

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第11期

Vol.37 No.11

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

承德市大气污染源排放清单及典型行业对 PM _{2.5} 的影响	陈国磊,周颖,程水源,杨孝文,王晓琦 (4069)
浙江省木制品行业挥发性有机物排放特征及排放系数	姚轶,王浙明,何志桥,徐志荣,顾震宇 (4080)
山西省人为源 VOCs 排放清单及其对臭氧生成贡献	闫雨龙,彭林 (4086)
某化工区典型高污染过程 VOCs 污染特征及来源解析	高松,崔虎雄,伏晴艳,高爽,田新愿,方方,衣学文 (4094)
加油 VOCs 排放因子测试方法研究与应用	黄玉虎,常耀卿,任碧琪,秦建平,胡玮,刘明宇 (4103)
北京市生活垃圾填埋场氨排放特征研究	崔彤,李金香,杨妍研,程刚 (4110)
西安市人为源大气氨排放清单及特征	苏航,闫东杰,黄学敏,宋文斌,王惠琴,宋雪娟 (4117)
佛山市冬夏季非甲烷烃污染特征研究	周雪明,项萍,段菁春,贺克斌,马永亮,邓思欣,司徒淑婷,谭吉华 (4124)
天津市道路环境大气颗粒物水溶性无机离子分析	赵梦雪,吴琳,方小珍,杨志文,李凤华,毛洪钧 (4133)
戴云山国家级自然保护区大气氮沉降特点	袁磊,李文周,陈文伟,张金波,蔡祖聪 (4142)
青岛近海冬季大气生物气溶胶中微生物活性研究	孟祥斌,李孟哲,李鸿涛,高冬梅,祁建华 (4147)
玉米秸秆烟尘中正构脂肪酸的分子与碳同位素组成	刘刚,孙丽娜,徐慧,李久海,李中平,李立武 (4156)
极低风速条件下水-气界面甲烷气体传输速率分析	张成,吕新彪,龙丽,张军伟,穆晓辉,李迎晨,王圣瑞,张文丽,肖尚斌 (4162)
典型水库型湖泊中 CDOM 吸收及荧光光谱变化特征: 基于沿岸生态系统分析	陈雪霜,江韬,卢松,白薇扬,张成,王定勇,魏世强 (4168)
西苕溪支流河口水体营养盐的特征及源贡献分析	陈诗文,袁旭音,金晶,李正阳,许海燕 (4179)
周村水库主库区热分层初期氮素降低的驱动因子分析	张春华,黄廷林,方开凯,周石磊,夏超 (4187)
太湖湖泛易发区沉积物中有机磷形态分布特征	董丹萍,章婷曦,张丁予,王巧云,李德芳,王国祥 (4194)
多重扰动对湖泊内源磷迁移转化的影响	蔡顺智,李大鹏,王忍,刘焱见,徐垚,于胜楠,黄勇 (4203)
丹江口库区覆膜耕作土壤氮素淋失随夏玉米生长期的变化	王伟,于兴修,汉强,刘航,徐苗苗,任瑞,张家鹏 (4212)
营养盐恢复对氮磷饥饿铜绿微囊藻生长的影响	岳冬梅,李洁,肖琳 (4220)
氯灭活地下水源中 3 种优势真菌的效能与机制	文刚,朱红,黄廷林,赵建超,任崴,徐向前 (4228)
净水工艺对饮用水中微生物多重耐药性的影响与分析	马晓琳,陆洋,王钰,侯誉,白晓慧 (4235)
单过硫酸氢钾复合粉在饮用水消毒过程中的副产物生成特性及遗传毒性变化	敖秀玮,李豪杰,刘文君,余京儒 (4241)
三维有序介孔 Co ₃ O ₄ 非均相活化单过硫酸氢钾降解罗丹明 B	冯善方,邓思萍,杜嘉雯,马晓雁,卢遇安,高乃云,邓靖 (4247)
调控絮体形态强化电絮凝减缓膜污染	赵凯,杨春风,孙境求,李静,胡承志 (4255)
初始 pH 值对序批式 CANON 工艺脱氮效果和 N ₂ O 释放的影响	付昆明,王会芳,苏雪莹,周厚田 (4261)
3DBER-S-Fe 同步脱氮除磷及去除邻苯二甲酸酯的工艺特性	张娅,郝瑞霞,徐鹏程,徐忠强 (4268)
基于反硝化脱氮的硫铁复合填料除磷机制	范军辉,郝瑞霞,李萌,朱晚霞,万京京 (4275)
基于 ABR-MBR 组合工艺优化反硝化除磷性能的研究	程朝阳,赵诗惠,吕亮,吴鹏,沈耀良 (4282)
中常温变化对 PN-ANAMMOX 联合工艺脱氮效果的影响	袁砚,朱亮 (4289)
生物活性炭对不同 C/N 比废水同步硝化反硝化脱氮效果的影响	崔延瑞,邱鑫,张庆荣,王琦,吴青,孙剑辉 (4296)
ANAMMOX 菌利用零价铁还原硝酸盐脱氮研究	周健,完颜德卿,黄勇,刘忻,袁怡,李祥,姚鹏程,杨朋兵,薛鹏程 (4302)
间歇曝气 SBR 与传统 SBR 处理养猪沼液的比较研究	董宝刚,宋小燕,刘锐,川岸朋树,张永明,陈吕军 (4309)
应用解蛋白菌生物预水解剩余污泥	何晶晶,王颖,胡洁,吕凡,邵立明 (4317)
应用环境多介质逸度模型研究废旧电器拆解区多溴联苯醚的迁移及归趋	薛南冬,陈宣宇,杨兵,秦普丰,龙雨 (4326)
南宁市多环境介质中多环芳烃分布特征	苗迎,孔祥胜 (4333)
杭州城区室内灰尘中多溴联苯醚的含量及人体暴露水平	金漫彤,滕丹丹,郑艳霞,胡张璇,沈学优,金赞芳 (4341)
应用线性自由能关系估算药用活性化合物的生物碳质-水吸附系数	王佳怡,毕二平 (4349)
表流湿地细菌群落结构特征	魏佳明,崔丽娟,李伟,雷茵茹,于菁菁,秦鹏,穆泳林,梁钊瑞 (4357)
城市污水中硝化菌群落结构与性能分析	于莉芳,杜倩倩,傅学焘,张茹,李文江,彭党聪 (4366)
DNA 和 cDNA 水平对比研究施肥对稻田土壤细菌多样性的影响	王聪,吴讷,侯海军,汤亚芳,沈健林,秦红灵 (4372)
培养条件下双酚 A 对稻田土壤微生物群落特征的影响	刘畅,黄雅丹,张莹,靳振江,梁月明,宋昂,王腾,郭佳怡,李强 (4380)
1 株兼具好、厌氧汞甲基化能力细菌的分离鉴定	陶兰兰,向玉萍,王定勇,黄曼琳,申鸿 (4389)
北京地区菜田土壤抗生素抗性基因的分布特征	张兰河,王佳佳,哈雪姣,邱孟超,高敏,仇天雷,王旭明 (4395)
梅花鹿养殖场抗生素抗性基因分布特征	黄福义,安新丽,陈青林,任红云,苏建强 (4402)
几种高硅质矿物细颗粒的 A549 细胞毒性对比	霍婷婷,董发勤,邓建军,张青碧,贺小春,孙东平 (4410)
添加复合吸附剂对土壤吸附菲和 Cr(VI) 的影响	李文斌,孟昭福,吴琼,许绍娥,刘泽 (4419)
生物炭对西北黄土吸附壬基酚的影响	张振国,蒋煜峰,慕仲锋,孙航,周琦,展惠英 (4428)
集雨种植下不同沟垄比对土壤呼吸的影响及其对水热因子的响应	王昌江,施成晓,冯帆,陈婷,张磊,吕晓康,王伟,廖允成 (4437)
秸秆还田与化肥减量配施对稻-菜轮作下土壤养分及酶活性的影响	黄容,高明,万毅林,田冬,陶睿,王芳丽 (4446)
《环境科学》征稿简则 (4161)	《环境科学》征订启事 (4365)
信息 (4123,4132,4409)	

