

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第5期

Vol.38 No.5

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

南京工业区分夏季二次有机气溶胶浓度估算及来源解析 ..... 刘静达,安俊琳,张玉欣,师远哲,林旭 (1733)

南京北郊大气细粒子在人体呼吸系统沉积特性 ..... 梁静舒,安俊琳,王红磊,张玉欣,王俊秀,施双双,王潇 (1743)

广西北海涠洲岛春季大气颗粒物浓度特征及影响因素 ..... 高元官,张凯,王体健,陈志明,耿红,孟凡 (1753)

神农架大九湖大气中的多环芳烃 ..... 金梦云,邢新丽,柯艳萍,郑煌,胡天鹏,孙焰,丁洋,李绘,张泽洲,祁士华 (1760)

沧州市春季 NMHCs 空间分布特征 ..... 段菁春,周雪明,张鹤丰,谭吉华,胡京南,柴发合 (1769)

北京市民用燃煤烟气中气态污染物排放特征 ..... 梁云平,张大伟,林安国,马召辉,邹晓东 (1775)

生活垃圾堆肥设施 VOCs 排放特征及臭氧生成潜势分析 ..... 邵珠泽,郑国砥,王元刚,高定,朱彦莉,陈同斌,聂二旗 (1783)

低温等离子体对复合 CVOCs 的降解特性 ..... 姜理英,张迪,郭海倩,缪晶晶,陈怡伶,李慧 (1792)

运城市道路扬尘化学组成特征及来源分析 ..... 武媛媛,李如梅,彭林,端允,王海京,李颖慧,白慧玲,牟玲 (1799)

高架道路周边建筑物灰尘重金属污染风险:以常州市为例 ..... 姚静波,王明新,齐今笛,孙向武,张文艺 (1807)

上海降水中氢氧同位素特征及与 ENSO 的关系 ..... 董小芳,邓黄月,张杰,朱志鹏,王琳,郑祥民,周立旻 (1817)

DOC + CDPF 对重型柴油车排放特性的影响 ..... 张允华,楼狄明,谭丕强,胡志远 (1828)

我国重点城市饮用水中砷健康累积风险评价 ..... 张秋秋,潘申龄,刘伟,张昱,安伟 (1835)

基于 Monte Carlo 模拟法对水源水体中微囊藻毒素的健康风险评估 ..... 王阳,徐明芳,耿梦梦,黎明,陈耕南 (1842)

北京城区水体中 PPCPs 的分布特征及潜在风险 ..... 张盼伟,周怀东,赵高峰,李昆,赵晓辉,刘巧娜,任敏,赵丹丹,李东佼 (1852)

长江口及邻近海域春夏季有色溶解有机物时空分布特征及主要影响因素 ..... 孙语嫣,白莹,苏荣国,石晓勇 (1863)

垃圾填埋有色溶解性有机质与铜络合机制 ..... 肖骁,何小松,高如泰,席北斗,张慧,黄彩红,李丹,袁志业 (1873)

3 种生物滞留设计对城市地表径流溶解性氮的去除作用 ..... 李立青,胡楠,刘雨情,涂声亮,陈华超 (1881)

三峡库区小流域稻田空间格局对氮磷流失影响 ..... 陈成龙,高明,倪九派,谢德体,邓华 (1889)

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N 负荷对树皮填料人工湿地早期反硝化及释碳速率的影响 ..... 姜应和,李瑶,张莹,张翔凌 (1898)

湿地基质及阴极面积对人工湿地型微生物燃料电池去除偶氮染料同步产电的影响 ..... 李薛晓,程思超,方舟,李先宁 (1904)

阳极材料对 6 L 微生物燃料电池性能及有机废水处理效果的影响 ..... 丁为俊,于立亮,陈杰,成少安 (1911)

臭氧-混凝交互作用对水体有机物的影响 ..... 刘海龙,付晶森,郭雪峰,柴建恬,张忠民 (1918)

紫外线和次氯酸钠对 *Escherichia coli* 和 Poliovirus 的消毒作用 ..... 徐丽梅,张崇森,王晓昌,吉铮,周进宏 (1928)

不同沉淀 pH 值条件下制备的水合氧化铝对水中磷酸盐的吸附作用 ..... 王星星,林建伟,詹艳慧,张志斌,邢云青,姜博汇,储鸣 (1936)

树脂基纳米钛铝氧化物复合吸附剂同步去除水中磷和氟 ..... 陈家凯,聂广泽,刘志英,姚远,徐炎华 (1947)

灼烧净水污泥投加方式对磷吸附和磷形态的影响 ..... 朱培颖,李大鹏,于胜楠 (1957)

城市污水管网中污染物冲刷与沉积规律 ..... 桑浪涛,石烜,张彤,付博文,金鹏康 (1965)

11 种邻苯二甲酸酯在好氧污水处理系统中的归趋 ..... 周林军,古文,刘济宁,石利利,徐炎华 (1972)

反硝化抑制硫酸盐还原的工艺特性 ..... 金鹏康,杨珍瑞,李蓉,李岩,周立辉 (1982)

Fe<sup>(0)</sup>-活性炭强化短程反硝化脱氮及影响因素 ..... 吕永涛,刘婷,曾玉莲,孙婷,张瑶,王磊 (1991)

两种不同抑制策略下部分亚硝化系统运行特性比较 ..... 李惠娟,彭党聪,陈国燕,王博,姚倩,卓杨 (1997)

基质比对 ABR 厌氧氨氧化工艺脱氮性能的影响 ..... 闰刚,徐乐中,沈耀良,吴鹏,张婷, Samwine Thomas (2006)

温度对 SCSC-S/Fe 复合系统脱氮除磷及微生物群落特性的影响 ..... 范军辉,郝瑞霞,朱晓霞,万京京,刘思远,王丽沙 (2012)

SCAR 处理城市生活污水的效能及其微生物群落动态分析 ..... 杨波,徐辉,冯修平,李方,田晴,马春燕 (2021)

喹啉降解菌 *Ochrobactrum* sp. 的好氧降解特性及其在焦化废水中的生物强化作用 ..... 徐伟超,吴翠平,张玉秀,张琪,张怡鸣 (2030)

锰氧化菌 *Arthrobacter* sp. HW-16 的锰氧化特性和氧化机制 ..... 万文结,薛芷筠,张泽文,何冬兰 (2036)

温度对海洋厌氧氨氧化菌脱氮效能的影响 ..... 周同,于德爽,李津,吴国栋,王晓静 (2044)

包埋固定化活性污泥脱氮特性与微生物群落分析 ..... 许晓毅,尤晓露,吕晨培,王斌,胡碧波 (2052)

强化两相污泥高固厌氧消化系统的微生物群落 ..... 曹知平,吴静,左剑恶,王晓璐,王翀,王广启,王凯军,钱易 (2059)

三峡库区城乡消落带人工植被恢复土壤放线菌多样性特征 ..... 秦红,任庆水,杨文航,李昌晓 (2065)

川中丘陵区农田源头沟渠玉米季中氧化亚氮排放及其影响因素 ..... 田琳琳,朱波,汪涛,赵原,董宏伟,任光前,胡磊 (2074)

双氰胺对冬闲稻田和油菜地 N<sub>2</sub>O 排放的影响 ..... 伍延正,张苗苗,秦红灵,陈春兰,王娟,魏文学,李勇 (2084)

生物炭介导的不同地表条件下土壤 N<sub>2</sub>O 的排放特征 ..... 邹娟,胡学玉,张阳阳,张迪,陈威,王向前,陈窈君,刘扬 (2093)

垄作秸秆覆盖下西南地区蚕豆田土壤呼吸与有机碳特征 ..... 熊瑛,王龙昌,杜娟,赵琳璐,周泉,张赛 (2102)

广东省土壤 Cd 含量空间分布预测 ..... 孙慧,郭治兴,郭颖,袁宇志,柴敏,毕如田,杨静 (2111)

宿鸭湖沉积物重金属空间分布及潜在生态风险评价 ..... 张鹏岩,康国华,庞博,郭依,何坚坚,秦明周 (2125)

腐殖酸活性组分及其比例对紫色潮土中铅形态转化和有效性演变动态的影响 ..... 王青清,蒋珍茂,王俊,魏世强 (2136)

紫色水稻土颗粒有机质对重金属的富集特征 ..... 李秋言,赵秀兰 (2146)

生物炭增强黄绵土对西替利嗪的吸附作用 ..... 吴志娟,毕二平 (2154)

两种木材生物炭对铜离子的吸附特性及其机制 ..... 王彤彤,马江波,曲东,张晓媛,郑纪勇,张兴昌 (2161)

牛粪源粪炭及其生物炭对 Pb<sup>2+</sup>、Cd<sup>2+</sup> 的吸附特性 ..... 杜文慧,朱维琴,潘晓慧,沈旭阳,陈思远,陈可乐,坎吉汗·木沙拉,张杭君,丁颖 (2172)

C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/BiOBr 复合可见光催化剂的性能及其作用机制 ..... 鲍玥,周旻昀,邹骏华,史宇滨,万先凯,史惠祥 (2182)

