来说,20℃

图 10 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统出水中 SO_4^{2-} 含量Fig. 10 Concentration of effluent SO_4^{2-} in the thiosulfate system

以上、 $\text{HRT} \geq 2$ h 时,单质硫系统 TN 平均去除率为 79%; 而 $\text{HRT} < 2$ h 时,仅为 51%。

Na_2S 系统的 TN 去除情况见图 12, HRT 保持在 4 h. 10 ~ 20℃ 时,出水 TN 一直较高且波动较大, TN 去除率较低,平均为 36%; 20℃ 以上时, TN 去除率仍然较低,平均为 41%。

$\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统出水 TN 总体较低,如图 13,但是受 HRT 的影响,每一次降低 HRT 都会导致出水 TN

含量有短时间的上升,之后随着运行时间的延长逐渐降低. 10 ~ 20℃ 时,出水 TN 平均含量为 $2.6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, TN 平均去除率为 80%; 20℃ 以上时,出水 TN 平均含量为 $1.3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, TN 平均去除率为 90%。

综合以上各项指标,3 个系统采用不同电子供体处理低浓度硝酸盐废水,在 10 ~ 20℃ 和 20℃ 以上的两个温度阶段,各自的运行效果如表 2 所示. 在 10 ~ 20℃ 时,单质硫系统和 Na_2S 系统的脱氮效果都不理想, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统脱氮效果较好, NO_3^- -N 和 TN 的平均去除率可达 92% 和 80%, 出水 NO_2^- -N 平均含量为 $0.39 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 温度的升高对单质硫系统和 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统的运行效果都有促进. 但单质硫系统受传质效率和 HRT 的影响比较明显,由于污泥增长和覆盖对传质效率的影响,系统不能持续保持高效运行,必须辅以污泥去除和载体搅拌措施. $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统对 NO_3^- -N 和 TN 的去除率较高,分别达到 99% 和 90%, 出水中 NO_2^- -N 含量接近检测限,平均为 $0.080 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 并且 HRT 可以降至 0.5 h 的低值。

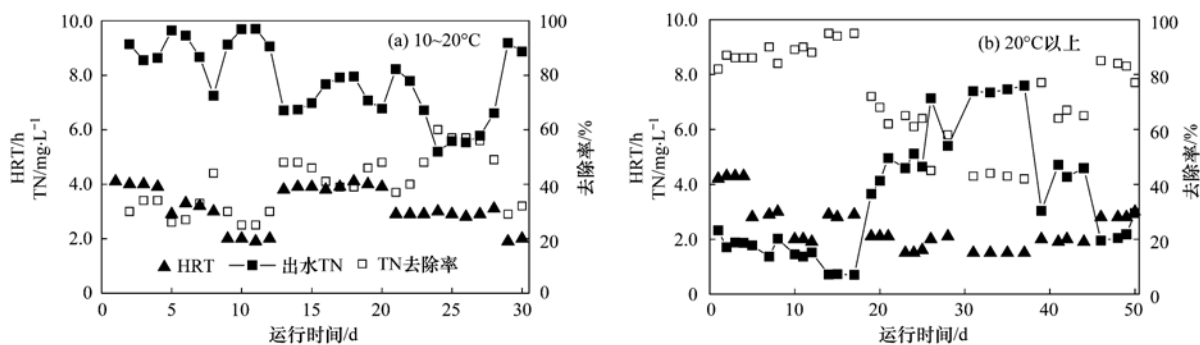


图 11 单质硫系统对 TN 去除情况

Fig. 11 Removal of TN in the elemental sulfur system

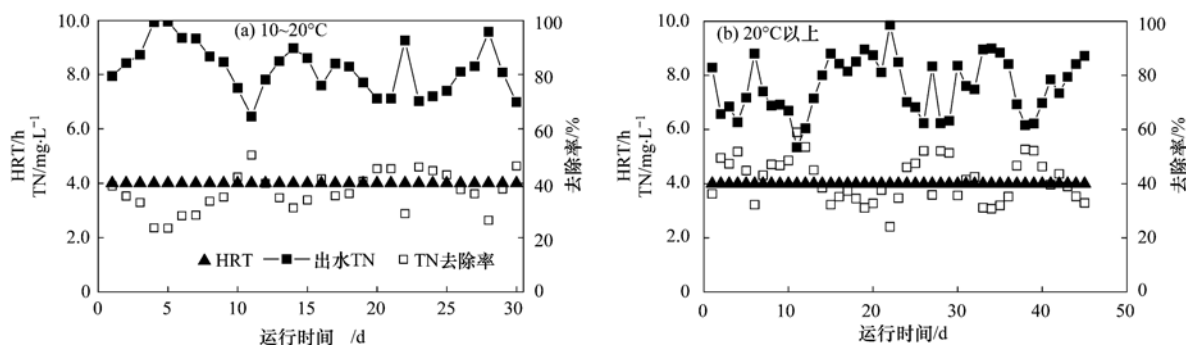
图 12 Na_2S 系统对 TN 去除情况

Fig. 12 Removal of TN in the sulfide system

从 3 个系统的脱氮效果(图 2 ~ 13 及表 2)可以看出, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统的脱氮效果最好且可达到较低