ANAMMOX 菌利用零价铁还原硝酸盐脱氮研究

周健^{1,2}, 完颜德卿^{1,2}, 黄勇^{1,2*}, 刘忻^{1,2}, 袁怡^{1,2}, 李祥^{1,2}, 姚鹏程^{1,2}, 杨朋兵^{1,2}, 薛鹏程¹

(1. 苏州科技大学环境科学与工程学院, 苏州 215009; 2. 苏州科技大学环境生物技术研究所, 苏州 215009)

摘要: 采用全混式厌氧搅拌罐, 研究在自养条件下, ANAMMOX 菌利用零价铁还原硝酸盐为氮气的可行性及最佳反应条件. 投加铁屑 $71 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, 接种厌氧氨氧化颗粒污泥 $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 控制温度 $33^\circ\text{C} \pm 0.5^\circ\text{C}$, 搅拌强度 $150 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$, 水力停留时间 10 h , pH 值为 $7.0 \sim 8.0$. 在中性条件下, 添加厌氧氨氧化微生物的零价铁还原硝酸盐体系一次性投加零价铁, $0 \sim 5 \text{ d}$ 硝酸盐脱氮负荷达到 $0.12 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$. 反应出水氨和亚硝酸盐始终小于 $2.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 硝酸盐以氮气形式损失, 出水 pH 较进水高值超过 8.0 , 并且可溶性铁含量始终小于 $7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 硝酸盐去除能力始终高于 $0.1 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$. 批试实验优化反应条件: 在偏酸性条件下 (pH 值为 $4 \sim 6$) 反应速度加快, 并且液相总氮损失率大于 89% . 反应温度在 $30 \sim 40^\circ\text{C}$ 时, 液相总氮损失率大于 89% . 过于极端的 pH 值环境及温度环境均不利于耦合反应的进行.

关键词: 厌氧氨氧化; 零价铁; 硝酸盐还原; 耦合; 氮气

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)11-4302-07 DOI: 10.13227/j.hjkk.201604079

Biotransformation of Nitrate to Nitrogen Gas Driven by ANAMMOX Microbes via Zero-valent Iron Under Anaerobic Conditions

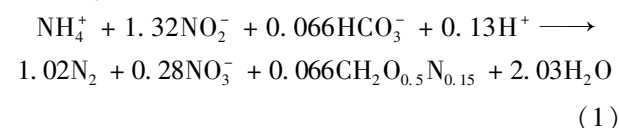
ZHOU Jian^{1,2}, WANYAN De-qing^{1,2}, HUANG Yong^{1,2*}, LIU Xin^{1,2}, YUAN Yi^{1,2}, LI Xiang^{1,2}, YAO Peng-cheng^{1,2}, YANG Peng-bing^{1,2}, XUE Peng-cheng¹

(1. School of Environmental Science and Technology, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China; 2. Institute of Environmental Biotechnology, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China)

Abstract: A novel type of nitrate removal process was investigated in this study, which coupled nitrate reduction by zero-valent iron (ZVI) with anaerobic ammonia oxidation (ANAMMOX). The zero-valent iron dosage was $71 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$. The inoculation volume of ANAMMOX granular sludge was $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. The agitation rate and environment reaction temperature of the CSTR was set up to $150 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ and $33^\circ\text{C} \pm 0.5^\circ\text{C}$, respectively. The pH of influent was maintained at $7.0 \sim 8.0$. The result indicated that ANAMMOX bacteria could survive in nitrate and ZVI supplied system under neutral condition. The reactor was set up quickly with the nitrogen removal rate of $0.12 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ on the first 5 days, and maintained over $0.1 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ nitrogen removal ability with the effluent nitrite and ammonia concentrations below $2.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ and pH value higher than 8.0 . The nitrogen loss was up to 89% under the condition of $30 \sim 40^\circ\text{C}$, pH $4 \sim 6$. Too extreme pH and temperature conditions were not favorable for the coupling reactions.

Key words: ANAMMOX; zero-valent iron; nitrate reduction; coupling; nitrogen gas

20 年前, 从荷兰的污水处理厂污泥中发现了一种可以在厌氧条件下将氨生物氧化的微生物^[1], 即以亚硝态氮作为电子受体, 氨作为电子供体的生物代谢反应, 即为厌氧氨氧化过程 (anaerobic ammonium oxidation, ANAMMOX), 随后在海洋低氧带及淡水河流湖泊中发现厌氧氨氧化污泥的广泛分布^[2,3], 并活跃地参与自然界的氮循环^[4]. 理论上, 1 mol NH_4^+ 可以与 1.32 mol NO_2^- 反应生成 0.26 mol NO_3^- 和 1.02 mol N_2 ^[5] [公式(1)].



厌氧氨氧化直接利用亚硝酸盐氧化氨, 整个过程无需额外投加碳源, 并且仅有部分氨氧化为亚硝酸盐. 与传统的硝化-反硝化处理氨氮废水相比, 短

程硝化-厌氧氨氧化技术可节省 100% 的碳源投加和约 60% 的曝气量. 厌氧氨氧化技术不仅在国外得到广泛的应用, 而且现阶段国内也有许多的高氨氮废水处理工程应用该项技术, 主要包括了污泥消化液、味精生产废水、玉米淀粉生产废水、发酵废水等^[6-8].

近年来许多研究表明, 厌氧氨氧化菌具有多种底物利用的能力. 有报道显示厌氧氨氧化微生物可以利用 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ ^[9-11]、 Fe^{3+} 和 NH_4^+ ^[12,13]、 Mn^{4+} 和 NH_4^+ ^[14]、 NO_3^- 和丙酸盐^[15,16]、 NO_3^- 和 Fe^{2+} ^[17]

收稿日期: 2016-04-11; 修订日期: 2016-06-12

基金项目: 国家自然科学基金项目 (51478284, 51408387); 苏州科技大学科研启动项目 (331411202); 苏州科技大学科研基金青年项目 (XKQ201414)

作者简介: 周健 (1990 ~), 男, 硕士研究生, 主要方向为水污染控制与理论, E-mail: jzhou_sz@163.com

* 通讯联系人, E-mail: yhuang@mail.usts.edu.cn

等物质获得生命活动所必需的能量. 厌氧氨氧化微生物具有 200 多种催化酶(好氧氨氧化菌仅有 50 多种), 多样的代谢酶系统支持其多种底物利用的能力^[18].