《环境科学》征稿简则(2020) 《环境科学》征订启事(2035) 信息(1782, 1798, 1827)

## 反硝化抑制硫酸盐还原的工艺特性

金鹏康<sup>1</sup>, 杨珍瑞<sup>1</sup>, 李蓉<sup>1,2</sup>, 李岩<sup>3</sup>, 周立辉<sup>3</sup>

(1. 西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 西安 710055; 2. 包头市财政性投资评审中心, 包头 014030; 3. 中国石油长庆油田公司油气工艺研究院, 西安 710055)

**摘要:** 本实验通过建立一套两级串联 UASB 反应器研究油田集输系统及高含盐量废水中反硝化抑制硫酸盐还原的工艺处理特性, 并在工艺稳定运行后对形成的颗粒污泥性状及微生物特性进行研究. 结果表明, 添加  $\text{NaNO}_2$  可促使反应体系中反硝化细菌 (denitrifying bacteria, DNB) 数量由  $7.0 \times 10^3 \text{CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$  增加至  $7.3 \times 10^5 \text{CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$  并保持稳定, DNB 对硫酸盐还原菌 (sulfate-reducing bacteria, SRB) 的竞争抑制作用导致 SRB 数量由  $8.0 \times 10^5 \text{CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$  减少, 稳定至  $7.6 \times 10^4 \text{CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$ , 同时, 硫酸盐还原过程被抑制, 硫离子的抑制率不断增加, 最终稳定至 82%. 生物量与亚硝酸盐的质量比为 1 200 时, 反应体系对  $\text{S}^{2-}$  的抑制率最高, 达到 92%, 可实现较好的硫酸盐还原过程抑制效果; 该工艺对其抑制率可保持在 92% 左右, 具有较好的稳定性. 形成的反硝化颗粒污泥为棕褐色, 基本为椭球形和球形, 表面光滑且密实. 反硝化抑制前, 颗粒污泥的粒径多分布于 1.0 ~ 1.4 mm, 平均粒径为 1.17 mm, 经反硝化抑制后, 粒径多分布在 1.2 ~ 1.6 mm, 平均粒径为 1.21 mm, 反硝化抑制过程促进污泥粒径的小幅增加; 形成的反硝化颗粒污泥平均沉速为  $47.6 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ , 沉降性能较好. PCR-DGGE 分析结果表明, 反硝化抑制作用使微生物菌种由 18 种减少至 14 种, 优势菌种由 4 种减至 3 种, 多样性降低, 反硝化抑制前后微生物种群相似性为 62.6%, 种群结构发生较大改变, 优势菌群由 SRB 演变为 DNB, SRB 优势菌种由 4 种减至 2 种, 同种菌的丰度明显降低; 反硝化抑制过程的主要功能菌为 Uncultured *Sulfurimonas* sp., 是一种自养型反硝化细菌, 与 SRB 抢夺电子并占优势, 抑制硫酸盐还原过程及 SRB 生长繁殖, 从而抑制硫化物的产生.

**关键词:** 反硝化; 硫酸盐还原菌 (SRB); 反硝化细菌 (DNB); 颗粒污泥; PCR-DGGE

中图分类号: X703.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)05-1982-09 DOI: 10.13227/j.hjkk.201611097

## Characteristics of Denitrification Inhibiting Sulfate Reducing Process

JIN Peng-kang<sup>1</sup>, YANG Zhen-rui<sup>1</sup>, LI Rong<sup>1,2</sup>, LI Yan<sup>3</sup>, ZHOU Li-hui<sup>3</sup>

(1. School of Environmental and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China; 2. Baotou Financial Investment and Assessment Center, Baotou 014030, China; 3. Oil and Gas Technology Research Institute, Changqing Oil Field Company, Xi'an 710055, China)

**Abstract:** In this study, a set of two-stage UASB reactor was used to study the characteristics of denitrification inhibiting sulfate reduction in oil field gathering and transportation system and some high salt wastewater, and the characteristics of granular sludge and microbial characteristics were studied after the stable operation of the process. The results showed that the addition of  $\text{NaNO}_2$  increased the number of denitrifying bacteria (DNB) from  $7.0 \times 10^3 \text{CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$  to  $7.3 \times 10^5 \text{CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$  and remained stable in the process from start to mature. The competitive inhibition caused by DNB decreased the number of SRB from  $8.0 \times 10^5 \text{CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$  to  $7.6 \times 10^4 \text{CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$ . Meanwhile, the sulfate reduction was inhibited, and the inhibition rate increased and finally stabilized to 82%. The study on mass ratio of microbial mass to nitrite effecting on denitrification efficiency showed that the inhibition rate of  $\text{S}^{2-}$  was the highest, reaching 92%, when the mass ratio was 1200. The inhibition rate of the process could remain at about 92%, with good stability. The particle size and sedimentation rate of granular sludge were measured to determine whether the process conditions were favorable for the formation of granular sludge. The study showed that the denitrifying granular sludge formed was brown, basically ellipsoidal and spherical, with smooth surface and high density. Before the denitrification inhibition, the particle size of granular sludge was 1.0-1.4 mm and the average diameter was 1.17 mm, and after denitrification inhibition, the particle size distribution was 1.2-1.6 mm, the average particle size was 1.21 mm, which indicated that the denitrification inhibition increased the size of granular sludge. The average sedimentation velocity of denitrifying granular sludge was  $47.6 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ , which revealed the good settling performance of the granular sludge. The results of PCR-DGGE analysis showed that the denitrification inhibition reduced the number of microbial species from 18 to 14 and the number of dominant species decreased from 4 to 3, indicating the decreasing microbial diversity. The similarity of microbial population before and after nitrification was 62.6% and the population structure changed greatly from SRB to DNB. The number of dominant SRB species decreased from 4 to 2 after denitrification inhibition and the abundance of every species decreased obviously. The main functional bacterial species of the inhibition process was uncultured *Sulfurimonas* sp., which is a kind of autotrophic denitrifying bacteria. It dominated and competed with SRB for electrons, inhibiting the sulfate reduction

收稿日期: 2016-11-11; 修订日期: 2016-12-14

基金项目: 国家自然科学基金项目 (50978211)

作者简介: 金鹏康 (1974 ~), 男, 博士, 教授, 主要研究方向为水与废水的深度处理技术, E-mail: pkjin@hotmail.com

and the production of sulfide.

**Key words:** denitrification; sulfate-reducing bacteria (SRB); denitrifying bacteria (DNB); granular sludge; PCR-DGGE

油田集输系统及废水含盐量高,且为厌氧环境,容易滋生大量的硫酸盐还原菌(sulfate-reducing bacteria, SRB)。该细菌通过硫酸盐还原作用将硫酸盐还原为 $H_2S$ 等硫化物, $H_2S$ 易对管道及设备造成腐蚀,且危害人体健康,存在很大的安全问题<sup>[1]</sup>,同时,SRB的代谢产物与水中一些离子沉淀成为污垢,造成二次开采的困难<sup>[2]</sup>。

化学方法是控制SRB的最简单迅速的方法<sup>[3]</sup>,常用的化学杀菌剂有戊二醛、四羟甲基硫酸磷等,但投加的杀菌剂均具有毒性及较高的环境污染风险<sup>[4-6]</sup>,同时,长期使用杀菌剂使SRB产生抗性<sup>[7-10]</sup>,需要不断改变其浓度或更换药剂,这不仅增加成本,且无法达到预期的处理效果。近年来,微生物抑制SRB的方法受到许多学者关注,即通过投加生物抑制剂,如硝酸盐、亚硝酸盐等促进系统中本源微生物特别是反硝化细菌(denitrifying bacteria, DNB)的生长<sup>[11]</sup>,DNB对SRB的竞争抑制作用<sup>[12]</sup>会降低SRB活性甚至使其数量减少,使通过硫酸盐还原作用产生的硫化物浓度降低<sup>[13]</sup>。该方法费用少,操作简便,效果明显,对环境影响小,受到广泛的关注和运用。

邵涛等<sup>[14]</sup>的研究表明,投加硝酸盐、亚硝酸盐和钼酸盐,对油田采出水SRB的生长都有不同程度的抑制作用,而同等浓度的抑制效果表现为亚硝酸钠>硝酸钠>钼酸钠;李岩等<sup>[15]</sup>通过研究 $SO_4^{2-}/NO_3^-$ 比值对反硝化抑制效果的影响,发现当 $SO_4^{2-}/NO_3^-$ 比值为8:1.2时,反硝化细菌对硫酸盐还原过程的抑制效果最好;Sturman等<sup>[16]</sup>向油井和气井中注入 $NO_2^-$ 来控制酸化的产生,向气井中连续36h注入亚硝酸盐,可以控制采出气中硫化氢处于低浓度达7个月之久。