的 HRT , 更适用于工程实际; 单质硫系统次之, 但是 HRT 需维持在不低于 2 h, 且需要解决因污泥增长

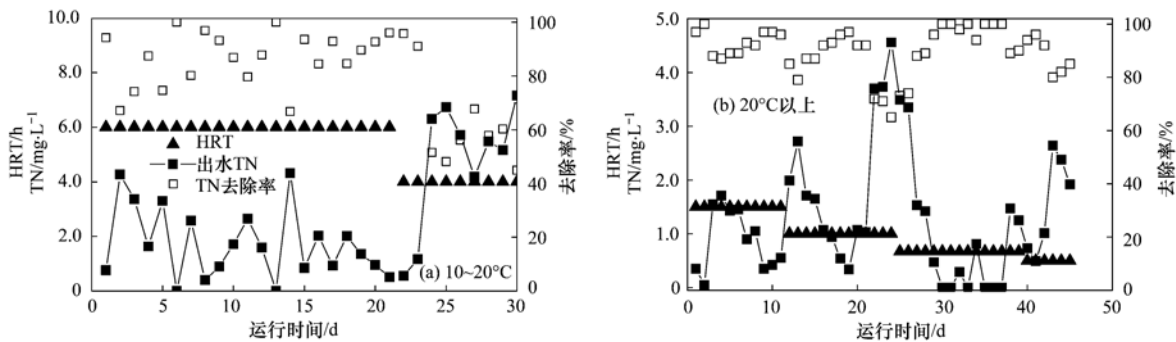


图 13 Na₂S₂O₃ 系统对 TN 去除情况

Fig. 13 Removal of TN in the thiosulfate system

而导致的传质效率变低和保温的问题; Na₂S 系统在 HRT 为 4 h 时,无论在 10 ~ 20℃ 还是 20℃ 以上,处理效果均较差.

传统生物脱氮工艺中,异养反硝化占据重要地位. 高建文等^[26]采用生物滤池/生态砾石床组合工艺对微污染地表水进行异养反硝化脱氮研究,结果显示水温大于 20℃、进水浓度为 2 ~ 3 mg·L⁻¹时,生物滤池 HRT 最短为 15 min,对 NO₃⁻-N 的去除率可达 90% 以上,容积负荷为

0.145 9 kg·(m³·d)⁻¹,氮去除速率为 7.8 mg·(L·h)⁻¹,处理运行费用约为 0.10 元·t⁻¹. 相比之下,Na₂S₂O₃ 自养反硝化系统最短 HRT 为 30 min,NO₃⁻-N 的去除率约为 99%,容积负荷为 0.479 5 kg·(m³·d)⁻¹,氮去除速率为 25.9 mg·(L·h)⁻¹,处理运行费用约为 0.18 元·t⁻¹. 由于 HRT 的限制,自养系统相比异养系统容积大,处理费用也较高,但脱氮能力和脱氮效率更高,而且不必考虑出水有机物的问题.

表 2 3 个反应器运行效果对比

Table 2 Comparison of the treatment efficiency of the autotrophic denitrification reactors with different electron donors

项目	10 ~ 20℃			20℃ 以上		
	S	Na ₂ S	Na ₂ S ₂ O ₃	S	Na ₂ S	Na ₂ S ₂ O ₃
NO ₃ ⁻ -N 平均去除率 /%	50	46	92	73	47	99
TN 平均去除率 /%	40	36	80	72	41	90
出水 NO ₃ ⁻ -N /mg·L ⁻¹	5.2	6.9	1.0	2.7	6.8	0.010
出水 TN /mg·L ⁻¹	9.7	8.2	2.6	3.5	7.6	1.3
出水 NO ₂ ⁻ -N /mg·L ⁻¹	2.2	1.0	0.39	0.53	0.29	0.080
最短 HRT/h	—	4	4	2	4	0.5

2.4 微生物群落的分析与比较

为了考察采用不同电子供体的 3 个系统中自养反硝化微生物的生长情况,从反应器内取污泥样品进行微生物的基因组 DNA 抽提,采用 PCR-DGGE 技术,分析各个系统内自养反硝化菌群落的变化情况,并根据最后测序结果做出系统发育树,分析比较反应器内优势菌群及其种群关系.

污泥样品采集信息如表 3 所示,1 ~ 5 号为 Na₂S₂O₃ 系统连续实验不同时期采集的污泥样,6 ~ 7 号污泥样从 Na₂S 系统中采得,8 号为单质硫系统中采集的污泥样品,8-2 号是 8 号的平行样.