零价铁(ZVI)具有较强的还原能力^[19,20], 在作为硝酸盐还原材料的同时, 还能修复高毒性有机物污染、重金属污染, 是较为理想的水处理材料. 采用零价铁修复地下水中的硝酸盐在 20 世纪 90 年代早已被实际应用^[21]. 以零价铁作为电子供体的氧化还原反应中, NO_3^- 首先被还原为 NO_2^- , 并继续还原为 NH_4^+ . 其中小部分的 NO_3^- 也可能被还原成 N_2 ^[22]. 零价铁还原硝酸盐反应过程中, 转化 1 mol NO_3^- 需要 10 mol H^+ , 因此这种硝酸盐转化难以在酸度贫乏的体系中持续进行^[23,24]. 零价铁化学还原硝酸盐的主要产物为氨, 易形成二次污染. 这严重制约了零价铁还原硝酸盐的技术开发与应用.

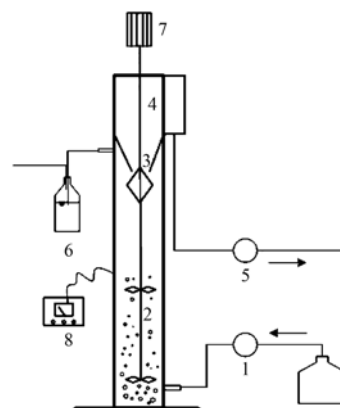
厌氧氨氧化微生物已被证明是一种具有多底物利用能力的微生物. 在零价铁还原硝酸盐的反应过程中, 硝酸盐首先被还原为亚硝酸盐, 随后被进一步还原为氨. 该反应先后生成了亚硝酸盐和氨两种物质, 厌氧氨氧化微生物能生物转化这两种底物. 由此推测, 当零价铁-硝酸盐体系中存在厌氧氨氧化污泥时, 硝酸盐就能够转化为氮气. 当这种微生物对亚硝酸盐和氨的竞争力比零价铁更强时, 硝酸盐转化为氮气的效率更高. 本课题组前期已证明 ANAMMOX 菌能够利用该体系中硝酸盐转化的亚硝酸盐和氨, 说明该体系中厌氧氨氧化对氨的竞争能力更强^[25]. 本研究探究了零价铁还原硝酸盐和厌氧氨氧化耦合反应的可行性, 以期开发这种新型脱氮脱氮技术提供一定经验.

1 材料与方法

1.1 连续流实验装置

连续流实验采用全混式厌氧搅拌器, 其有效体积约为 0.7 L, 截面尺寸为 60 mm × 60 mm, 有效高度为 200 mm, 设置三相分离器. 由蠕动泵从反应区底部进水, 在反应区铁屑、污泥有效接触反应后, 经顶部三相分离器进行固、液、气分离, 最后经出水堰排水. 反应器内加装 50 g 的 14~18 目铁屑, 并接种厌氧氨氧化颗粒污泥 30 g. 设定固定停留时间 10 h, 采用双叶搅拌, 搅拌速度为 $150 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$. 设定温度为 $33.0^\circ\text{C} \pm 0.5^\circ\text{C}$. 为避免光照影响, 反应前外部用黑色遮光布覆盖避光. 反应接种 30 g(湿重)厌氧氨氧化颗粒污泥, 并添加 50 g 粒径为 14~18 目的

铁屑. 实验装置如图 1 所示.



1. 进水泵; 2. 反应区; 3. 三相分离器; 4. 沉淀区;
5. 出水泵; 6. 洗气瓶; 7. 搅拌机; 8. 温控器

图 1 连续流装置示意

Fig. 1 Scheme of experimental reactor for continuous flow

反应器进水硝酸盐浓度稳定在 $60 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 左右, HRT 为 10 h, pH 值保持 7~8. 对于整个反应而言 pH 值是最为关键的和可控的因素之一, pH 值的高低不仅影响铁与硝酸盐的反应, 而且调节厌氧氨氧化反应的活性. 因此在连续流实验中对 pH 值进行调节, 初步探索了反应的影响因素. 在连续流反应器运行 40 d 时间内, 对进水 pH 值进行调整. 考察反应体系脱氮效率、转化产物的稳定性、pH 值对反应的影响.

1.2 批试实验

取 1.0 g 厌氧氨氧化污泥于 50 mL 已灭菌的血清瓶中, 加入 2.0 g 的颗粒大小为 14~18 目的铁屑和含 $60 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1} \text{NO}_3^- \text{-N}$ 的营养液, 用高纯氮吹脱 30 min 以去除瓶内上部空气及液相溶解氧, 并迅速加盖密封, 反应 10 h. 采用恒温培养箱进行培养, 反应搅拌转速为 $150 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$, 控制培养温度为 20、28、35、45 $^\circ\text{C}$, 通过 HCl 和 NaOH 调节 pH 值为 2.2、4.1、5.14、5.5、6.36、6.7、7.49, 分别考察反应温度和 pH 值对耦合反应脱除硝酸盐反应的影响.

1.3 接种污泥及配水

实验用铁屑为 14~18 目, 铁含量 $\geq 98\%$, 先用 $0.5 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 HCl 清洗 10 min, 去除表面氧化物, 再以脱氧一级水淘洗 10 次以去除悬浮细小铁颗粒及表面二价铁附着物. 厌氧氨氧化污泥使用前先用基本培养液培养 12 h, 以去除原基质. 实验均以基本培养液 + 氮素(硝酸盐、亚硝酸盐或氨)为液相环境, 基本培养液成分为($\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$): KH_2PO_4 5, $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 136, $\text{MgCl}_2 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 200, NaHCO_3 400, KHCO_3 400, 微量元素 I $1 \text{ mL} \cdot \text{L}^{-1}$, 微量元素 II 1.25

$\text{mL}\cdot\text{L}^{-1}$. 微量元素 I 组成: EDTA $5\,000\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 硫酸亚铁 $5\,000\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$. 微量元素 II 的组成如表 1 所示.

表 1 微量元素 II 的组成

Table 1 Composition of trace element II

组成成分	质量浓度 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	组成成分	质量浓度 / $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$
EDTA	5 000	$\text{NaMoO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$	220
$\text{ZnSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$	430	$\text{NiCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$	190
$\text{CoCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$	240	$\text{NaSeO}_4\cdot 10\text{H}_2\text{O}$	210
$\text{MnCl}_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$	990	H_3BO_4	14
$\text{CuSO}_4\cdot 5\text{H}_2\text{O}$	250	$\text{NaWO}_4\cdot 2\text{H}_2\text{O}$	50

1.4 测定方法

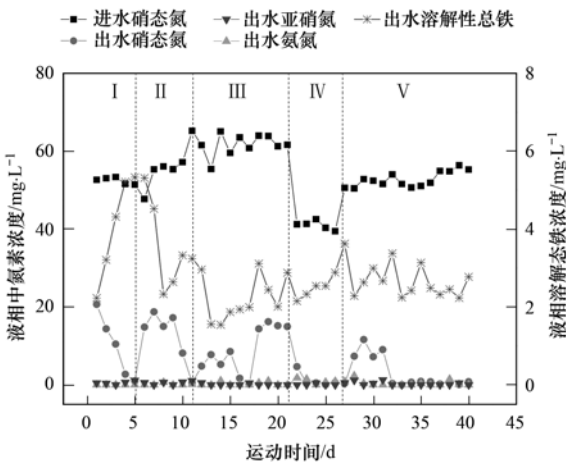
实验中各污染物指标的监测方法均参照文献 [26] 进行: NH_4^+-N 采用纳氏试剂分光光度法, NO_2^--N 采用 N -(1-萘基)-乙二胺分光光度法、 NO_3^--N 采用紫外分光光度法、水中铁采用邻菲罗啉分光光度法、pH 值采用 pHs-3TC 型酸度计测定、TOC/IC 采用 Multi NIC 3100 分析仪.