前人对于亚硝酸钠抑制硫酸盐还原的研究主要集中于抑制剂的选择、抑制剂的投加量和现场应用的效果,对反硝化抑制硫酸盐还原的机制研究较少。本实验在其研究基础上,通过在反应器中增设回流,以增加水流对污泥的水力冲刷,促进反硝化颗粒污泥的形成,实现对反硝化抑制硫酸盐还原工艺的改进,工艺成熟后研究生物量与亚硝酸盐质量比对工艺效果的影响以及工艺的稳定性,对在该工艺条件下形成的反硝化颗粒污泥性状进行研究,以评判该工艺条件是否有利于反硝

化颗粒污泥的形成,并通过PCR-DGGE技术研究颗粒污泥内生物群落分布情况,探究反硝化抑制硫酸盐还原的机制,对该工艺的进一步研究起指导作用。

## 1 材料与方法

### 1.1 实验装置

本研究的实验装置如图1所示。实验采用的反应器为上流式厌氧污泥床(up-flow anaerobic sludge bed, UASB),其内部的厌氧环境及水流流态可很好地模拟油井环境。该实验装置由两个UASB串联而成。UASB-1可为UASB-2提供稳定的 $S^{2-}$ 浓度;加药箱中为配好的 $NaNO_2$ 溶液,投加至UASB-2中以促进DNB的生长,抑制SRB活性,从而抑制硫酸盐还原产生硫化物的过程。

每天进水40 L,采用连续流以满足系统内生物生长所需要的条件。柱塞泵首先将原水提升进入UASB-1, HRT = 6.95 h, 随后进入UASB-2, HRT = 4.49 h, 反硝化抑制期间,向UASB-2中投加 $NaNO_2$ , 加药流量为 $15.0 mL \cdot h^{-1}$ 。袁宏林<sup>[17]</sup>的研究中指出,生物颗粒污泥相比于絮状污泥具有处理效率高、生物密度高、生物相丰富、沉降性能好,有助于后期固液分离等优点,因此,本实验中通过增设回流系统,采用蠕动泵回流部分出水,利用回流产生的强大的水流冲力使污泥与原水充分接触,为颗粒污泥的形成提供水力条件。两个UASB反应器的回流流量均为 $18 L \cdot d^{-1}$ 。

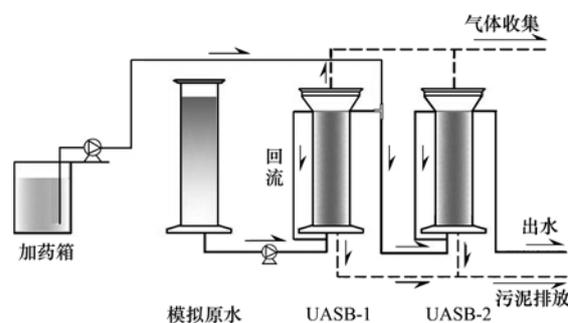


图1 实验装置示意

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental device

### 1.2 实验用水

本研究实验用水均采用人工配水,模拟油田现场水质,原水水质如表1所示。为保证反应器逐步适应油田高负荷原水,分三个阶段对负荷提升。

表 1 原水水质/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$   
Table 1 Raw water quality/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$

项目	第一阶段	第二阶段	第三阶段
COD	300	900	1 500
$\text{NH}_4^+$	6.43	19.29	32.15
TP	3.07	9.21	15.35
$\text{SO}_4^{2-}$	300	900	1 500
pH	5.5~7.5		

### 1.3 测定项目及方法

COD、 $\text{NH}_4^+$ 、TP、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{S}^{2-}$  的测定均采用文献[18]所规定的国家标准方法。pH: PHS-3 精密数显 pH 计。

SRB 菌数测定<sup>[19-21]</sup>: 采用绝迹稀释法, 即将待测水样逐级注入测试瓶, 经室温静置培养 7 d 后根据测试瓶阳性反应及稀释倍数计算 SRB 数量。

DNB 菌数测定: DNB 的测定采用“多管发酵法”<sup>[14,22,23]</sup>。培养基成分:  $\text{KNO}_3$  2 g,  $\text{K}_2\text{HPO}_4$  1.0 g,  $\text{MgSO}_4\cdot 7\text{H}_2\text{O}$  0.2 g,  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  1.0 g, 柠檬酸钠 5.0 g, 溶于 1 000 mL 蒸馏水, 调节 pH 至 7.2。吸取 1 mL 样品稀释液于灭菌培养基试管中, 每个梯度接种 3~5 管, 4~6 个梯度, 另接种 1 mL 无菌水作为对照。25~30℃ 恒温培养 14 d。将有菌液生长的最后 3 个稀释度中呈阳性反应的试管数作为数量指标。

污泥容积指数 (SVI): 采用自由沉降及重量法测定, 具体操作方法见文献[24]。

颗粒污泥粒径分布: 湿式筛分析法<sup>[25]</sup>。从反应器内取一定量污泥, 用水冲洗后使之依次通过孔径为 2.4、2.2、2.0、1.8、1.6、1.4、1.2、1.0、0.8、0.6、0.4 和 0.2 mm 的分样筛, 将各个分样筛截留的污泥在 105℃ 下烘干、称重, 计算不同粒径范围污泥的质量比。

颗粒污泥沉速<sup>[26]</sup>: 通过自由沉淀法测定。取一容积 > 1L 的量筒, 测量其高度并加满水, 分别取一定量 (20~30 个) 的各粒径范围的颗粒污泥加入量筒, 测量每个颗粒污泥从量筒顶部沉降到底部所用的时间, 利用  $v = h/t$  计算沉速,  $h$  为量筒顶部到底部的距离,  $t$  为从量筒顶部到底部所用时间, 然后取其均值作为此粒径范围颗粒污泥的沉速。

样品总 DNA 提取: DNA 通过 OMEGA Soil DNA kit 试剂盒的操作步骤提取。

PCR-DGGE: 针对微生物基因 V3 区片段的 338F (5'-ACTCCTACGGGAGGCAGC-3'), 518R (5'-ATTACCGCGCTGCTGG-3'), 引物末端带 GC 夹。实验程序见文献[27]。

## 2 结果与讨论

### 2.1 反应器启动

接种污泥选取自西安市某污水厂厌氧反应池中的絮状污泥。启动过程逐步提升原水  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度, 开始为  $300 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 31 d 提升至  $900 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , 61 d 提升至  $1 500 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。图 2 为反应器启动过程中 UASB-2 中  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度变化情况, 从中可知, UASB-2 进水  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度比原水中略低, 这是由于两反应器为串联, 原水先流经 UASB-1, 在其内原水中营养物质经过少量消耗, 而后进入 UASB-2, 此时各项水质指标相对于原水均有一定程度的降低。UASB-2 中  $\text{SO}_4^{2-}$  去除率基本呈增加趋势, 最终在 75 d 稳定至 93%。图 3 为反应器启动过程 UASB-2 进水的 COD 及  $\text{S}^{2-}$  浓度, 其中 COD 浓度与进水中  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度类似, 均相对于原水有一定程度减少, 进水中  $\text{S}^{2-}$  逐渐增加, 并稳定至  $102 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  左右。图 4 为启动过程 UASB-2 中 SRB 数量变化情况, 从中可知, 随着培养时间的增加, UASB-2 中 SRB 数量由  $2.0 \times 10^3 \text{ CFU}\cdot(100 \text{ mL})^{-1}$  逐渐增加, 在 75 d 稳定至  $8.0 \times 10^5 \text{ CFU}\cdot(100 \text{ mL})^{-1}$ , 表明 SRB 已完成驯化, 反应器成功启动。此时污泥已颗粒化, 说明反应器中增设的回流对颗粒污泥的形成起一定的促进作用。

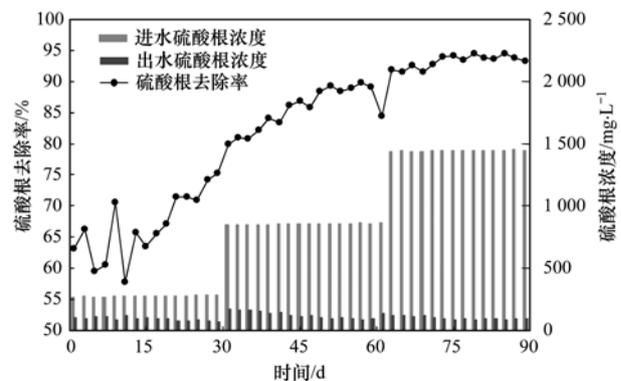


图 2 启动阶段 UASB-2 中  $\text{SO}_4^{2-}$  变化情况

Fig. 2 Change of  $\text{SO}_4^{2-}$  in UASB-2 during start-up

### 2.2 工艺处理特性

#### 2.2.1 工艺稳定过程

反应器启动成功后, 于 UASB-2 中投加  $\text{NaNO}_2$  以促进反硝化颗粒污泥的形成及对 SRB 的抑制。李岩<sup>[10]</sup>等人提出, 当  $\text{SO}_4^{2-}/\text{NO}_3^-$  比值为 8:1.2 时, 反硝化对硫酸盐还原的抑制效果最好, 因此, 本实验控制  $\text{NO}_2^-$  浓度为  $222 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。分阶段提升其浓度, 最终调至  $222 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。图 5、6 表征反硝化抑制过程 UASB-2 中  $\text{S}^{2-}$  浓度及细菌数量变化情况。