试剂盒法提取样品 DNA 后,利用通用引物 27F/927R 对扩增污泥 DNA 中的 16S rDNA,并用亚硝酸盐还原酶基因 *nirS* 和 *nirK* 的特异引物对扩增

表 3 样品采集说明

Table 3 Illustration of sludge samples

样品编号	电子供体	运行天数/d	温度/℃
1	Na ₂ S ₂ O ₃	121	27.6
2	Na ₂ S ₂ O ₃	165	26.6
3	Na ₂ S ₂ O ₃	188	27
4	Na ₂ S ₂ O ₃	228	21
5	Na ₂ S ₂ O ₃	253	18.2
6	Na ₂ S	53	21
7	Na ₂ S	79	18.2
8	S	210	24

污泥 DNA 样品中的特异性亚硝酸盐还原酶基因片段. 实验结果显示,采用通用引物 27F/927R 和特异性引物对 *nirS* 1F/*nirS* 6R 进行链式聚合酶反应,每个样品均成功扩增出 DNA 产物. 而在用 *nirK* 1F/

nirK 5R 特异引物对进行 PCR 反应时,只有单质硫系统所得污泥 DNA 成功获得了扩增产物(凝胶电泳照片见图 14),说明该反应器的菌群中含有其它两个反应器中所没有的 *nirS* (含铜)亚硝酸盐还原酶.也就是说,采用不同价态的硫作为电子供体,驯化培养出的自养反硝化菌是不同的.

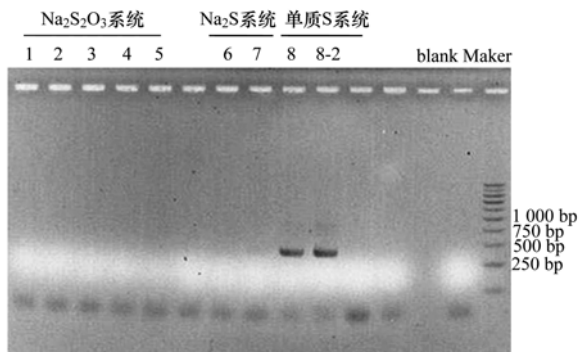


图 14 采用 *nirK* 引物扩增后的凝胶电泳照片

Fig. 14 Gel picture of PCR amplification with the *nirK* primers

通过 DGGE 实验对特异性的 PCR 扩增产物进行分离,结果如图 15 所示.从图 15(a)可以看出,分离出的两条明显条带 27-1、27-6 主要集中在泳道的上部,为各个系统内共有.8 号和 8-2 号泳道下部有两条较清晰的条带 27-3、27-4,其中 27-3 在 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统前期样品中也有模糊条带,但其后随着运行时间逐渐消失,因此 27-3 为单质硫系统特有菌属所携带的基因片段.采用 *nirS* 引物扩增的产物经过 DGGE 后的图谱[图 15(b)]也显示 3 个系统中的自养反硝化菌群各不相同.1~5 号泳道上部的条带 S-2 颜色逐渐变淡,推测携带该基因的菌种

随着反应器运行时间的增加,数量逐渐减少.而在这一位置的 6、7、8 和 8-2 号样品中均为明亮条带,为长期存在的菌种.另外,1~5 号泳道下部的条带 S-6,随着运行时间的增加,条带逐渐集中,说明经过驯化和筛选,硫自养反硝化菌在 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统中逐渐成为优势菌种.而 6~7 号样同样位置的条带为明显的两条带;8 号样中则为明显的 3 条,可见 3 个系统中自养反硝化菌不仅在菌种组成上各不相同,其数量和增殖趋势也不同.

利用 *nirK* 引物扩增的产物,经过 DGGE 后泳道上条带分布模式与利用 *nirS* 引物扩增产物分离出的条带模式完全不同,说明不同电子供体培养驯化出的功能菌不同,这与 PCR 结果是一致的.

从聚丙烯酰胺胶上切出特征条带回收作进一步的 PCR 扩增、纯化和 DNA 测序,所得的 DNA 序列在 NCBI 数据库中进行相似性比较,根据序列相似性选取多条已知序列的基因片段,构建系统发育树.图 16 是条带 27-3 和 27-4 基因片段构建的系统发育树,条带 27-3 测得序列与脱氮硫杆菌 *Thiobacillus denitrificans* ATCC 25259 相似度最高,达 100%,说明 27-3 为脱氮硫杆菌所携片段.而条带 27-4 测得序列与 27-3 在系统树中相距甚远,说明与其亲缘关系较远,与其他菌的相似度也不高,暂时无法确定其种属.实验所得的其它 *nirS* 和 *nirK* 基因片段在现有基因库中找不到任何相似的菌种,无法建立发育树,因此 Na_2S 和 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统中的优势菌可能是目前尚未登记的硫自养反硝化菌新菌种.