2 结果与分析

2.1 ANAMMOX 菌零价铁还原硝酸盐为氮气的性能

为了更直观地观察反应过程中硝酸盐转化的状态,将运行时间划分为 I ~ V 阶段. 由图 2 可见,0 ~ 5 d (第 I 阶段) 该反应器完成快速启动,进水硝态氮为 $50\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,出水迅速从 $20\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降低至 $5\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,此时进水 pH 值维持在 7.5 左右. 6 ~ 10 d (第 II 阶段),调整进水 pH 值为 8.0 左右,相同的进水硝态氮浓度下,硝酸盐转化率降低至 75%; 11 ~ 17 d (第 III 阶段),将 pH 值降低至 7.5 左右,反应过程中硝酸盐转化率回升至 90% ~ 100%; 18 ~ 21 d (第 III 阶段),将进水 pH 值控制为 7.8 左右,反应出水硝态氮浓度变为 $10\sim 20\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; 22 ~ 27 d (第 IV 阶段),将进水硝酸盐浓度降至 $40\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,并且将 pH 值调整为 7.5 左右,出水硝态氮为 $0\sim 3\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; 28 ~ 32 d (第 V 阶段),将进水硝态氮浓度提高至 $50\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,pH 值调整值 7.5 左右,出水硝态氮保持在 $5\sim 10\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$; 33 ~ 40 d (第 V 阶段),将进水 pH 浓度调整至 7.0 左右,出水硝酸盐浓度接近于 0. 由图 2 可见,整个运行过程中亚硝酸盐和氨的浓度始终小于 $2\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$,并且反应出水中溶解性铁浓度也处于较低的水平 ($1.5\sim 7.3\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 图 2),以固体析出 (图 3).

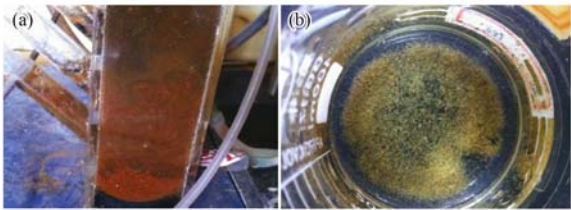
由图 4 可见,0 ~ 5 d (第 I 阶段) 启动反应器,当进水 pH 值为 7.5,硝态氮负荷为 0.126



接种 30 g 的厌氧颗粒污泥 (VSS 约为 $200\text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$), 14 ~ 18 目的铁屑 50 g (约为 $71\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$),水力停留时间 10 h , 搅拌速度为 $150\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$,温度为 $35^\circ\text{C}\pm 0.5^\circ\text{C}$,进水 pH 7 ~ 8

图 2 零价铁供亚硝酸盐和氨的厌氧氨氧化脱氮连续流反应器基质浓度变化

Fig. 2 Variation of substrate concentrations in the reaction between nitrate and ZVI driven by ANAMMOX microbes



(a) 反应器壁面附着大量絮状物; (b) 出水含大量絮状物

图 3 零价铁耦合厌氧氨氧化反应器及出水实物

Fig. 3 Floccus in the reactor and the effluent

$\text{kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$. 此时去除负荷迅速从 $0.077\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ 提高至 $0.121\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,去除率也从 60.8% 提高至 98.1%; 此后 6 ~ 10 d (第 II 阶段),将进水 pH 值调整为 8.0 时,负荷仍维持 $0.114\sim 0.137\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,硝态氮去除率为 66.1% ~ 72.8%,硝态氮去除负荷降低至 $0.078\sim 0.0985\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$. 11 ~ 17 d (第 III 阶段),进水负荷上升至 $0.143\sim 0.156\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,并降低 pH 值为 7.5,去除率提高至 85.6% ~ 99.7%,硝态氮去除负荷上升至 $0.114\sim 0.155\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$. 18 ~ 21 d (第 III 阶段) 保持进水氮负荷水平不变,将进水 pH 值提高至 7.8,去除率降低至 74.6% ~ 75.7%,脱氮负荷降低至 $0.110\sim 0.119\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$ (表 2); 第 22 d ~ 27 d,进水 pH 值降低至 7.5,并降低进水负荷为 $0.0980\sim 0.102\text{ kg}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{d})^{-1}$,此阶段去除率稳定在 98.8% ~ 99.9%,相应的脱氮负荷也接近于进水负荷. 28

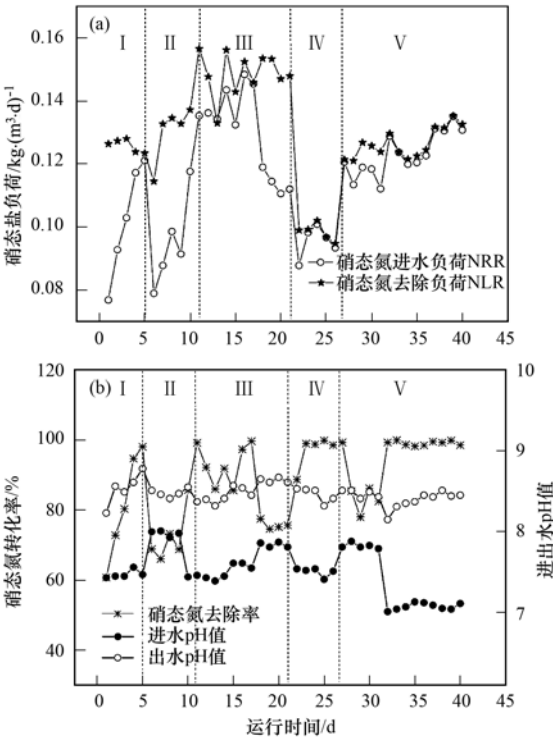
~32 d(第Ⅴ阶段)保持 pH 为 7.5,提高进水硝态氮负荷为 $0.121 \sim 0.126 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$,硝态氮去除率仍然为 78.0%~85.4%,脱氮负荷为 $0.098 \sim 0.108 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$;随后 33~40 d(第Ⅴ阶段)将进水 pH 调节至 7.0,保持进水氮负荷水平

不变时,去除率迅速提升至 98.2%~99.9%,脱氮负荷也提高至 $0.119 \sim 0.135 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$. 如图 4(b)所示,整个连续反应器运行过程中进水 pH 维持在 8.0 以下,出水 pH 始终保持在 8.3~8.5 范围内,出水 pH 较进水明显增加.