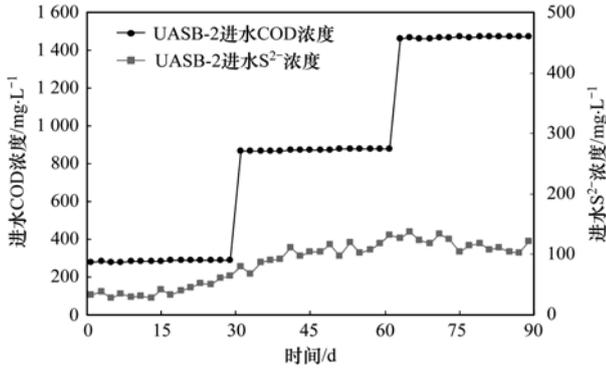


图3 启动阶段 UASB-2 中进水水质指标

Fig. 3 Changes of water quality in UASB-2 during start-up

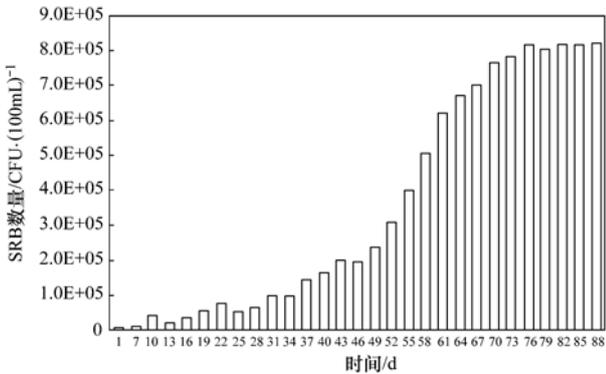


图4 启动阶段 UASB-2 中 SRB 数量变化

Fig. 4 Change of SRB quantity in UASB-2 during start-up

硫离子抑制率表征 DNB 对硫酸盐还原的抑制程度. 由图 5 可知,进水硫离子浓度基本稳定于  $103 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ,出水硫离子浓度随培养时间的增加不断降低,其抑制率稳步增加,培养至 162 d 时,硫离子浓度为  $18.4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , $\text{S}^{2-}$  抑制率为 82%,继续运行,出水  $\text{S}^{2-}$  浓度及抑制率基本不变,说明此时 DNB 已适应环境中  $\text{NO}_2^-$  浓度,该工艺处于稳定阶段.

图 6 反映污泥形成过程中 SRB 及 DNB 的数量变化情况,颗粒污泥中 SRB 数量随培养时间的增加不断减少,同时, DNB 数量增加. 从中可知,该工艺的稳定过程分 3 个阶段. 反硝化抑制初期细菌浓度变化缓慢, SRB 数量由  $8.0 \times 10^5 \text{ CFU}\cdot(100 \text{ mL})^{-1}$  缓慢降低, DNB 数量由  $7.0 \times 10^3 \text{ CFU}\cdot(100 \text{ mL})^{-1}$  缓慢增加,此时  $\text{NO}_2^-$  只是抑制 SRB 的活性, DNB 逐渐适应  $\text{NO}_2^-$  浓度,活性逐渐增加; 116 d 时提升  $\text{NO}_2^-$  浓度,进入抑制效果提升期,两种细菌的数量在该时期内变化显著, DNB 繁殖速率增加, SRB 由于缺乏能量等环境胁迫因素,数量急剧下降; 146 d 时继续提高  $\text{NO}_2^-$  浓度,进入抑制效果平稳期,两种细菌的数量趋于稳定, 162 d 时, DNB 数量增加至最高,为  $7.3 \times 10^5 \text{ CFU}\cdot(100 \text{ mL})^{-1}$ , SRB 数量减至最

小,为  $7.6 \times 10^4 \text{ CFU}\cdot(100 \text{ mL})^{-1}$ ,此时,反硝化抑制硫酸盐还原的工艺已稳定,反硝化颗粒污泥已培养成熟.

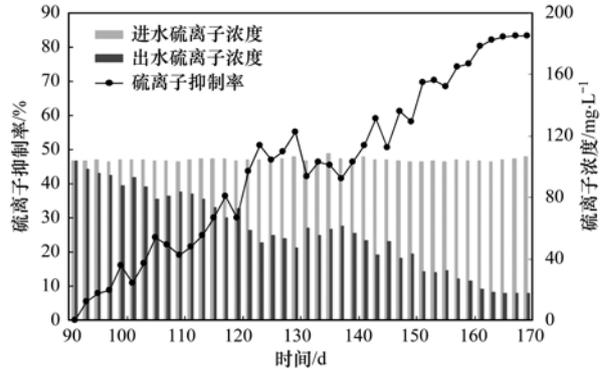


图5 工艺的稳定过程 UASB-2 中硫离子变化情况

Fig. 5 Change of sulfide in UASB-2 during the process stabilizing

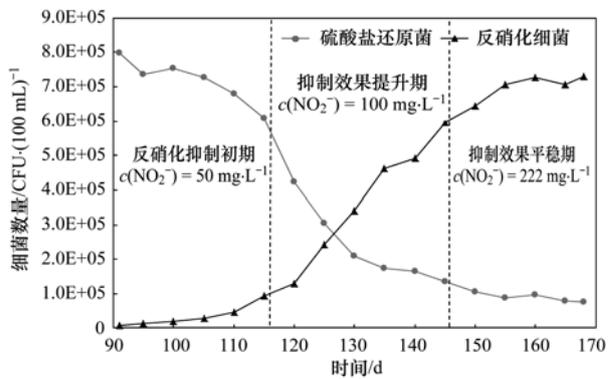


图6 工艺的稳定过程 UASB-2 中细菌数量变化情况

Fig. 6 Change of microbial quantity in UASB-2 during the process stabilizing

### 2.2.2 生物量与亚硝酸盐质量比对工艺效果的影响

生物量与亚硝酸盐质量比是影响反硝化抑制效果的重要因素. 对培养成熟的反硝化颗粒污泥,在保证系统生物量基本稳定的前提下,改变亚硝酸钠的投加量,从而确定生物量与亚硝酸钠的最优质量比. 分别在质量比为 1 667、1 200 及 857 这 3 种情况下,研究系统对  $\text{S}^{2-}$  抑制率的影响. 系统中的污泥量为 2 L,测定其 SVI 为  $13.3 \text{ mL}\cdot\text{g}^{-1}$ ,则生物量为 150 g,3 种质量比时需要的  $\text{NO}_2^-$  质量分别为 90、125 及 175 mg. 配成浓度为  $250 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  的  $\text{NaNO}_2$  溶液,通过调节  $\text{NaNO}_2$  的加药流量控制 UASB-2 中加入的  $\text{NO}_2^-$  质量,分别调节加药流量为 15.0、20.9 及  $29.2 \text{ mL}\cdot\text{h}^{-1}$ ,原水水质等其他条件均不变.

反硝化颗粒污泥培养成熟后,维持原条件继续培养 10 d,继而调节  $\text{NaNO}_2$  的加药流量至  $20.9 \text{ mL}\cdot\text{h}^{-1}$ ,培养 10 d 后,继续调节加药流量至  $29.2$

$\text{mL}\cdot\text{h}^{-1}$ , 进行 10 d 的培养. UASB-2 进出水的  $\text{S}^{2-}$  浓度及抑制率见图 7.

由图 7 可知, 质量比为 1 667 时,  $\text{S}^{2-}$  的抑制率稳定在 83% 左右, 181 d 时增加  $\text{NaNO}_2$  的投加量, 调节质量比为 1 200,  $\text{S}^{2-}$  的抑制率逐渐增加, 最终稳定至 92%, 191 d 时继续增加  $\text{NaNO}_2$  的量, 质量比为 857, 此时, 系统对  $\text{S}^{2-}$  的抑制率基本保持不变, 仍稳定于 92%. 对比 3 种情况可知, 随着质量比的减小,  $\text{S}^{2-}$  的抑制率先增加后基本保持不变, 主要原因是质量比过高时, 系统中  $\text{NaNO}_2$  的量对 DNB 是不足够的, 因此其活性未达到最高, 当  $\text{NaNO}_2$  量增加时, DNB 的活性增加, 1 200 的质量比对应的 DNB 活性最高, 因此具有较高的  $\text{S}^{2-}$  抑制率, 随后

再增加  $\text{NaNO}_2$  的量并无法使抑制率增加, 是因为此时影响反硝化抑制效果的主要因素不是 DNB 的活性, 而是反应过程中的其他因素. 因此, 控制生物量与亚硝酸盐质量比在 1 200 左右, 即可实现较高的  $\text{S}^{2-}$  抑制率. 质量比过高时,  $\text{S}^{2-}$  的抑制率相对较低, 而过低的质量比不仅无法保证抑制率的增加, 且造成  $\text{NO}_2^-$  投加成本的增加, 因此, 1 200 是较合适的质量比.