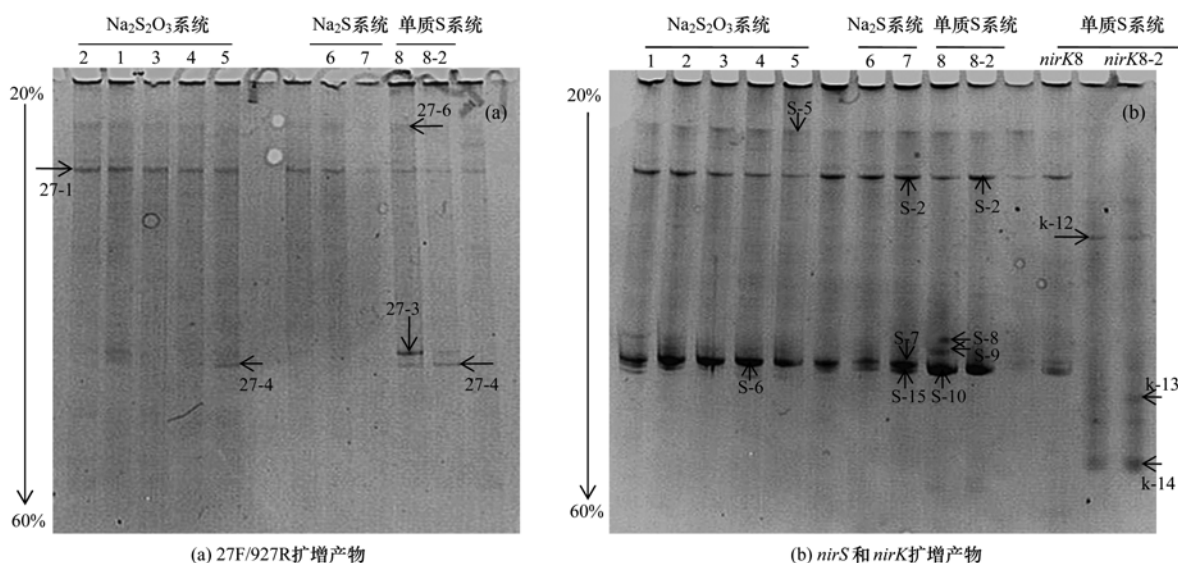


图 15 DGGE 分离后的凝胶电泳照片

Fig. 15 DGGE profiles of the amplified gene fragments

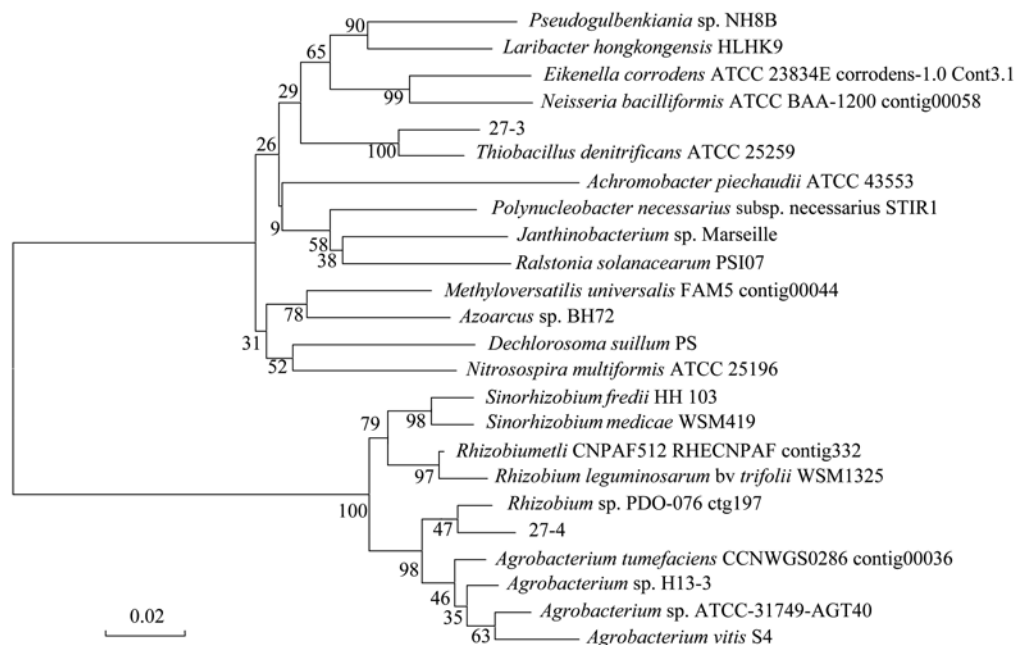


图 16 条带 27-3、27-4 系统发育树

Fig. 16 Phylogenetic tree of bands 27-3 and 27-4

3 结论

(1) 采用单质硫、 Na_2S 和 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 作为电子供体进行硫自养反硝化脱氮处理, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统对 NO_3^- -N 的脱除效果最优, Na_2S 系统的脱氮效果最差。