表 2 连续流实验硝酸盐转化情况

Table 2 Nitrate transformation in the CSTR

阶段	进水硝态氮 / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	进水 pH 值	脱氮速率 / $\text{kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$	氮气转化率 /%
I	52.41 ± 0.86	7.54 ± 0.35	0.102 ± 0.018	98.7 ± 0.8
II	54.31 ± 3.77	7.87 ± 0.24	0.100 ± 0.013	98.7 ± 1.6
III	61.98 ± 2.86	7.61 ± 0.20	0.129 ± 0.071	98.8 ± 1.8
IV	42.57 ± 1.44	7.56 ± 0.13	0.100 ± 0.011	90.3 ± 7.4
V	52.90 ± 1.95	7.30 ± 0.37	0.120 ± 0.012	98.6 ± 2.3

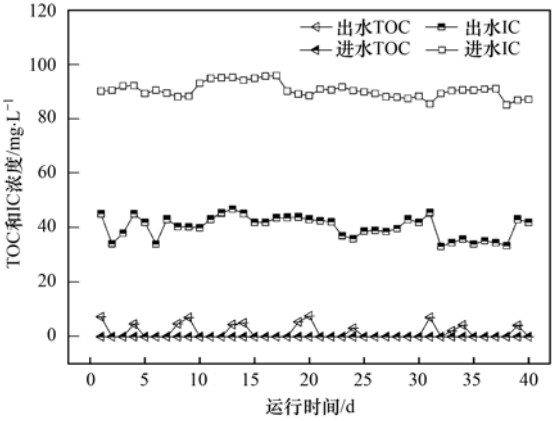


接种 30 g 的厌氧颗粒污泥(约为 $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$),14~18 目的铁屑 50 g(约为 $71 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$),水力停留时间 10 h,搅拌速度为 $150 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$,温度为 $35^\circ\text{C} \pm 0.5^\circ\text{C}$,进水 pH 7~8

图 4 零价铁供亚硝酸盐和氨的厌氧氨氧化脱氮能力及 pH 值变化

Fig. 4 Variation of pH value and nitrogen removal rate in the reaction between nitrate and ZVI

由图 5 可知,监测整个反应过程进出水溶解性有机碳(TOC)和无机碳(IC),进水 IC 为 $85.1 \sim 95.9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,出水 IC 为 $32.2 \sim 46.7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 与此同时,整个反应过程中出水 TOC 始终小于 $3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$.



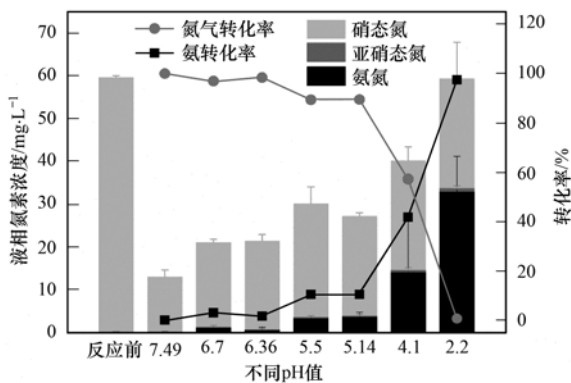
接种 30 g 的厌氧颗粒污泥(约为 $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$),14~18 目的铁屑 50 g(约为 $71 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$),水力停留时间 10 h,搅拌速度为 $150 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$,温度为 $35^\circ\text{C} \pm 0.5^\circ\text{C}$,进水 pH 7~8

图 5 零价铁供亚硝酸盐和氨的厌氧氨氧化脱氮 TOC 及 IC 变化
Fig. 5 Variation of IC and TOC in the reaction between nitrate and ZVI driven by ANAMMOX microbes

2.2 温度及 pH 值对反应的影响

在 pH 值为 2.2~7.5 的范围内,厌氧氨氧化污泥对零价铁还原硝酸的产物的影响情况如图 6 所示. 从中可知,当 pH 值为 7.49、6.70、6.36、5.50、5.14、4.1、2.2 时,硝酸盐的转化量分别为 46.61、39.73、38.89、33.01、36.24、33.94、33.91 $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$. 随着 pH 值由 7.49 降低至 5.14,反应体系中液相总氮损失呈现出先缓慢降低. 而从 5.14 降低至 2.2 过程中,液相总氮损失率从 89.41% 快速降低至 1.01%,此时随着 pH 值的降低,液相逐渐出现氨氮,其转化率从 0% 上升至 97.44%.

图 7 所示,在 $20 \sim 45^\circ\text{C}$ 条件下,厌氧氨氧化污泥对零价铁还原硝酸盐反应中产物的影响. 当温度为 $20 \sim 35^\circ\text{C}$ 时,添加了厌氧氨氧化的零价铁还原硝

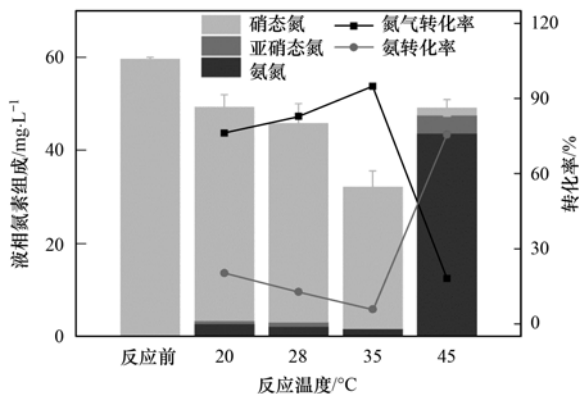


接种厌氧氨氧化污泥 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 温度为 $33^\circ\text{C} \pm 0.5^\circ\text{C}$,
振荡转速 $150 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$, 反应 10 h

图 6 不同初始 pH 值下添加厌氧氨氧化污泥的硝酸盐反应体系中产物生成情况

Fig. 6 Products of the reaction between nitrate and ZVI at different pH values

酸盐体系中液相总氮损失的效率逐步升高,并且始终保持较高的水平(76.17%~94.84%)。当温度为 45°C 时,液相总氮损失的效率急剧降低至 18.12%。厌氧氨氧化污泥对零价铁还原硝酸盐反应产物的影响在温度为 $20 \sim 45^\circ\text{C}$ 时较大,而温度超过其最适的生存范围^[27],并且化学反应更为强烈时,其还原产物主要为氨^[28]。



接种厌氧氨氧化污泥 $100 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 温度为 $33^\circ\text{C} \pm 0.5^\circ\text{C}$,
振荡转速 $150 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$, 反应 10 h

图 7 不同温度下添加厌氧氨氧化污泥的硝酸盐还原体系中产物生成情况

Fig. 7 Products of the reaction between nitrate and ZVI at different temperatures

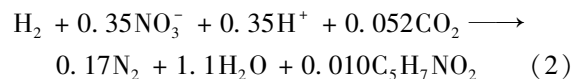
3 讨论

3.1 ANAMMOX 菌利用零价铁还原硝酸盐为氮气效果

由图 2~4 可见,ANAMMOX 菌能够利用零价铁将硝酸盐转化为氮气。连续运行 40 d 内,硝酸盐得

到大量的转化,而出水氨和亚硝酸盐几乎检测不到,因此推测硝酸盐以氮气形式损失。进水氮负荷为 $0.09 \sim 0.16 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$,脱氮负荷为 $0.08 \sim 0.15 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 。由于该反应为消耗碱度的过程,出水 pH 值保持较高水平,这导致了液相中可溶性总铁小于 $6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

有研究报道该体系中零价铁在中性条件下能释放出氢气,氢自养反硝化微生物利用氢气和硝酸盐反应生成氮气。析氢腐蚀耦合氢自养反硝化反应中氢自养反硝化作用如[公式(2)]所示,氢自养反硝化菌转化 $30 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 硝态氮仅同化 $0.85 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 氮,零价铁还原硝酸盐化学反应不可避免地发生,该反应会积累一定量的氨^[28~31]。而在本反应体系中并没有氨的积累,并且所用厌氧氨氧化污泥取自只含亚硝酸盐和氨的人工配水连续培养 2 500 d 的种泥反应器内,其污泥中主要微生物为厌氧氨氧化微生物,故排除该反应机制的可能。