对 181 ~ 190 d 的结果进行分析可知, 184 d 时  $\text{S}^{2-}$  抑制率达到 92%, 继续培养时抑制率并未降低, 基本稳定于 92%, 说明该工艺对硫酸盐的抑制效果具有一定的稳定性. 实际应用中, 通过控制生物量与亚硝酸盐的比例, 使工艺效果保持最优.

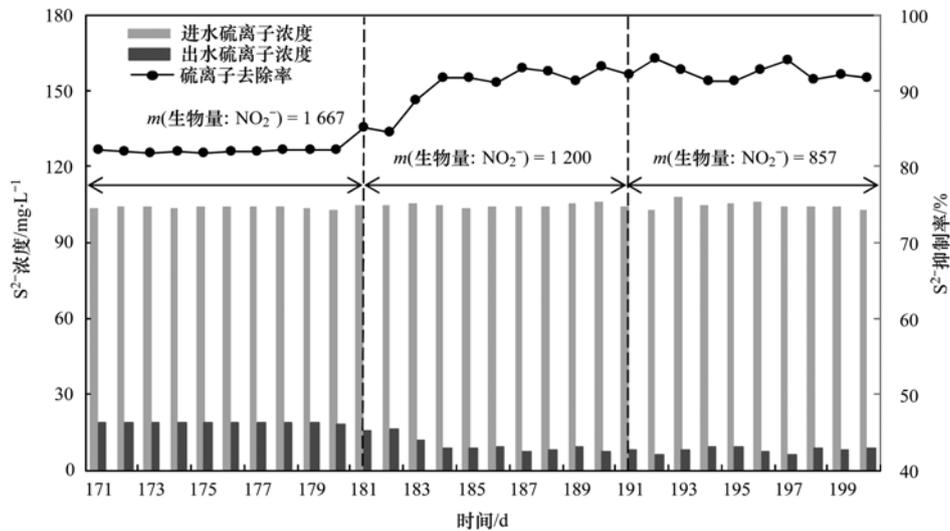


图 7 生物量与亚硝酸盐质量比对工艺效率的影响

Fig. 7 Effect of biomass to nitrite mass ratio on process efficiency

### 2.2.3 反硝化颗粒污泥性状

图 8 为反硝化颗粒污泥形态. 从中可知, 该工艺条件下形成的反硝化颗粒污泥呈棕褐色, 基本呈椭球形和球形, 表面光滑且密实, 说明该工艺条件适合颗粒污泥的形成, 并对其形成过程有促进作用. 图 8 中显示, 形成的反硝化颗粒污泥大部分的粒径在 1.0 ~ 1.6 mm, 与图 9 中的粒径分布测定结果一致.

Pereboom 等<sup>[28]</sup> 及赵霞等<sup>[24]</sup> 提出, 研究反应器内颗粒污泥的粒径分布可以很直观地反映出反应系统条件对颗粒污泥产生的影响, 进而对反应体系作出调整. 通过对颗粒污泥的沉速研究, 可了解颗粒污泥的沉降性能, 且对其反硝化抑制效率有一定的表征作用. 图 9 显示的是 UASB-1 颗粒污泥的粒径分布、UASB-2 污泥的粒径分布及沉速, 其中 UASB-



图 8 反硝化颗粒污泥外观

Fig. 8 Appearance of denitrified granular sludge

1 中的污泥取自反应器启动 90 d 时, UASB-2 中的污泥取自反应器启动 170 d 时, 测其粒径分布, 并对 UASB-2 中不同粒径范围的颗粒污泥在清水中的静

沉速进行测量。

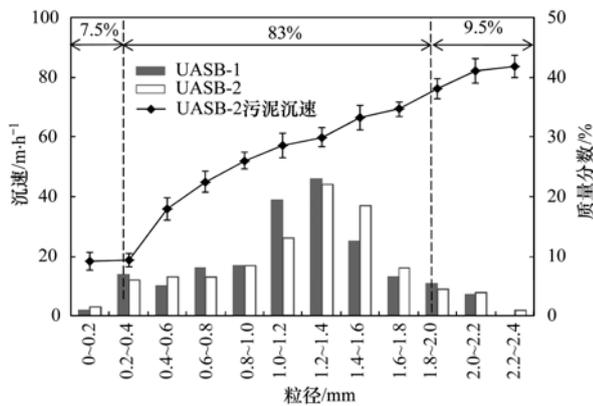


图9 颗粒污泥粒径分布及沉速

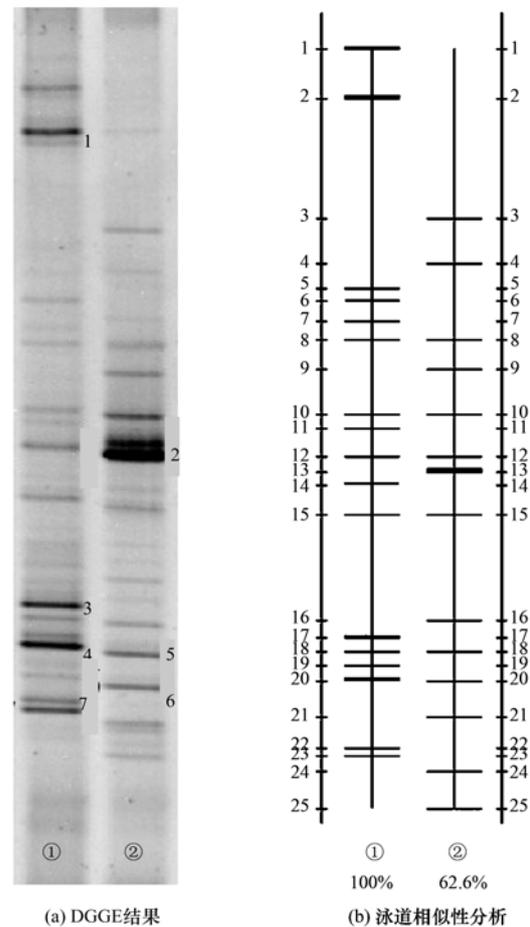
Fig. 9 Particle size distribution and settling velocity of granular sludge

图9中显示,UASB-1中的颗粒污泥粒径多分布在1.0~1.4 mm,占总泥量的42.5%,计算得平均粒径为1.17 mm;UASB-2中的颗粒污泥粒径多分布在1.2~1.6 mm,占总泥量的40.5%,计算得平均粒径为1.21 mm.对比两反应器中的污泥粒径可知,UASB-2中污泥粒径大于UASB-1,说明反硝化抑制硫酸盐还原过程使污泥粒径略有增加. UASB-2中污泥沉速随着粒径增加而增大,但当粒径过大,即大于2.2 mm后沉速增长不明显,这是由于过大的粒径会导致污泥内部缺乏营养或能量形成孔隙,颗粒密度因此减小,同时孔隙内容易容纳产生的气体,使污泥的沉降性能变差,这与Wang<sup>[29]</sup>等的研究结果一致;颗粒污泥的平均沉速为47.6 m·h<sup>-1</sup>,说明该污泥具有较好的沉降性能.对比粒径分布与污泥沉速结果可知,83%的颗粒污泥其沉速在20~70 m·h<sup>-1</sup>之间,该沉速范围内的颗粒污泥粒径分布于0.4~1.8 mm之间;9.5%的颗粒污泥沉降性能很好,沉速大于70 m·h<sup>-1</sup>,最大沉速可达83 m·h<sup>-1</sup>,其粒径介于1.8~和2.2 mm之间;7.5%的颗粒污泥的沉降性较差,沉速为20 m·h<sup>-1</sup>. Schmidt<sup>[30]</sup>等的研究表明,厌氧颗粒污泥的粒径一般介于0.5~5 mm,沉速在20~70 m·h<sup>-1</sup>内属于良好污泥,本研究形成的颗粒污泥粒径尺寸与其他厌氧颗粒污泥基本相当,沉速相对于其他厌氧颗粒污泥较高,沉降性能好,说明该工艺的运行效能好,可实现较高的硫酸盐还原抑制效果.

### 2.3 微生物特性分析

PCR扩增实验采用的引物为针对细菌16S rDNA的V3区基因的通用引物338F-518R,扩增后的产物进行变性梯度凝胶电泳(DGGE)分析,

电泳结果如图10(a)所示,通过软件Quantity One绘制泳道间相似性示意图,结果如图10(b)所示.



①代表UASB-1中的颗粒污泥,②为UASB-2中的颗粒污泥

图10 DGGE及泳道相似分析

Fig. 10 Results of DGGE and lane similarity analysis

根据变性梯度凝胶电泳的分离原理,泳道内的每个条带代表一种可能的细菌,因此条带越多说明生物菌种越多,条带越亮则该种细菌丰度越高.由图10(a)可知,UASB-1颗粒污泥泳道中有18条条带,4条亮条带,UASB-2颗粒污泥中有14条条带,3条亮条带.说明经反硝化抑制后,污泥中的菌群结构发生了较大改变.对比UASB-1与UASB-2颗粒污泥电泳结果,经反硝化抑制作用后,微生物种属由18种减少至14种,优势菌属由4种减少至3种,说明反硝化抑制硫酸盐还原过程会降低生物多样性.图10(b)结果表明,UASB-1与UASB-2中微生物种群相似性为62.6%,说明反硝化抑制过程对微生物种群结构有较大改变.