(2) 3 个系统均受温度的影响, 在 $10 \sim 20^\circ\text{C}$ 下的脱氮效果均差于 20°C 以上, $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统对低温的适应能力优于单质硫和 Na_2S 系统。单质硫系统受 HRT 的影响较大, HRT ≥ 2 h 时脱氮能力较强, 同时也受传质效率的影响, 不能长期维持在较高去除水平; Na_2S 系统在 HRT 保持 4 h 时对 NO_3^- -N 的去除能力仍然不稳定且低; $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ 系统对 NO_3^- -N 的处理能力最好, 并且有较强的抗冲击能力, 能在低 HRT (0.5 h) 的条件下保持 90% 以上的脱氮效率。

(3) 分子生物学分析结果显示, 3 个系统中自养反硝化菌群落不仅在菌种组成上各不相同, 其数量和增殖趋势也不同。单质硫系统中的硫自养反硝化菌同时含有携带 *nirS* 和 *nirK* 两种基因的自养反硝化菌种, DNA 相似性比较发现该系统中存在其它两系统中不存在的脱氮硫杆菌 *Thiobacillus denitrificans* ATCC 25259, 而在另外两种电子供体的反硝化系统中发现的菌种可能是目前尚未登记的硫自养反硝化菌新菌种。

致谢: 本研究得到了课题组其他老师和同学的

大力支持, 在此表示感谢。

参考文献:

- [1] Aslan S. Combined removal of pesticides and nitrates in drinking waters using biodegradation and sand filter system[J]. Process Biochemistry, 2005, **40**(1): 417-424.
- [2] Tallec G, Garnier J, Gousailles M. Nitrogen removal in a wastewater treatment plant through biofilters; nitrous oxide emissions during nitrification and denitrification[J]. Bioprocess and Biosystems Engineering, 2006, **29**(5-6): 323-333.
- [3] Claus G, Kützner H J. Physiology and kinetics of autotrophic denitrification by *Thiobacillus denitrificans* [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 1985, **22**(4): 283-288.
- [4] Zhang T C, Lampe D G. Sulfur; limestone autotrophic denitrification processes for treatment of nitrate-contaminated water: batch experiments[J]. Water Research, 1999, **33**(3): 599-608.
- [5] Campos J L, Carvalho S, Portela R, et al. Kinetics of denitrification using sulphur compounds: effects of S/N ratio, endogenous and exogenous compounds [J]. Bioresource Technology, 2008, **99**(5): 1293-1299.
- [6] Wang J, Lu H, Cheng G H, et al. A novel sulfate reduction, autotrophic denitrification, nitrification integrated (SANI) process for saline wastewater treatment[J]. Water Research, 2009, **43**(9): 2363-2372.
- [7] Oh S E, Kim K S, Choi H C, et al. Kinetics and physiological characteristics of autotrophic denitrification by denitrifying sulfur bacteria[J]. Water Science and Technology, 2000, **42**(3-4): 59-68.
- [8] 邓旭亮, 王爱杰, 荣丽丽, 等. 硫自养反硝化技术研究现状与发展趋势[J]. 工业水处理, 2008, **28**(3): 13-16.