通常情况下,硝酸盐被零价铁还原的产物以氨为主^[28~31],而本实验通过添加厌氧氨氧化微生物能有效解决该问题。由于零价铁还原硝酸盐过程中,硝酸盐逐步转化为亚硝酸盐和氨^[29~31],而厌氧氨氧化微生物能够利用这两种底物产生氮气^[1~3](图 8)。当体系中的硝酸盐被还原为亚硝酸盐时,便形成了零价铁还原亚硝酸盐化学反应和厌氧氨氧化菌利用生成的氨还原亚硝酸盐生物反应两种反应对亚硝酸盐底物进行的竞争。长期实验表明,在对这种底物的竞争中,厌氧氨氧化微生物的生物转化作用始终占优势,并且反应速率较快,这使得运行期间整个反应过程中始终监测不到亚硝酸盐和氨的积累。从转化硝酸盐及产物角度考察(图 2),ANAMMOX 菌利用零价铁转化硝酸盐为氮气是可行的,从厌氧氨氧化微生物本身的角度来看,长期运行期间 IC 始终降低而 TOC 监测不到,因此判断厌氧氨氧化微生物能够利用零价铁还原硝酸盐生成的亚硝酸盐和氨

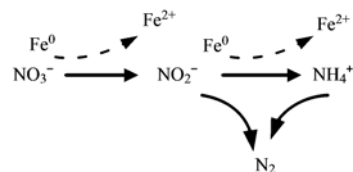


图 8 厌氧氨氧化微生物利用零价铁还原硝酸盐为氮气体系元素转化推测

Fig. 8 Deduced nitrate transformation pathway in the reaction between nitrate and ZVI driven by ANAMMOX microbes

进行生命活动。

通常铁屑长期浸泡在氧化还原电位较高的水体中容易氧化而失活,但本实验中零价铁在反应器启动时一次性投加,连续运行中并未出现反应效率大幅降低的情况。因此,零价铁耦合厌氧氨氧化有利于零价铁还原硝酸盐的反应。由于铁屑密度较大,采用全混式搅拌罐作为反应器时,其常沉于底部,导致与液相及污泥混合效果较差,因此该反应脱氮效果仍有较大提升空间。接下来的研究中,课题组将开展厌氧氨氧化微生物促进零价铁还原硝酸盐机制和反应器形式对 ANAMMOX 菌利用零价铁转化硝酸盐为氮气的相关研究。

3.2 ANAMMOX 菌利用零价铁还原硝酸盐为氮气的最佳条件

实验表明,厌氧氨氧化微生物对零价铁还原硝酸盐的产物的作用随着 pH 值改变。当 pH 值在 7.5~5.14 之间时,厌氧氨氧化污泥能够将零价铁还原体系中 89% 以上的硝酸盐以总氮形式损失,而当 pH 值小于 5 时,反应体系以化学反应为主。当 pH 值较低时,微生物活性随之丧失,无法作用于零价铁和硝酸盐反应体系,而化学反应却逐步强化^[31],因此低 pH 值环境下硝酸盐大部分转化为氨。而当中性条件下,由于在添加厌氧氨氧化污泥后,反应体系中存在较少的亚硝酸盐和氨,此时不存在足够的游离氨、游离亚硝酸盐对微生物反应进行抑制^[33,34]。温度对厌氧氨氧化微生物作用于零价铁还原硝酸盐的影响也呈现与微生物条件相一致的相应变化,其最佳温度为 35℃。厌氧氨氧化污泥对零价铁还原硝酸盐反应的最终产物的类型有决定性作用,当条件适合时,其液相总氮损失可达到 98%,而活性污泥只能达到 32.26%。但这种对硝酸盐还原产物的影响受环境条件所限制。

4 结论

(1) 厌氧氨氧化微生物对零价铁还原硝酸盐作用是持续有效的。在中性条件下,添加厌氧氨氧化微生物的零价铁还原硝酸盐体系中持续供给零价铁和硝酸盐,0~5 d 硝酸盐脱氮负荷达到 $0.12 \text{ kg} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{d})^{-1}$ 。反应出水氨和亚硝酸盐始终小于 $2.0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$,以液相总氮形式损失,出水 pH 较进水高值超过 8.0 并且可溶性铁含量始终小于 $7 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 。

(2) 零价铁还原硝酸盐供亚硝酸盐和氨的厌氧氨氧化脱氮反应为耗酸过程,在偏酸性条件下(pH

值为 4~6) 反应速度加快,并且液相总氮损失率大于 89%。pH 值小于 4 时,硝酸盐还原以化学反应为主导,最终产物为氨;pH 值大于 7 时,硝酸盐还原速率大幅降低;

(3) 中性条件下,反应温度在 30~40℃ 时,液相总氮损失率大于 89%。过低温度(低于 20℃)使得硝酸盐转化速率变慢,过高温度(高于 40℃)使得生物作用减弱,硝酸盐最终转化为氨。

参考文献:

- [1] van der Star W R L, Abma W R, Blommers D, et al. Startup of reactors for anoxic ammonium oxidation: experiences from the first full-scale ANAMMOX reactor in Rotterdam [J]. Water Research, 2007, **41**(18): 4149-4163.
- [2] Kuypers M M M, Sliekers A O, Lavik G, et al. Anaerobic ammonium oxidation by ANAMMOX bacteria in the Black Sea [J]. Nature, 2003, **422**(6932): 608-611.
- [3] Schmid M, Walsh K R, Wic R, et al. *Candidatus* "Scalindua brodae", sp. nov., *Candidatus* "Scalindua wagneri", sp. nov., two new species of anaerobic ammonium oxidizing bacteria [J]. Systematic and Applied Microbiology, 2003, **26**(4): 529-538.
- [4] De Brabandere L, Canfield D E, Dalsgaard T, et al. Vertical partitioning of nitrogen-loss processes across the oxic-anoxic interface of an oceanic oxygen minimum zone [J]. Environmental Microbiology, 2014, **16**(10): 3041-3054.
- [5] Strous M, Heijnen J J, Kuenen J G, et al. The sequencing batch reactor as a powerful tool for the study of slowly growing anaerobic ammonium-oxidizing microorganisms [J]. Applied Microbiology and Biotechnology, 1998, **50**(5): 589-596.
- [6] 陈重军, 王建芳, 张海芹, 等. 厌氧氨氧化污水处理工艺及其实际应用研究进展 [J]. 生态环境学报, 2014, **23**(3): 521-527.
- [7] 张正哲, 金仁村, 程雅菲, 等. 厌氧氨氧化工艺的应用进展 [J]. 化工进展, 2015, **34**(5): 1444-1452, 1458.
- [8] 郝晓地, 仇付国, van der Star W R L, 等. 厌氧氨氧化技术工程化的全球现状及展望 [J]. 中国给水排水, 2007, **23**(18): 15-19.
- [9] 张丽, 黄勇, 袁怡, 等. 硫酸盐/氨的厌氧生物转化试验研究 [J]. 环境科学, 2013, **34**(11): 4356-4361.
- [10] 袁怡, 黄勇, 李祥, 等. 硫酸盐还原-氨氧化反应的特性研究 [J]. 环境科学, 2013, **34**(11): 4362-4369.
- [11] 李祥, 黄勇, 袁怡, 等. 自养厌氧硫酸盐还原/氨氧化反应器启动特性 [J]. 化工学报, 2012, **63**(8): 2606-2611.
- [12] Clément J C, Shrestha J, Ehrenfeld J G, et al. Ammonium oxidation coupled to dissimilatory reduction of iron under anaerobic conditions in wetland soils [J]. Soil Biology and Biochemistry, 2005, **37**(12): 2323-2328.
- [13] Sawayama S. Possibility of anoxic ferric ammonium oxidation [J]. Journal of Bioscience and Bioengineering, 2006, **101**(1): 70-72.
- [14] Javanaud C, Michotey V, Guasco S, et al. Anaerobic ammonium oxidation mediated by Mn-oxides: from sediment to strain level [J]. Research in Microbiology, 2011, **162**(9): 848-857.