将电泳泳道中的7条亮条带割胶回收,并进行克隆,每条条带选择其阳性克隆子进行测序,所测序列与GenBank数据库比对,结果见表2.各条带分

别命名为 Band1 ~ Band7.

UASB-1 中的优势条带为 Band1、3、4、7,其对应的最相似菌种分别为 Uncultured *Desulfobulbus* sp.、*Desulfobulbus propionicus* DSM 2032、Uncultured sulfate-reducing bacterium 和 *Desulfovibrio carbinolicus* strain DSM 3852,几种菌具有硫酸盐还原的功能基因,故 UASB-1 中的 4 种优势菌种均为 SRB. UASB-2 中的优势条带为 Band2、5、6,对应最相似菌种为 Uncultured *Sulfurimonas* sp.、Uncultured sulfate-reducing bacterium 和 *Desulfovibrio burkinensis*,其中

表 2 回收条带的测序结果分析比对

Table 2 Analysis of sequencing results of the recovered bands

条带编号	GenBank 数据库中最相似菌种名称	NCBI 比对结果		
		查询号	同源性/%	覆盖率/%
Band1	Uncultured <i>Desulfobulbus</i> sp.	JN684094.1	97	100
Band2	Uncultured <i>Sulfurimonas</i> sp.	KF465269.1	99	100
Band3	<i>Desulfobulbus propionicus</i> DSM 2032	CP002364.1	96	100
Band4/5	Uncultured sulfate-reducing bacterium	KC865405.1	96	99
Band6	<i>Desulfovibrio burkinensis</i>	AB061536.1	97	100
Band7	<i>Desulfovibrio carbinolicus</i> strain DSM 3852	AY626026.1	98	100

两反应器中共有 5 种 SRB,其中 Band4 与 Band5 对应同一种.其中,除 Band4/5 对应的菌种不能确定其所属科目外,其余均属于  $\Delta$ -变形菌纲, Uncultured *Desulfobulbus* sp. 和 *Desulfobulbus propionicus* DSM 2032 归于脱硫叶菌科、脱硫叶菌目、脱硫叶菌属, *Desulfovibrio burkinensis* 及 *Desulfovibrio carbinolicus* strain DSM 3852 归于脱硫弧菌科、脱硫弧菌目、脱硫弧菌属.经反硝化抑制后,SRB 原有菌种即 Band1、3、7 对应菌种消失说明反硝化对以上几种 SRB 的抑制作用显著,迫于环境压力,几种细菌的生长繁殖完全受限,最终消亡. Band4/5 对应菌种经反硝化抑制后,虽仍为优势菌种,但数量明显减少,说明该菌种对该环境有一定的适应性. Band6 为反硝化抑制后的新增菌种,虽为优势菌种,但其条带不是很亮,说明数量不多,该菌与 Band4/5 对应菌种有共性,它们均可适应该环境,但经反硝化抑制后,硫离子浓度很小,说明体系中存在的 SRB 并未进行硫酸盐还原过程产生硫离子,即以上两种 SRB 虽存在于系统中,但其活性被抑制,基本不进行硫酸盐还原过程,因此对体系无害.

反硝化抑制过程的主要功能菌为 Band2 对应菌种,即 Uncultured *Sulfurimonas* sp.,该菌种归于硫微螺菌属、螺杆菌科、弯曲(杆)菌目、变形菌纲、变形菌门. Takai 等<sup>[31]</sup>的研究表明,该类细菌是一种典型的化能自养型反硝化细菌,厌氧环境中可利用

Uncultured sulfate-reducing bacterium 与 *Desulfovibrio burkinensis* 具有硫酸盐还原基因,均属于 SRB; Uncultured *Sulfurimonas* sp. 归于硫微螺菌属,是一种典型的反硝化细菌,故 UASB-2 中的优势菌属包括两种 SRB 及一种 DNB,据其条带亮度可知, DNB 数量远远高于 SRB. 对比 UASB-1 及 UASB-2 中优势菌种组成,可知 SRB 优势菌种由 4 种减少至 2 种,且其占总菌丰度明显降低,新增一种 DNB,丰度很高,说明反硝化抑制硫酸盐还原促使优势菌群由 SRB 逐渐演变为 DNB,微生物种群结构发生明显变化.

硫类物质作为电子供体,将投加的硝酸盐/亚硝酸盐作为电子受体进行生化反应,产生能量维持自身生长繁殖;以上几种 SRB 以碳源等营养基质为电子供体,以硫酸盐、亚硫酸盐等硫类物质为电子受体进行硫酸盐还原反应,产生的能量维持自身生长.因此,当亚硝酸盐加入体系中,促进 DNB 利用硫类物质过程的进行, DNB 在电子的竞争中占优势,硫酸盐还原反应的发生受限, SRB 无法获取能量以满足自身生长,逐步消亡,减少硫化物的产生,硫酸盐还原过程得到抑制.

### 3 结论

(1) 添加  $\text{NaNO}_2$  可促使反应体系中反硝化细菌 (denitrifying bacteria, DNB) 的活性明显增加, DNB 对硫酸盐还原菌 (Sulfate-reducing bacteria, SRB) 的竞争抑制作用导致 SRB 数量由  $8.0 \times 10^5 \text{ CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$  减少,稳定至  $7.6 \times 10^4 \text{ CFU} \cdot (100 \text{ mL})^{-1}$ ,同时,硫酸盐还原过程被抑制,硫离子的抑制率不断增加,最终稳定至 82%.

(2) 生物量与亚硝酸盐的质量比为 1 200 时,反应体系对  $\text{S}^{2-}$  的抑制率最高,可达 92%,实现较好的硫酸盐还原过程抑制效果,且该工艺对其抑制率可保持在 92% 左右,具有较好的稳定性.

(3) 形成的反硝化颗粒污泥为棕褐色,基本为椭圆形和球形,表面光滑且密实.反硝化抑制前,颗

粒污泥的粒径多分布于 1.0 ~ 1.4 mm, 平均粒径为 1.17 mm, 经反硝化抑制后, 粒径多分布在 1.2 ~ 1.6 mm, 平均粒径为 1.21 mm, 反硝化抑制过程促进污泥粒径及沉速的小幅增加; 形成的反硝化颗粒污泥平均沉速为  $47.6 \text{ m} \cdot \text{h}^{-1}$ , 沉降性能较好。

(4) 对反硝化颗粒污泥中微生物进行 PCR-DGGE 分析, 结果表明, 反硝化抑制作用使微生物多样性降低, 且其优势菌群由 SRB 逐渐演变为 DNB; 反硝化抑制使 SRB 菌属减少, 丰度降低, 反硝化抑制后, UASB-2 中存在两种 SRB 优势菌属, 一种为原有菌种, 其数量相对于反硝化前明显减少, 另一种为新增菌种, 这两种 SRB 虽为优势菌种, 但其活性被抑制, 基本不进行硫酸盐还原反应, 故其存在对该体系不会有太大影响; 反硝化抑制过程的主要功能菌为 *Uncultured Sulfurimonas sp.*, 是一种自养型反硝化细菌, 与 SRB 进行抢夺电子竞争并占优势, 抑制硫酸盐还原过程及 SRB 生长繁殖, 从而抑制硫化物的产生。