- [9] 姜巍, 曲久辉, 雷鹏举, 等. 固定床自养反硝化去除地下水中的硝酸盐氮[J]. 中国环境科学, 2001, **21**(2): 133-136.
- [10] Sierra-Alvarez R, Beristain-Cardoso R, Salazar M, *et al.* Chemolithotrophic denitrification with elemental sulfur for groundwater treatment [J]. Water Research, 2007, **41**(6): 1253-1262.
- [11] De Lomas J G, Corzo A, Gonzalez J M, *et al.* Nitrate promotes biological oxidation of sulfide in wastewaters: experiment at plant-scale [J]. Biotechnology and Bioengineering, 2006, **93**(4): 801-811.
- [12] 李巍, 赵庆良, 刘颖. 缺氧附着生长反应器同步脱氮除硫除碳运行效果探讨[J]. 环境科学, 2008, **29**(7): 1855-1859.
- [13] 王晖, 周伟丽, 欧阳丽华, 等. 硫自养反硝化结合生物活性炭处理硝酸盐废水[J]. 中国给水排水, 2011, **27**(9): 29-32.
- [14] 王海燕, 葛建团, 刘海涛, 等. 亚硝化/电化学生物反硝化全自养脱氮工艺研究[J]. 环境科学学报, 2007, **27**(3): 375-385.
- [15] Sher Y, Schneider K, Schwermer C, *et al.* Sulfide-induced nitrate reduction in the sludge of an anaerobic digester of a zero-discharge recirculating mariculture system [J]. Water Research, 2008, **42**(16): 4386-4392.
- [16] Aoi Y, Shiramasa Y, Kakimoto E, *et al.* Single-stage autotrophic nitrogen-removal process using a composite matrix immobilizing nitrifying and sulfur-denitrifying bacteria [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 2005, **68**(1): 124-130.
- [17] Zhou W L, Sun Y J, Wu B T, *et al.* Autotrophic denitrification for nitrate and nitrite removal using sulfur-limestone [J]. Journal of Environmental Sciences, 2011, **23**(11): 1761-1769.
- [18] 欧阳丽华, 周伟丽, 张振家, 等. 包埋固定化微生物的硫自养反硝化实验研究 [J]. 环境科学, 2011, **32**(6): 1644-1652.
- [19] 国家环境保护局. 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.
- [20] Kageyama K, Komatsu T, Suga H. Refined PCR protocol for detection of plant pathogens in soil [J]. Journal of General Plant Pathology, 2003, **69**(3): 153-160.
- [21] Zhou W L, Kageyama K, Li F S, *et al.* Monitoring of microbiological water quality by real-time PCR [J]. Environmental Technology, 2007, **28**(5): 545-553.
- [22] Brosius J, Palmer M L, Kennedy P J, *et al.* Complete nucleotide sequence of a 16S ribosomal RNA gene from *Escherichia coli* [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 1978, **75**(10): 4801-4805.
- [23] Braker G, Fesefeldt A, Witzel K P. Development of PCR primer systems for amplification of nitrite reductase genes (*nirK* and *nirS*) to detect denitrifying bacteria in environmental samples [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1998, **64**(10): 3769-3775.
- [24] 郑景生, 吕蓓. PCR 技术及实用方法 [J]. 分子植物育种, 2003, **1**(3): 381-394.
- [25] GB 5749-2006, 生活饮用水卫生标准 [S].
- [26] 高建文, 何圣兵, 陈雪初, 等. 生物滤池/生态砾石床处理含氮微污染地表水 [J]. 中国给水排水, 2012, **28**(1): 26-30.