- [15] Güven D, Dapena A, Kartal B, *et al.* Propionate oxidation by and methanol inhibition of anaerobic ammonium-oxidizing bacteria [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2005, **71**(2): 1066-1071.
- [16] Kartal B, Rattray J, van Niftrik L A, *et al.* Candidatus "ANAMMOXoglobus propionicus" a new propionate oxidizing species of anaerobic ammonium oxidizing bacteria[J]. *Systematic and Applied Microbiology*, 2007, **30**(1): 39-49.
- [17] Oshiki M, Ishii S, Yoshida K, *et al.* Nitrate-dependent ferrous iron oxidation by anaerobic ammonium oxidation (ANAMMOX) bacteria[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2013, **79**(13): 4087-4093.
- [18] Strous M, Pelletier E, Mangenot S, *et al.* Deciphering the evolution and metabolism of an ANAMMOX bacterium from a community genome[J]. *Nature*, 2006, **440**(7085): 790-794.
- [19] Chang D Y, Chen T H, Liu H B, *et al.* A new approach to prepare ZVI and its application in removal of Cr(VI) from aqueous solution [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2014, **244**: 264-272.
- [20] Fan G P, Cang L, Qin W X, *et al.* Surfactants-enhanced electrokinetic transport of xanthan gum stabilized nanoPd/Fe for the remediation of PCBs contaminated soils[J]. *Separation and Purification Technology*, 2013, **114**: 64-72.
- [21] Yang G C C, Lee H L. Chemical reduction of nitrate by nanosized iron: kinetics and pathways [J]. *Water Research*, 2005, **39**(5): 884-894.
- [22] Suzuki T, Moribe M, Oyama Y, *et al.* Mechanism of nitrate reduction by zero-valent iron: Equilibrium and kinetics studies [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2012, **183**: 271-277.
- [23] 范潇梦, 关小红, 马军. 零价铁还原水中硝酸盐的机理及影响因素[J]. *中国给水排水*, 2008, **24**(14): 5-9.
- [24] Hwang Y H, Kim D G, Shin H S. Mechanism study of nitrate reduction by nano zero valent iron [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, **185**(2-3): 1513-1521.
- [25] 周健, 黄勇, 袁怡, 等. ANAMMOX 菌利用零价铁转化氨和硝酸盐实验[J]. *环境科学*, 2015, **36**(12): 4546-4552.
- [26] 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. 258-282.
- [27] 杨洋, 左剑恶, 沈平, 等. 温度、pH 值和有机物对厌氧氨氧化污泥活性的影响[J]. *环境科学*, 2006, **27**(4): 691-695.
- [28] Dejourmet T D, Alvarez P J J. Combined microbial-Fe(0) treatment system to remove nitrate from contaminated groundwater [J]. *Bioremediation Journal*, 2000, **4**(2): 149-154.
- [29] Lavania A, Bose P. Effect of metallic iron concentration on end-product distribution during metallic iron-assisted autotrophic denitrification[J]. *Journal of Environmental Engineering*, 2006, **132**(9): 994-1000.
- [30] Biswas S, Bose P. Zero-valent iron-assisted autotrophic denitrification[J]. *Journal of Environmental Engineering*, 2005, **131**(8): 1212-1220.
- [31] Huang Y H, Zhang T C. Effects of low pH on nitrate reduction by iron powder [J]. *Water Research*, 2004, **38**(11): 2631-2642.
- [32] 阳广凤, 金仁村, 余好, 等. 厌氧氨氧化工艺的抑制现象 [J]. *应用与环境生物学报*, 2012, **18**(3): 502-510.
- [33] Jin R C, Yang G F, Yu J J, *et al.* The inhibition of the ANAMMOX process: a review [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2012, **197**: 67-79.
- [34] Jung J Y, Kang S H, Chung Y C, *et al.* Factors affecting the activity of ANAMMOX bacteria during start up in the continuous culture reactor[J]. *Water Science and Technology*, 2007, **55**(1-2): 459-468.