#### 参考文献:

- [1] 王军, 穆海涛, 张岳峰. 加氢装置硫化氢腐蚀问题分析及对策[J]. 安全、健康和环境, 2016, 16(10): 13-17.  
Wang J, Mu H T, Zhang Y F. Analysis and countermeasure of hydrogen sulfide corrosion in hydrogenation unit [J]. Safety Health & Environment, 2016, 16(10): 13-17.
- [2] 谢日彬, 李锋, 于亮, 等. 硫酸盐还原菌对油田的腐蚀状况及其微生物防控机理[J]. 山东化工, 2011, 40(7): 30-33.  
Xie R B, Li F, Yu L, et al. Corrosion of sulfate-reducing bacteria to oil field and its microbial controlling mechanism[J]. Shandong Chemical Industry, 2011, 40(7): 30-33.
- [3] 刘光成, 邢四骏, 朱凯, 等. 渤海某油田硫化氢治理措施及效果[J]. 油气田环境保护, 2014, 24(1): 20-23.  
Liu G C, Xing S J, Zhu K, et al. Measures and effect of hydrogen sulfide control in an oil field of Bo Hai [J]. Environmental Protection of Oil & Gas Fields, 2014, 24(1): 20-23.
- [4] Reinsel M A, Sears J T, Stewart P S, et al. Control of microbial souring by nitrate, nitrite or glutaraldehyde injection in a sandstone column[J]. Journal of Industrial Microbiology, 1996, 17(2): 128-136.
- [5] 关建宁, 汪海波. 杀菌剂 DMHSEA 在油井注水中杀菌效果评价[J]. 工业水处理, 2001, 21(2): 7-8.  
Guan J N, Wang H B. Evaluation of DMHSEA's bactericidal performance in oil-well injected water [J]. Industrial Water Treatment, 2001, 21(2): 7-8.
- [6] Tang K, Baskaran V, Nemati M. Bacteria of the sulphur cycle: an overview of microbiology, biokinetics and their role in petroleum and mining industries[J]. Biochemical Engineering Journal, 2009, 44(1): 73-94.
- [7] Fukui M, Teske A, Albus B, et al. Physiology, phylogenetic relationships, and ecology of filamentous sulfate-reducing bacteria (genus *Desulfonema*) [J]. Archives of Microbiology, 1999, 172(4): 193-203.
- [8] Lee D H, Lee J H, Jeong K S, et al. Organic matter cycle by biogeochemical indicator in Tidal Mud Flat, West Coast of Korea [J]. Ocean and Polar Research, 2014, 36(1): 25-37.
- [9] Telang A J, Ebert S, Foght J M, et al. Effects of two diamine biocides on the microbial community from an oil field [J]. Canadian Journal of Microbiology, 1998, 44(11): 1060-1065.
- [10] Gardner L R, Stewart P S. Action of glutaraldehyde and nitrite against sulfate-reducing bacterial biofilms [J]. Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology, 2002, 29(6): 345-360.
- [11] 解英丽, 耿大伟, 吕楠. 亚硝酸盐与硝酸盐反硝化对比试验研究[J]. 给水排水, 2009, 35(S2): 213-215.  
Xie Y L, Geng D W, Lv N. Comparative study on denitrification of nitrite and nitrate [J]. Water and Wastewater, 2009, 35(S2): 213-215.
- [12] 杨德玉, 张颖, 史荣久, 等. 硝酸盐抑制油田采出水中硫酸盐还原菌活性研究[J]. 环境科学, 2014, 35(1): 319-326.  
Yang D Y, Zhang Y, Shi R J, et al. Inhibition of the activity of sulfate-reducing bacteria in produced water from oil reservoir by nitrate [J]. Environmental Science, 2014, 35(1): 319-326.
- [13] Telang A J, Ebert S, Foght J M, et al. Effect of nitrate injection on the microbial community in an oil field as monitored by reverse sample genome probing [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1997, 63(5): 1785-1793.
- [14] 邵涛, 苟智, 王林. 油田水反硝化技术抑制硫酸还原菌[J]. 环境工程学报, 2013, 7(2): 617-623.  
Shao T, Gou Z, Wang L. Denitrification inhibiting sulfate-reducing bacteria activity in oilfield water [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2013, 7(2): 617-623.
- [15] 李岩, 张璇, 张海玲, 等. 反硝化细菌抑制石油集输系统硫化氢治理技术[J]. 油气田环境保护, 2013, 23(3): 34-36.  
Li Y, Zhang X, Zhang H L, et al. Denitrification bacteria inhibition treatment for sulfuretted hydrogen of oil gathering and transferring system [J]. Environmental Protection of Oil & Gas Fields, 2013, 23(3): 34-36.
- [16] Sturman P J, Goeres D M, Winters M A. Control of hydrogen sulfide in oil and gas wells with nitrite injection [A]. In: SPE Annual Technical Conference and Exhibition [C]. Houston: Society of Petroleum Engineers, 1999. 357-363.
- [17] 袁宏林. 生物造粒流化床污水处理技术及理论研究 [D]. 西安: 西安建筑科技大学, 2011. 16-19.
- [18] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法 [M]. (第 4 版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.
- [19] 董慧明, 张颖, 王沈海, 等. 反硝化细菌对硫酸盐还原菌的竞争抑制研究[J]. 环境工程学报, 2008, 2(1): 130-134.  
Dong H M, Zhang Y, Wang S H, et al. Study on the competitive inhibition of denitrifying bacteria with sulfate reducing bacteria [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2008, 2(1): 130-133.
- [20] Vester F, Ingvorsen K. Improved most-probable-number method to detect sulfate-reducing bacteria with natural media and a radiotracer [J]. Applied and Environmental Microbiology, 1998, 64(5): 1700-1707.
- [21] SY/T 0532-1993, 油田注入水细菌分析方法 绝迹稀释法 [S].
- [22] Roux-Michollet D, Czarnes S, Adam B, et al. Effects of steam

- disinfestation on community structure, abundance and activity of heterotrophic, denitrifying and nitrifying bacteria in an organic farming soil[J]. *Soil Biology and Biochemistry*, 2008, **40**(7): 1836-1845.
- [23] 贺秋芳. 青木关地下河岩溶系统中的氮循环及其相关微生物作用与示踪研究[D]. 重庆: 西南大学, 2009. 23-24.
- [24] 赵霞. 好氧颗粒污泥系统处理含 PPCPs 污水的效能及微生物群落演替[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2015. 29-33, 68-70.
- [25] 李德祥, 李冬, 吴迪, 等. 改良型 UASB 厌氧氨氧化工艺研究[J]. *中国给水排水*, 2013, **29**(21): 33-37.  
Li D X, Li D, Wu D, *et al.* Study on anaerobic ammonium oxidation in improved UASB reactor [J]. *China Water & Wastewater*, 2013, **29**(21): 33-37.
- [26] 李志华, 姬晓琴, 李胜, 等. 采用体积信息熵表征颗粒污泥系统稳定性及其稳定机制[J]. *环境科学*, 2012, **33**(3): 885-888.  
Li Z H, Ji X Q, Li S, *et al.* Index of stability and its mechanisms of aerobic granular system using volume-based information entropy[J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(3): 885-888.
- [27] 杨茜, 吴蔓莉, 聂麦茜, 等. 石油污染土壤的生物修复技术及微生物生态效应[J]. *环境科学*, 2015, **36**(5): 1856-1863.  
Yang Q, Wu M L, Nie M Q, *et al.* Effects and biological response on bioremediation of petroleum contaminated soil[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(5): 1856-1863.
- [28] Pereboom J H F. Size distribution model for methanogenic granules from full scale UASB and IC reactors[J]. *Water Science and Technology*, 1994, **30**(12): 211-221.
- [29] Wang Z W, Li Y, Liu Y. Mechanism of calcium accumulation in acetate-fed aerobic granule [J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2007, **74**(2): 467-473.
- [30] Schmidt J E, Ahring B K. Granular sludge formation in upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactors [J]. *Biotechnology and Bioengineering*, 1996, **49**(3): 229-246.
- [31] Takai K, Suzuki M, Nakagawa S, *et al.* *Sulfurimonas paralvinellae* sp. nov., a novel mesophilic, hydrogen- and sulfur-oxidizing chemolithoautotroph within the *Epsilonproteobacteria* isolated from a deep-sea hydrothermal vent polychaete nest, reclassification of *Thiomicrospira denitrificans* as *Sulfurimonas denitrificans* comb. nov. and emended description of the genus *Sulfurimonas* [J]. *International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology*, 2006, **56**(Pt 8): 1725-1733.