CONTENTS

Advances in Peroxide-Based Decontaminating Technologies	XI Hai-ling, ZHAO San-ping, ZHOU Wen (1645)
Environmental Damage Assessment; International Regulations and Revelation to China	ZHANG Hong-zhen, CAO Dong, YU Fang, <i>et al.</i> (1653)
Human Health Risk-Based Environmental Criteria for Soil: A Comparative Study Between Countries and Implication for China	XU Meng, YAN Zeng-guang, HE Meng-meng, <i>et al.</i> (1667)
Organic Waste Treatment by Earthworm Vermicomposting and Larvae Bioconversion: Review and Perspective	ZHANG Zhi-jian, LIU Meng, ZHU Jun (1679)
Strategies of Nutrients Control in Lakes Based on Ecoregions of Lakes in China	DIAO Xiao-jun, XI Bei-dou, HE Lian-sheng, <i>et al.</i> (1687)
Current Status of Surface Water Acidification in Northeast China	XU Guang-yi, KANG Rong-hua, LUO Yao, <i>et al.</i> (1695)
Impact Analysis of Xi'an to the Water Quality of Weihe River	YU Jie, LI Huai-en (1700)
Distribution Characteristics of Dissolved Oxygen and Its Affecting Factors in the Pearl River Estuary During the Summer of the Extremely Drought Hydrological Year 2011	YE Feng, HUANG Xiao-ping, SHI Zhen, <i>et al.</i> (1707)
Application of Equilibrium Partitioning Approach to Establish Sediment Quality Criteria for Heavy Metals in Hengyang Section of Xiangjiang River	HAN Chao-nan, QIN Yan-wen, ZHENG Bing-hui, <i>et al.</i> (1715)
Assessing the Benthic Ecological Status in Yangtze River Estuary Using AMBI and M-AMBI	CAI Wen-qian, MENG Wei, LIU Lu-san, <i>et al.</i> (1725)
Pollution Load and the First Flush Effect of BOD ₅ and COD in Urban Runoff of Wenzhou City	WANG Jun, BI Chun-juan, CHEN Zhen-lou, <i>et al.</i> (1735)
Influencing Factors in Measuring Absorption Coefficient of Suspended Particulate Matters	YU Xiao-long, SHEN Fang, ZHANG Jin-fang (1745)
Relationship Between pCO ₂ and Algal Biomass in Xiangxi Bay in Spring	YUAN Xi-gong, HUANG Wen-min, BI Yong-hong, <i>et al.</i> (1754)
Effects of Turbulent Fluctuation Intensity on the Growth of Algae and Water Environment	LEI Yu, LONG Tian-yu, SAN Lei, <i>et al.</i> (1761)
Simultaneous Removal of Algae and Its Odorous Metabolite Dimethyl Trisulfide in Water by Potassium Ferrate	MA Xiao-yan, ZHANG Ze-hua, WANG Hong-yu, <i>et al.</i> (1767)
Catalyzed Oxidation of Catechol by the Heterogeneous Fenton-like Reaction of Nano-Fe ₃ O ₄ -H ₂ O ₂ System	HE Jie, YANG Xiao-fang, ZHANG Wei-jun, <i>et al.</i> (1773)
Photodegradation of Naproxen in Aqueous Systems by UV Irradiation: Mechanism and Toxicity of Photolysis Products	MA Du-juan, LIU Guo-guang, LÜ Wen-ying, <i>et al.</i> (1782)
Catalytic Ozonation of Nitrobenzene in Water by Acidification-activated Red Mud	KANG Ya-ning, LI Hua-nan, XU Bing-bing, <i>et al.</i> (1790)
Experimental Studies on Stability of Floes from Cadmium Pollution Emergency Treatment	LIU Wang-rong, GUO Qing-wei, YANG Ren-bin, <i>et al.</i> (1797)
Evaluation of Floc Strength Based on Morphological Analysis and Optical Online Monitoring	JIN Peng-kang, FENG Yong-ning, WANG Bao-bao, <i>et al.</i> (1802)
Mechanism of Reductive Dechlorination of Trichlorophenol with Different Electron Donors	WAN Jin-quan, HU Meng-die, MA Yong-wen, <i>et al.</i> (1808)
Preparation of Magnetic Quaternary Chitosan Salt and Its Adsorption of Methyl Orange from Water	ZHANG Cong-lu, HU Xiao-min, YING Shi-ying, <i>et al.</i> (1815)
Membrane Fouling by Secondary Effluent of Urban Sewage and the Membrane Properties	MENG Xiao-rong, ZHANG Hai-zhen, WANG Lei, <i>et al.</i> (1822)
Treatment of Municipal Wastewater Using the Combined Reversed A ² /O-MBR Process	ZHANG Jian-jun, ZOU Gao-long, YANG Shu-fang, <i>et al.</i> (1828)
Study on Sulfur-based Autotrophic Denitrification with Different Electron Donors	YUAN Ying, ZHOU Wei-li, WANG Hui, <i>et al.</i> (1835)
Nitrogen Removal and N ₂ O Emission Characteristics During the Shortcut Simultaneous Nitrification and Denitrification Process	LIANG Xiao-ling, LI Ping, WU Jin-hua, <i>et al.</i> (1845)
Optimization of Solid-Phase Extraction for Enrichment of Toxic Organic Compounds in Water Samples	ZHANG Ming-quan, LI Feng-min, WU Qian-yuan, <i>et al.</i> (1851)
Polycyclic Musks Exposure Affects Gene Expression of Specific Proteins in Earthworm <i>Eisenia fetida</i>	CHEN Chun, LIU Xiao-wei, ZHENG Shun-an, <i>et al.</i> (1857)
Health Risk Assessment and Ozone Formation Potentials of Volatile Organic Compounds from Pharmaceutical Industry in Zhejiang Province	XU Zhi-rong, WANG Zhe-ming, XU Ming-zhu, <i>et al.</i> (1864)
Health Effect of Volatile Aldehyde Compounds in Photocatalytic Oxidation of Aromatics Compounds	ZHAO Wei-rong, LIAO Qiu-wen, YANG Ya-nan, <i>et al.</i> (1871)
Compositions and Distribution Characteristics of Polybrominated Diphenyl Ethers in Serum of Women from Sichuan Province	SHAO Min, CHEN Yong-heng, LI Xiao-yu (1877)