CONTENTS

Air Pollutant Emission Inventory and Impact of Typical Industries on PM _{2.5} in Chengde	CHEN Guo-lei, ZHOU Ying, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (4069)
Pollution Characteristics and Emission Coefficient of Volatile Organic Compounds from Woodwork-making Industry in Zhejiang Province	YAO Yi, WANG Zhe-ming, HE Zhi-qiao, <i>et al.</i> (4080)
Emission Inventory of Anthropogenic VOCs and Its Contribution to Ozone Formation in Shanxi Province	YAN Yu-long, PENG Lin (4086)
Characteristics and Source Apportionment of VOCs of High Pollution Process at Chemical Industrial Area in Winter of China	GAO Song, CUI Hu-xiong, FU Qing-yan, <i>et al.</i> (4094)
Study and Application of Test Method for VOCs Emission Factor of Refueling in Service Station	HUANG Yu-hu, CHANG Yao-qing, REN Bi-qi, <i>et al.</i> (4103)
NH ₃ Emission Characteristics in Landfill Sites in Beijing	CUI Tong, LI Jin-xiang, YANG Yan-yan, <i>et al.</i> (4110)
Inventory and Characteristics of Anthropogenic Ammonia Emission in Xi'an	SU Hang, YAN Dong-jie, HUANG Xue-min, <i>et al.</i> (4117)
Pollution Characteristics of Non-methane Hydrocarbons During Winter and Summer in Foshan City	ZHOU Xue-ming, XIANG Ping, DUAN Jing-chun, <i>et al.</i> (4124)
Water-soluble Inorganic Ions in the Road Ambient Atmospheric Particles of Tianjin	ZHAO Meng-xue, WU Lin, FANG Xiao-zhen, <i>et al.</i> (4133)
Characteristics of Nitrogen Deposition in Daiyun Mountain National Nature Reserve	YUAN Lei, LI Wen-zhou, CHEN Wen-wei, <i>et al.</i> (4142)
Microbial Activity in Bioaerosols in Winter at the Coastal Region of Qingdao	MENG Xiang-bin, LI Meng-zhe, LI Hong-tao, <i>et al.</i> (4147)
Molecular and Carbon Isotopic Compositions of <i>n</i> -Alkanoic Acids in Smoke from Maize Straw Combustion	LIU Gang, SUN Li-na, XU Hui, <i>et al.</i> (4156)
Gas Transfer Velocity of CH ₄ at Extremely Low Wind Speeds	ZHANG Cheng, LÜ Xin-biao, LONG Li, <i>et al.</i> (4162)
Spectral Characteristics of Chromophoric Dissolved Organic Matter (DOM) from a Typical Reservoir Lake from Inland of Three Gorges Reservoir Areas: In the View of Riparian Ecosystem Analysis	CHEN Xue-shuang, JIANG Tao, LU Song, <i>et al.</i> (4168)
Characteristics and Pollution Source Analysis of Nutrients in Tributary Outlets of Xitaoxi Watershed	CHEN Shi-wen, YUAN Xu-yin, JIN Jing, <i>et al.</i> (4179)
Analysis of Driving Factors on the Nitrogen Decrease in the Early Stage of the Thermal Stratification in Main Area of Zhoucun Reservoir	ZHANG Chun-hua, HUANG Ting-lin, FANG Kai-kai, <i>et al.</i> (4187)
Characteristics of Organic Phosphorus Fractions in the Sediments of the Black Water Aggregation in Lake Taihu	DONG Dan-ping, ZHANG Ting-xi, ZHANG Ding-yu, <i>et al.</i> (4194)
Impacts of Multiple Disturbance on Migration and Transformation of Endogenous Phosphorus in Lake	CAI Shun-zhi, LI Da-peng, WANG Ren, <i>et al.</i> (4203)
Change of Soil Nitrogen Leaching with Summer Maize Growing Periods Under Plastic Film Mulched Cultivation in Danjiangkou Reservoir Area, China	WANG Wei, YU Xing-xiu, HAN Qiang, <i>et al.</i> (4212)
Nutrients Recovery on the Growth of Nitrogen and Phosphorus Starved <i>Microcystis aeruginosa</i>	YUE Dong-mei, LI Jie, XIAO Lin (4220)
Inactivation Efficiency and Mechanism of Three Dominant Fungal Spores in Drinking Groundwater by Chlorine	WEN Gang, ZHU Hong, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (4228)
Effect of Water Treatment Process on the Bacterial Multidrug Resistance in Drinking Water	MA Xiao-lin, LU Yang, WANG Yu, <i>et al.</i> (4235)
Characteristics of Disinfection By-products and Genotoxicity During Drinking Water Disinfection with Potassium Monopersulfate Compound Powder	AO Xiu-wei, LI Hao-jie, LIU Wen-jun, <i>et al.</i> (4241)
Heterogeneous Activation of Peroxymonosulfate with Three-dimensional Ordered Mesoporous Co ₃ O ₄ for the Degradation of Rhodamine B	FENG Shan-fang, DENG Si-ping, DU Jia-wen, <i>et al.</i> (4247)
Enhanced Mitigation of Membrane Fouling by Regulations on Floc Morphology in Electrocoagulation	ZHAO Kai, YANG Chun-feng, SUN Jing-qiu, <i>et al.</i> (4255)
Effect of Initial pH on Nitrogen Removal Performance and N ₂ O Emission of a Sequencing Batch CANON Reactor	FU Kun-ming, WANG Hui-fang, SU Xue-ying, <i>et al.</i> (4261)
Operational Characteristics of the Simultaneous Nitrogen and Phosphorus Removal and Removal of Phthalate Esters by Three-dimensional Biofilm-electrode Coupled with Iron/Sulfur Reactor	ZHANG Ya, HAO Rui-xia, XU Peng-cheng, <i>et al.</i> (4268)
Phosphorus Removal Mechanism of Sulfur/Sponge Iron Composite Fillers Based on Denitrification	FAN Jun-hui, HAO Rui-xia, LI Meng, <i>et al.</i> (4275)
Optimization of Denitrifying Phosphorus Removal Performance Based on ABR-MBR Combined Process	CHENG Chao-yang, ZHAO Shi-hui, LÜ Liang, <i>et al.</i> (4282)
Effect of Moderate and Room Temperature on Nitrogen Removal in PN-ANAMMOX Process	YUAN Yan, ZHU Liang (4289)
Influence of Biological Activated Carbon on Simultaneous Nitrification and Denitrification in Inflow with Different C/N Ratios	CUI Yan-ni, QIU Xin, ZHANG Qing-rong, <i>et al.</i> (4296)
Biotransformation of Nitrate to Nitrogen Gas Driven by ANAMMOX Microbes via Zero-valent Iron Under Anaerobic Conditions	ZHOU Jian, WANYAN De-qing, HUANG Yong, <i>et al.</i> (4302)
A Comparative Study on Performance of an Intermittent Aeration SBR and a Traditional SBR for Treatment of Digested Piggery Wastewater	DONG Bao-gang, SONG Xiao-yan, LIU Rui, <i>et al.</i> (4309)
Biological Pre-treatment of Surplus Sludge Using the Protease-secreting Bacteria	HE Pin-jing, WANG Ying, HU Jie, <i>et al.</i> (4317)
Transfer and Fate of Polybrominated Diphenyl Ethers in an Electrical Equipment Dismantling Area Using a Multimedia Fugacity Model	XUE Nan-dong, CHEN Xuan-yu, YANG Bing, <i>et al.</i> (4326)
Distribution Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Environmental Media in Nanning City	MIAO Ying, KONG Xiang-sheng (4333)
PBDEs Levels in House Dust and Human Exposure to PBDEs via Dust Ingestion in Hangzhou	JIN Man-tong, TENG Dan-dan, ZHENG Yan-xia, <i>et al.</i> (4341)
Evaluating Biochar-Water Sorption Coefficients of Pharmaceutically Active Compounds by Using a Linear Free Energy Relationship	WANG Jia-yi, BI Er-ping (4349)
Characteristics of Bacterial Communities in Surface-flow Constructed Wetlands	WEI Jia-ming, CUI Li-juan, LI Wei, <i>et al.</i> (4357)
Community Structure and Activity Analysis of the Nitrifiers in Raw Sewage of Wastewater Treatment Plants	YU Li-fang, DU Qian-qian, FU Xue-tao, <i>et al.</i> (4366)
Effects of Fertilization on Soil Microbial Abundance and Community Structure at DNA and cDNA Levels in Paddy Soils	WANG Cong, WU Ne, HOU Hai-jun, <i>et al.</i> (4372)
Effects of Bisphenol A on Characteristics of Paddy Soil Microbial Community Under Different Cultural Conditions	LIU Chang, HUANG Ya-dan, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (4380)
Identification of a Facultative Bacterium Strain with the Ability to Methylate Mercury Under Both Aerobic and Anaerobic Conditions	TAO Lan-lan, XIANG Yu-ping, WANG Ding-yong, <i>et al.</i> (4389)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Vegetable Soils in Beijing	ZHANG Lan-he, WANG Jia-jia, HA Xue-jiao, <i>et al.</i> (4395)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Sika Deer Farm	HUANG Fu-yi, AN Xin-li, CHEN Qing-lin, <i>et al.</i> (4402)
Comparison of Toxic Effect of Siliceous Mineral Dusts on Lung Epithelial A549 Cells	HUO Ting-ting, DONG Fa-qin, DENG Jian-jun, <i>et al.</i> (4410)
Effect of Adding Compound Adsorbent on Phenanthrene and Cr(VI) Absorption by Lou Soil	LI Wen-bin, MENG Zhao-fu, WU Qiong, <i>et al.</i> (4419)
Effect of Biochar on Adsorption Behavior of Nonylphenol onto Loess Soil in Northwest China	ZHANG Zhen-guo, JIANG Yu-feng, MU Zhong-feng, <i>et al.</i> (4428)
Soil Respiration in Response to Different Ridge/Furrow Ratios and Its Relationship with Soil Moisture and Temperature Under Ridge-Furrow Planting Patterns	WANG Chang-jiang, SHI Cheng-xiao, FENG Fan, <i>et al.</i> (4437)
Effects of Straw in Combination with Reducing Fertilization Rate on Soil Nutrients and Enzyme Activity in the Paddy-Vegetable Rotation Soils	HUANG Rong, GAO Ming, WAN Yi-lin, <i>et al.</i> (4446)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 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)

2016年11月15日 第37卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 11 Nov. 15, 2016

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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行