## CONTENTS

Estimating the Secondary Organic Aerosol Concentration and Source Apportionment During the Summer and Winter in the Nanjing Industrial District .....	LIU Jing-da, AN Jun-lin, ZHANG Yu-xin, <i>et al.</i> (1733)
Modeled Deposition of Fine Particles in Human Airway in Northern Suburb of Nanjing .....	LIANG Jing-shu, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (1743)
Concentration Characteristics and Influencing Factors of Atmospheric Particulate Matters in Spring on Weizhou Island, Beihai, Guangxi Province .....	GAO Yuan-guan, ZHANG Kai, WANG Ti-jian, <i>et al.</i> (1753)
Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Atmosphere of Dajiuhe, Shennongjia, China .....	JIN Meng-yun, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1760)
Spatial Distribution Characteristics of NMHCs in Spring in Cangzhou City .....	DUAN Jing-chun, ZHOU Xue-ming, ZHANG He-feng, <i>et al.</i> (1769)
Emission Characteristics of Residential Coal Combustion Flue Gas in Beijing .....	LIANG Yun-ping, ZHANG Da-wei, LIN An-guo, <i>et al.</i> (1775)
Emission Characteristics and Ozone Formation Potential of VOCs from a Municipal Solid Waste Composting Plant .....	SHAO Zhu-ze, ZHENG Guo-di, WANG Yuan-gang, <i>et al.</i> (1783)
Degradation Characteristics of Composite CVOCs by Non-thermal Plasma .....	JIANG Li-ying, ZHANG Di, GUO Hai-qian, <i>et al.</i> (1792)
Chemical Compositions and Source Apportionment of Road Dust in Yuncheng .....	WU Yuan-yuan, LI Ru-mei, PENG Lin, <i>et al.</i> (1799)
Pollution Risk of Heavy Metals in Dust from the Building Along Elevated Road; A Case Study in Changzhou .....	YAO Jing-bo, WANG Ming-xin, QI Jin-di, <i>et al.</i> (1807)
Characteristics of Stable Isotope in Precipitation and Its Relationship with ENSO in Shanghai .....	DONG Xiao-fang, DENG Huang-yue, ZHANG Luan, <i>et al.</i> (1817)
Effects of DOC + CDPF on Emission Characteristics of Heavy-duty Diesel Vehicle .....	ZHANG Yun-hua, LOU Di-ming, TAN Pi-qiang, <i>et al.</i> (1828)
Accumulated Health Risk Assessment of Arsenic in Drinking Water of Major Cities of China .....	ZHANG Qiu-qiu, PAN Shen-ling, LIU Wei, <i>et al.</i> (1835)
Health Risk Assessment of Microcystins from Drinking Water Source by Monte Carlo Simulation Method .....	WANG Yang, XU Ming-fang, GENG Meng-meng, <i>et al.</i> (1842)
Potential Risk and Distribution Characteristics of PPCPs in Surface Water and Sediment from Rivers and Lakes in Beijing, China .....	ZHANG Pan-wei, ZHOU Huai-dong, ZHAO Gao-feng, <i>et al.</i> (1852)
Assessment of the Spatial-temporal Distribution Characteristics and Main Affecting Factors of Chromophoric Dissolved Organic Matter in Spring and Summer at the Changjiang Estuary and Adjacent Areas .....	SUN Yu-yan, BAI Ying, SU Rong-guo, <i>et al.</i> (1863)
Complexation Between Copper (II) and Colored Dissolved Organic Matter from Municipal Solid Waste Landfill .....	XIAO Xiao, HE Xiao-song, GAO Ru-tai, <i>et al.</i> (1873)
Effects of Three Bioretention Configurations on Dissolved Nitrogen Removal from Urban Stormwater .....	LI Li-qing, HU Nan, LIU Yu-qing, <i>et al.</i> (1881)
Influence of Spatial Pattern of Paddy Field on the Losses of Nitrogen and Phosphorus in Three Gorges Reservoir Area .....	CHEN Cheng-long, GAO Ming, NI Jiu-pai, <i>et al.</i> (1889)
Effects of NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N Loading on the Early-Period Efficiency of Denitrification and Carbon Releasing in Constructed Wetland Filled with Bark .....	JIANG Ying-be, LI Yao, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (1898)
Effects of Microbial Fuel Cell Coupled Constructed Wetland with Different Support Matrix and Cathode Areas on the Degradation of Azo Dye and Electricity Production .....	LI Xue-xiao, CHENG Si-chao, FANG Zhou, <i>et al.</i> (1904)
Effects of Anode Materials on Electricity Generation and Organic Wastewater Treatment of 6 L Microbial Fuel Cells .....	DING Wei-jun, YU Li-liang, CHEN Jie, <i>et al.</i> (1911)
Effects of Joint-reaction Combined by Ozonation and Coagulation on Aquatic Organic Matters .....	LIU Hai-long, FU Jing-miao, GUO Xue-feng, <i>et al.</i> (1918)
Disinfection Action of Ultraviolet Radiation and Chlorination on <i>Escherichia coli</i> and Poliovirus .....	XU Li-mei, ZHANG Chong-miao, WANG Xiao-chang, <i>et al.</i> (1928)
Adsorption of Phosphate from Aqueous Solution on Hydrous Zirconium Oxides Precipitated at Different pH Values .....	WANG Xing-xing, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (1936)
Performance of Polymer-based Titanium and Zirconium Oxides Composite Adsorbent for Simultaneous Removal of Phosphorus and Fluorine from Water .....	CHEN Jia-kai, NIE Guang-ze, LIU Zhi-ying, <i>et al.</i> (1947)
Effect of Different Adding Means of Ignited Water Purification Sludge on Phosphorus Adsorption and Forms .....	ZHU Pei-ying, LI Da-peng, YU Sheng-nan (1957)
Law of Pollutant Erosion and Deposition in Urban Sewage Network .....	SANG Lang-tao, SHI Xuan, ZHANG Tong, <i>et al.</i> (1965)
Fate of Eleven Phthalic Acid Esters in Aerobic Sewage Treatment System .....	ZHOU Lin-jun, GU Wen, LIU Ji-ning, <i>et al.</i> (1972)
Characteristics of Denitrification Inhibiting Sulfate Reducing Process .....	JIN Peng-kang, YANG Zhen-rui, LI Rong, <i>et al.</i> (1982)
Enhanced Short-cut Denitrification by Fe <sup>(0)</sup> -activated Carbon and Its Influencing Factors .....	LÜ Yong-tao, LIU Ting, ZENG Yu-lian, <i>et al.</i> (1991)
Comparison of Operating Performance of Partial Nitritation Systems with Two Different Inhibition Strategies .....	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, CHEN Guo-yan, <i>et al.</i> (1997)
Effect of Substrate Ratio on Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX in ABR .....	LÜ Gang, XU Le-zhong, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (2006)
Effects of Temperature on the Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Removal and Microbial Community in SCSC-S/Fe .....	FAN Jun-hui, HAO Rui-xia, ZHU Xiao-xia, <i>et al.</i> (2012)
Analysis on Performance and Microbial Community Dynamics of a Strengthened Circulation Anaerobic Reactor Treating Municipal Wastewater .....	YANG Bo, XU Hui, FENG Xiu-ping, <i>et al.</i> (2021)
Aerobic Degradation Characteristics of the Quinoline-Degrading strain <i>Ochrobactrum</i> sp. and Its Bioaugmentation in Coking Wastewater .....	XU Wei-chao, WU Cui-ping, ZHANG Yu-xiu, <i>et al.</i> (2030)
Manganese Oxidation Characteristics and Oxidation Mechanism of a Manganese-Oxidizing Bacterium <i>Arthrobacter</i> sp. HW-16 .....	WAN Wen-jie, XUE Zhi-jun, ZHANG Ze-wen, <i>et al.</i> (2036)
Effect of Temperature on Nitrogen Removal Performance of Marine Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria .....	ZHOU Tong, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (2044)
Nitrogen Removal Performance and Microbial Community Analysis of Activated Sludge Immobilization .....	XU Xiao-yi, YOU Xiao-lu, LÜ Chen-pei, <i>et al.</i> (2052)
Microbial Structure of an Enhanced Two-phase High-solid Anaerobic Digestion System Treating Sludge .....	CAO Zhi-ping, WU Jing, ZUO Jian-e, <i>et al.</i> (2059)
Comparative Studies on Soil Actinobacterial Biodiversity After Re-vegetation in the Urban and Rural Hydro-fluctuation Zone of the Three Gorges Reservoir Region .....	QIN Hong, REN Qing-shui, YANG Wen-hang, <i>et al.</i> (2065)
Nitrous Oxide Emissions and Its Influencing Factors from an Agricultural Headwater Ditch During a Maize Season in the Hilly Area of Central Sichuan Basin .....	TIAN Lin-lin, ZHU Bo, WANG Tao, <i>et al.</i> (2074)
Effect of Dicyandiamide on N <sub>2</sub> O Emission in Fallow Paddy Field and Rape Cropping .....	WU Yan-zheng, ZHANG Miao-miao, QIN Hong-ling, <i>et al.</i> (2084)
Characteristics of Biochar-mediated N <sub>2</sub> O Emissions from Soils of Different Surface Conditions .....	ZOU Juan, HU Xue-yu, ZHANG Yang-yang, <i>et al.</i> (2093)
Characteristics of Soil Respiration and Soil Organic Carbon in Fava Bean Farmland Under Ridge Tillage and Straw Mulching in Southwest China .....	XIONG Ying, WANG Long-chang, DU Juan, <i>et al.</i> (2102)
Prediction of Distribution of Soil Cd Concentrations in Guangdong Province, China .....	SUN Hui, GUO Zhi-xing, GUO Ying, <i>et al.</i> (2111)
Spatial Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Suya Lake .....	ZHANG Peng-yan, KANG Guo-hua, PANG Bo, <i>et al.</i> (2125)
Effects of the Active Components of Humic Acids and Their Proportions on the Dynamics of Lead Transformation and Availability in Purple Alluvial Soil .....	WANG Qing-qing, JIANG Zhen-mao, WANG Jun, <i>et al.</i> (2136)
Enrichment Characteristics of Heavy Metals in Particulate Organic Matter of Purple Paddy Soil .....	LI Qiu-yan, ZHAO Xiu-lan (2146)
Enhanced Sorption of Cetrizine to Loessial Soil Amended with Biochar .....	WU Zhi-juan, BI Er-ping (2154)
Characteristics and Mechanism of Copper Adsorption from Aqueous Solutions on Biochar Produced from Sawdust and Apple Branch .....	WANG Tong-tong, MA Jiang-bo, QU Dong, <i>et al.</i> (2161)
Adsorption of Pb <sup>2+</sup> and Cd <sup>2+</sup> from Aqueous Solution Using Vermicompost Derived from Cow Manure and Its Biochar .....	DU Wen-hui, ZHU Wei-qin, PAN Xiao-hui, <i>et al.</i> (2172)
Performance and Mechanism Study of Visible Light-driven C <sub>3</sub> N <sub>4</sub> /BiOBr Composite Photocatalyst .....	BAO Yue, ZHOU Min-yun, ZOU Jun-hua, <i>et al.</i> (2182)