QSAR/QSPR for Predicting the Toxicity of Imidazolium Ionic Liquids	ZHAO Ji-hong, ZHAO Yong-sheng, ZHANG Hong-zhong, <i>et al.</i> (1882)
Spatial and Temporal Characteristics of Heavy Metal Concentration of Surface Soil in Hebin Industrial Park in Shizuishan Northwest China	FAN Xin-gang, MI Wen-bao, MA Zhen-ning, <i>et al.</i> (1887)
Distribution Characteristic and Current Situation of Soil Rare Earth Contamination in the Bayan Obo Mining Area and Baotou Tailing Reservoir in Inner Mongolia	GUO Wei, FU Rui-ying, ZHAO Ren-xin, <i>et al.</i> (1895)
Road Dust Loading and Chemical Composition at Major Cities in Fujian Province	ZHENG An, YANG Bing-yu, WU Shui-ping, <i>et al.</i> (1901)
Numerical Simulation and Application of Electrical Resistivity Survey in Heavy Metal Contaminated Sites	WANG Yu-ling, NAI Chang-xin, WANG Yan-wen, <i>et al.</i> (1908)
Effects of Arbuscular Mycorrhizal Fungi on the Growth and Rare Earth Elements Uptake of Soybean Grown in Rare Earth Mine Tailings	GUO Wei, ZHAO Ren-xin, ZHAO Wen-jing, <i>et al.</i> (1915)
Algicidal Activity Against Red-tide Algae by Marine Bacterial Strain N3 Isolated from a HABs Area, Southern China	SHI Rong-jun, HUANG Hong-hui, QI Zhan-hui, <i>et al.</i> (1922)
Isolation, Identification and Oxidizing Characterization of an Iron-Sulfur Oxidizing Bacterium LY01 from Acid Mine Drainage	LIU Yu-jiao, YANG Xin-ping, WANG Shi-mei, <i>et al.</i> (1930)
Isolation of an Effective Benzo[a]pyrene Degrading Strain and Its Degradation Characteristics	CAI Han, YIN Hua, YE Jin-shao, <i>et al.</i> (1937)
Aerobic Microbial Degradation of 2,2',4,4'-Tetrabrominated Diphenyl Ether	ZHANG Shu, Franco Giulio, LI Xiao-bao, <i>et al.</i> (1945)
Piggery Wastewater Cultivating Biofloculant-Producing Flora B-737 and the Fermentation Characteristics	PEI Rui-lin, XIN Xin, ZHANG Xue-qiao, <i>et al.</i> (1951)
Correlation Between Acidic Materials and Acid Deposition in Beijing During 1997-2011	CHEN Yuan-yuan, TIAN He-zhong, YANG Dong-yan, <i>et al.</i> (1958)
Characteristics of Precipitation pH and Conductivity at Mt. Huang	SHI Chun-e, DENG Xue-liang, WU Bi-wen, <i>et al.</i> (1964)
Chemical Characteristics of Water-Soluble Components of Aerosol Particles at Different Altitudes of the Mount Huang in the Summer	WEN Bin, YIN Yan, QING Yan-shuo, <i>et al.</i> (1973)
Pollution Characteristics of Organic Acids in Atmospheric Particles During Haze Periods in Autumn in Guangzhou	TAN Ji-hua, ZHAO Jing-ping, DUAN Jing-chun, <i>et al.</i> (1982)
Characterization of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM _{2.5} During the Winter in Three Major Cities in Fujian Province, China	CHEN Yan-ting, CHEN Jin-sheng, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (1988)
Size Distribution of Carbonaceous Particulate Matter in Atmosphere of Shanghai, China	YUAN Ning, LIU Wei, ZHAO Xiu-liang, <i>et al.</i> (1995)
Secondary Aerosol Formation Through Photochemical Reactions Estimated by Using Air Quality Monitoring Data in the Downtown of Pudong, Shanghai	CUI Hu-xiong, WU Ya-ming, DUAN Yu-sen, <i>et al.</i> (2003)
Geochemical Characteristics and Sources of Atmospheric Particulates in Shanghai During Dust Storm Event	QIAN Peng, ZHENG Xiang-min, ZHOU Li-min (2010)
Near Surface Atmospheric CO ₂ Variations in Autumn at Suburban Xiamen, China	LI Yan-li, MU Chao, DENG Jun-jun, <i>et al.</i> (2018)
<i>In-situ</i> Measurement of Background Atmospheric HCFC-142b Using GC-MS and GC-ECD Method	GUO Li-feng, YAO Bo, ZHOU Ling-xi, <i>et al.</i> (2025)
Airborne Fungal Community Composition in Indoor Environments in Beijing	FANG Zhi-guo, OUYANG Zhi-yun, LIU Peng, <i>et al.</i> (2031)
Study on Quantification Assessment and Odor Fingerprint of Volatile Aromatic Hydrocarbons from Sewage Treatment Plant	GUO Wei, WANG Bo-guang, TANG Xiao-dong, <i>et al.</i> (2038)
Superposition Impact Character of Air Pollution from Decentralization Docks in a Freshwater Port	LIU Jian-chang, LI Xing-hua, XU Hong-lei, <i>et al.</i> (2044)
Thermal Stability and Transformation Behaviors of Pb in Yima Coal	LIU Rui-qing, WANG Jun-wei (2051)
Synergistic Emission Reduction of Chief Air Pollutants and Greenhouse Gases Based on Scenario Simulations of Energy Consumptions in Beijing	XIE Yuan-bo, LI Wei (2057)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2013年5月15日 34卷 第5期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 5 May 15, 2013

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel: 010-62941102, 010-62849343; Fax: 010-62849343 E-mail: hjkx@rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel: 010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国 内 定 价: 90.00 元

国外发行代号: M 205

国 内 外 公 开 发 行